

H₂O を架橋配位子とする 1次元構造金属錯体の磁性

野本尚之、藤原隆司、澤田祐也*、木田孝則*、萩原政幸*、鎌田憲彦、本多善太郎
(埼玉大院理工、*阪大先端強磁場)

Magnetic properties of H₂O bridged one-dimensional metal complexes

N. Nomoto, T. Fujihara, Y. Sawada*, T. Kida*, M. Hagiwara*, N. Kamata, and Z. Honda
(Saitama Univ., *AHMF, Osaka Univ.)

はじめに

複数の金属に配位結合する分子やイオン (架橋配位子) を含む金属錯体は金属上に磁気モーメントが局在し、架橋配位子を介して超交換相互作用が働いたため、スピン系の良い候補物質となることが知られている。架橋配位子の中でも H₂O は 90° に近い結合角をとることが知られており、架橋配位型 H₂O を含む金属錯体は強磁性体となることが期待される。しかしながら架橋配位型 H₂O を含む金属錯体の報告例は少なく、その探索と磁性の調査が求められる。これまでの研究によりカルボン酸の存在が H₂O を架橋配位子として安定化させることが分かっており、各種カルボン酸と金属イオンの組み合わせにおいて物質探索を行った。その結果、カルボン酸の一種である *p*-スルホ安息香酸 (sba) と Co の組み合わせにおいて強磁性を示す H₂O 架橋型錯体を得た。本研究では各種 H₂O 架橋金属錯体の単結晶育成を行い、得られた結晶の構造と磁性の関係を明らかにすることを目的とした。

実験方法

各種遷移金属塩と KHsba の水溶液に、アンモニア水を水酸化剤として加え、水熱法、溶媒蒸発法の 2 方法で金属錯体を合成した。水熱法では水-エタノール混合溶媒を用いて加熱温度と加熱時間を検討した。溶媒蒸発法では水を溶媒に用いてアンモニア濃度を調整し、恒温槽で一定温度に保つことにより結晶を育成した。各種結晶の構造解析には単結晶及び粉末 X 線構造解析法を用い、磁気測定を SQUID 磁束計、比熱測定を熱緩和法により行った。

実験結果

水熱反応の結果、1次元金属錯体 Co₃(sba)₂(OH)₂(H₂O)₂ ①の単結晶が得られた。一方、溶媒蒸発法では別構造の 1次元金属錯体 [M(sba)(H₂O)₂] · H₂O (M = Co, Ni, Cu) ②の単結晶、及び粉末が得られた。①、②どちらも H₂O や OH が M を架橋して 1次元鎖を形成し、それらが sba により保持された構造であった (Fig. 1)。磁気測定の結果、②M = Cu 以外の錯体はすべて強磁性 (②M = Cu は反強磁性) を示した (Fig. 2)。①、②とも 1次元鎖に沿った M-O-M 結合角が 90° に近く、強磁性的な超交換相互作用が一方方向に強く働き擬 1次元強磁性体となったと思われる。一般に低次元磁性体のキュリー温度は低いことが知られており、比熱測定により磁気相転移を調べたところ①のキュリー点は T_c = 1.54 K であった。また、②M = Cu の帯磁率はスピン 1/2 1次元反強磁性体モデルの計算値とよく一致した。M = Cu のみ反強磁性を示すのは Cu²⁺イオンのヤーン・テラー効果により、強磁性的な超交換相互作用を示す Cu-O-Cu 結合角が歪んだためであると考えられる。当日詳細を報告する。

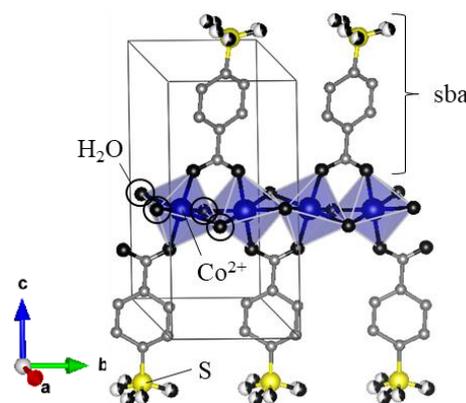


Fig. 1 Crystal structure of [Co(sba)(H₂O)₂] · H₂O.

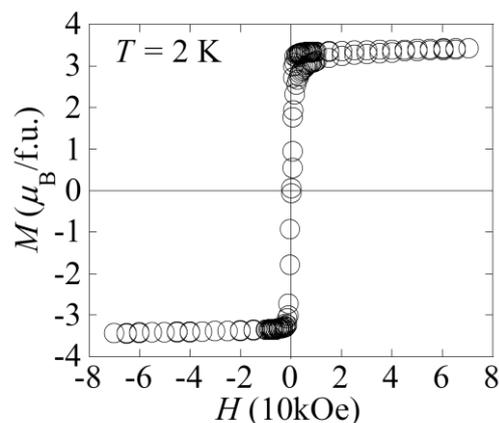


Fig. 2 Magnetization M vs. magnetic field H curve for [Co(sba)(H₂O)₂] · H₂O.

層状化合物超伝導体 $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_{3-\delta}$ の非経験的な磁気構造

藤乗優治郎, 中西愛, 神原陽一
(慶應大学)

Magnetic Quantum phase transition of a superconducting layered compound, $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_{3-\delta}$

Y. Tojo, M. Nakanishi, Y. Kamihara
(Keio Univ.)

緒言

ペロブスカイト型構造を示す酸化物は、酸素欠損の量や構成元素により、その電氣的/磁氣的性質が大きく変わることが知られている。一方、混合(複合)アニオン化合物と呼ばれる化合物は、透明酸化物伝導体¹、光触媒材料²、および高温超伝導³のような多様な機能性を示すことが近年知られている。2009年に鉄系高温超伝導体の一つとして報告された $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_{3-\delta}$ ^{4,5} は、ペロブスカイト関連 $\text{Sr}_2\text{VO}_{3-\delta}$ 層と PbO 型 FeAs 層が互いに積層した混合アニオン層状化合物(Mixed anion layered compounds: MALC)である。 $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_{3-\delta}$ の磁性は、単位格子中に磁気イオンを2種類含むため、複雑である。 $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_{3-\delta}$ のような MALC の磁性等の機能性解釈には、計算機科学によるサポートが必須である。本報告は非経験的な電子状態と、実験で得られた電子磁気状態相図を比較検討し、 $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_{3-\delta}$ における酸素欠損由来の磁気量子相転移の詳細を明らかにする。

方法

Projected Augmented Wave (PAW)法^{6,7}による電子状態計算コード Vienna Ab-initio Simulation Package (VASP)を用いて非経験的な計算を行った。基本単位包の a, b 軸を 45° 回転してそれぞれ $\sqrt{2}$ 倍に拡張した a', b' 軸を基本並進ベクトルとした拡張単位包(Super cell)を仮想結晶とした。欠損の生じる酸素サイトは、内部構造緩和後に内部エネルギーが最小値($\Delta E = 0$)となる構造として定義した。

結果と考察

$\delta = 0, 0.25, 0.5$ の磁性相を非経験的に求めた。 $\delta = 0.25$ の場合、酸素欠損の導入された Supercell は12種類存在する。 $\delta = 0.25$ の場合、Fe の磁気秩序はストライプ型の反強磁性相(s-AF)を仮定し、V の磁気秩序は反強磁性相(酸素欠損のある場合は、フェリ磁性相)を初期値として使用し、最安定な酸素欠損位置を得た。酸素欠損位置による内部エネルギーの変化を Fig. 1 に示す。酸素欠損の導入とともに、V と Fe の磁気モーメントはいずれも増加することが非経験的に示された。この計算結果は、実験で得られた相図と定性的には矛盾しない。

参考文献

- 1) 平松秀典, 神原陽一, 透明酸化物機能材料の開発と応用 監修 細野秀雄, 平野正浩 (CMC 出版, 東京, 2006) p. 71-93
- 2) A. Ishikawa, et al, J. Am. Chem. Soc. 124, 13547 (2002).
- 3) 神原陽一, 低温工学 52, 383-388 (2017).
- 4) X. Zhu, et al, Phys. Rev. B 79, 220512 (2009).
- 5) Y. Tojo, et al, arXiv:1802.03907 (2018).
- 6) P. E. Blöchl, Phys. Rev. B 50, 17953-17979 (1994).
- 7) G. Kresse and D. Joubert, Phys. Rev. B 59, 1758 (1999).

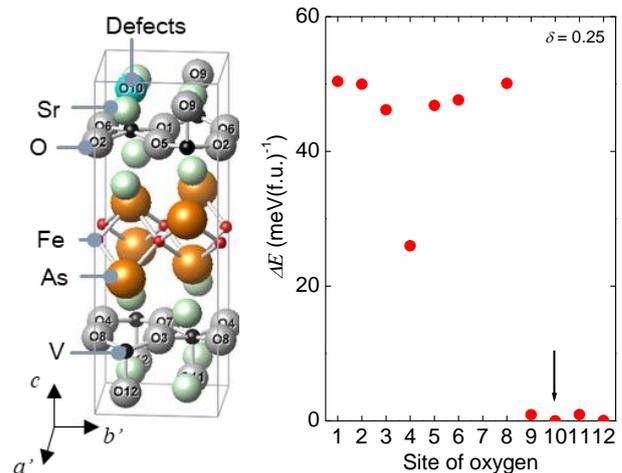


Fig. 1 The left shows a supercell structure of $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_{3-\delta}$. The right shows ΔE versus several site of oxygen deficiency.

Me²⁺Ti⁴⁺置換 Ba₁₂Fe₂₈Ti₁₅O₈₄ の作製と磁性

安田直生、柿崎浩一、神島謙二
(埼玉大学)

Synthesis and magnetic properties of Me²⁺Ti⁴⁺ substituted Ba₁₂Fe₂₈Ti₁₅O₈₄
N. Yasuda, K. Kakizaki, K. Kamishima
(Saitama Univ.)

1. 緒言

Ba-Fe-Ti 三元系酸化物は磁性と誘電性を併せ持つ材料として期待され、盛んに研究がなされている。

その中で Ba₁₂Fe₂₈Ti₁₅O₈₄ は 1991 年に Grey らによって発見されたペロブスカイト様構造とスピネル構造の積層によって記述できる単斜晶系の化合物である。¹⁾ この磁性と誘電性は Curecheriu らによって測定された。²⁾ しかし置換系についての報告はない。

そこで本研究では母物質である Ba₁₂Fe₂₈Ti₁₅O₈₄ と、Ti と Zn ないしは Co で置換した Ba₁₂Fe₂₈Ti₁₅O₈₄ の作製を試みた。

2. 実験方法

原料として BaCO₃, α-Fe₂O₃, TiO₂, ZnO もしくは CoO を用いて粉末冶金法により試料を作製した。これらの粉末を化学量論通りに Ba:Fe:Ti:(Zn or Co)=12:28-2x:15+x:x となるよう秤量し、1100 rpm で 10 分間、遊星ボールミルを用いて混合・粉砕した。得られた粉末をディスク状に成型し、1100~1400°C で 5 時間焼成した。作製した試料について粉末 X 線回折法(XRD)を用いて結晶構造を解析し、振動試料型磁力計(VSM)を用いて磁気特性を測定した。

3. 結果と考察

図 1 に異なる焼成温度(T_S)で作製した Ba₁₂Fe₂₈Ti₁₅O₈₄ の X 線回折図を示す。T_S=1100~1300°C では目的物が単相で得られた。しかし、T_S=1400°C では試料が融解し、BaFe₁₂O₁₉(BaM)が生成した。図 2 に作製した試料の飽和磁化と保磁力の焼成温度依存性を示す。単相試料は 12.5 emu/g の飽和磁化および 30~50 Oe の保磁力を示した。この値は文献値²⁾と一致する。焼成温度 1400°C で飽和磁化が大きく増加した。これは異相として飽和磁化の大きい BaM が生成したためだと考えられる。

図 3 に T_S=1300°C で作製した置換量 x の異なる Zn 置換系 Ba₁₂Fe_{28-2x}Ti_{15+x}Zn_xO₈₄ の X 線回折図を示す。Zn 置換系では x=2.5 まで単相で目的物を得ることができた。置換限界以上において異相として BaM, Ba₂Fe₂Ti₄O₁₃, 立方晶 BaTiO₃ が生成した。異相として生成した物質には 2 価金属が含まれないが、BaM 中において 2Fe³⁺→Me²⁺+Ti⁴⁺の置換により、2 価金属が含まれていることが考えられる。また、Co 置換系では x=3 まで単相で目的物を得ることができた。

4. 参考文献

- 1) I. E. Grey *et al.*, J. Solid State Chem., 91 (1991) 131.
- 2) L. P. Curecheriu *et al.*, J. Phys. D: Appl. Phys. 41 (2011) 435002.

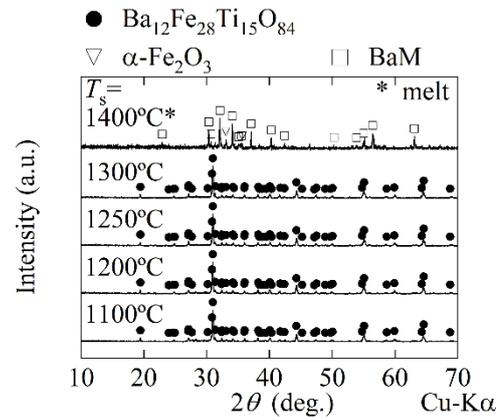


図 1 異なる焼成温度で作製した Ba₁₂Fe₂₈Ti₁₅O₈₄ の X 線回折図

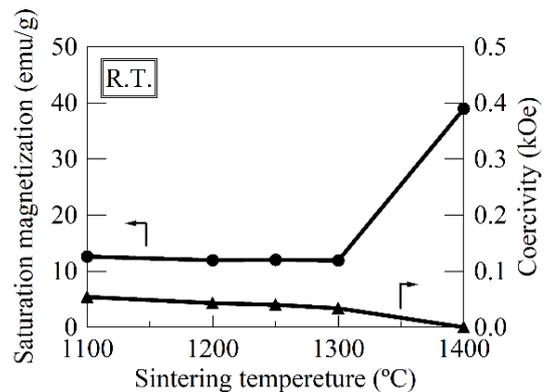


図 2 Ba₁₂Fe₂₈Ti₁₅O₈₄ の飽和磁化と保磁力の焼成温度依存性

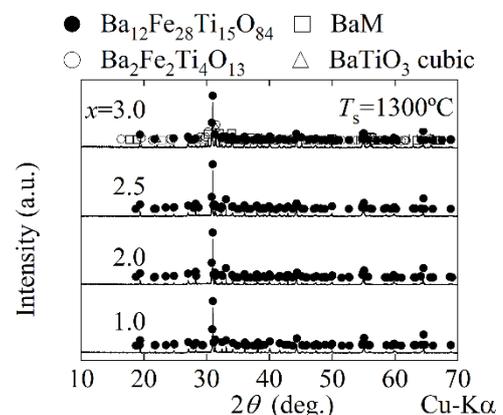


図 3 Ba₁₂Fe_{28-2x}Ti_{15+x}Zn_xO₈₄ の X 線回折図

CoFe₂O₄/Pb[Zr,Ti]O₃ 積層膜の磁気-電気効果

中尾 翔陽, 神島 謙二, 柿崎 浩一
(埼玉大学 大学院 理工学研究科)

Magnetoelectric effect on CoFe₂O₄ / Pb[Zr,Ti]O₃ multi-layered thin films

S. Nakao, K. Kamishima, K. Kakizaki

(Graduate School of Science and Engineering, Saitama University)

はじめに

マルチフェロイック材料の中には磁気-電気(ME)効果を発現するものがあり、盛んに研究されている¹⁾. この現象を応用したデバイスとして多値メモリー、磁気センサーなどが考案されている²⁾. 本研究では、磁気歪みを生じる強磁性体として CoFe₂O₄(CFO)を、圧電体として Pb[Zr,Ti]O₃(PZT)を選択し、これらを rf スパッタ法により積層膜とすることで、その ME 効果について調べたので報告する.

実験方法

試料は rf スパッタ法によって作製した. ターゲットには Ti, Pt, CFO および PZT 円板(各 76 mm^φ)を使用した. チャンバー内を 8.0×10⁻⁷ Torr 以下に排気後, Ar ガスを導入して 10 mTorr とし, 基板加熱は行わず, 合成石英ガラス基板上に, Ti 層 20 nm および Pt 層 100 nm を連続で成膜した. その後, Pt 電極にマスクを取り付け, 再度, チャンバー内を 8.0×10⁻⁷ Torr 以下に排気後, Ar ガス圧を 10 mTorr とし, CFO 層を 50 nm 堆積した後, 大気中 800°C で 5 時間熱処理を行った. この CFO 層上に前述の条件で PZT 層を 200 nm, CFO 層を 50 nm 連続で成膜し, 最終的な熱処理を大気中 600 および 700°C で 5 時間行った.

得られた薄膜の結晶構造は X 線回折法(XRD)により解析した. また, ME 効果の測定は, 分極処理を行った試料を用い, 直流磁場および交流磁場を膜面に対し垂直に印加し, 誘起電圧をロックインアンプにより測定した

結果および検討

Fig. 1 は, 600 および 700°C で熱処理した CFO/PZT/CFO 積層膜の X 線回折図を示す. 両試料において CoFe₂O₄ 相および Pb[Zr,Ti]O₃ 相からの回折線が現れており, 目的とする PZT と CFO の積層膜が得られた. また, いずれの試料も, CoFe₂O₄ 相の {1 1 1} 面が膜面内に配向した膜となる. これは, 下部電極の Pt 層に対して CFO 層がエピタキシャル的に成長したためである. 一方, Pb[Zr,Ti]O₃ 相の (1 1 1) 面の回折線は, Pt 相 (1 1 1) 面の回折線と重なっており確認できないが, (1 0 1) および (1 1 0) 面の回折線がわずかに認められることから Pb[Zr,Ti]O₃ 相は結晶化しており, その (1 1 1) 面が膜面内に配向していると推察される.

Fig. 2 は, これらの試料の ME 係数の直流磁場依存性を示す. 最大 ME 係数は, 600 および 700°C で熱処理した試料においてそれぞれ 328 および 697 mV/cm・Oe であった. また, 700°C で熱処理した試料では, 600°C で熱処理した試料に比べ低磁場から ME 係数が増大し始める. これは, 界面の結合がより強固となり小さい歪みが伝わりやすくなったためである.

参考文献

- 1) N. A. Spaldin, M. Fiebing : Mater. Sci., 309 (2005) 391.
- 2) J. Zhou, H. He, Z. Shi, C. Nan : Appl. Phys. Lett., 88 (2006) 013111.

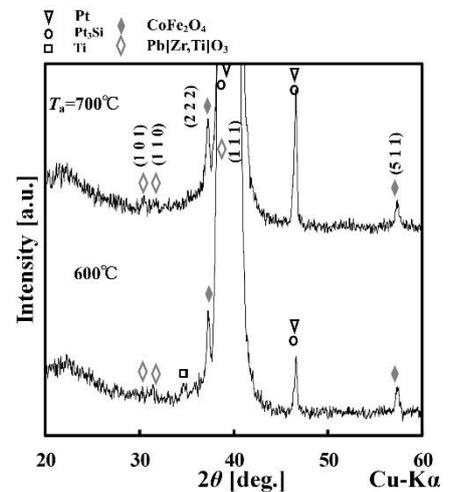


Fig. 1 XRD patterns of the CFO/PZT/CFO multi-layered films annealed at 600 and 700°C in air.

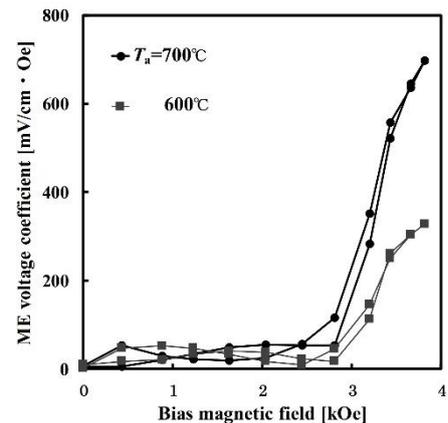


Fig. 2 DC magnetic field dependence of ME coefficients for the CFO/PZT/CFO multi-layered films annealed at 600 and 700°C in air.

反応性パルス DC スパッタリング法による $(\text{Bi}_{1-x}\text{La}_x)(\text{Fe},\text{Co})\text{O}_3$ 強磁性・強誘電薄膜の高品位作製とその磁気および誘電特性

M. Kuppan¹, 山本 大地¹, 吉村 哲^{1,2}

(¹秋田大, ²JST さきがけ)

Fabrication of highly qualified $(\text{Bi}_{1-x}\text{La}_x)(\text{Fe},\text{Co})\text{O}_3$ multiferroic thin films by using a pulsed DC reactive sputtering method and its magnetic and dielectric properties

M. Kuppan¹, D. Yamamoto¹, and S. Yoshimura^{1,2}

(¹Akita Univ., ²JST PRESTO)

はじめに 強磁性・強誘電材料は、電場(E)による磁化(M)の方向制御、磁場(H)による電気分極(P)の方向制御が可能とされていることから、革新的な次世代電子材料として研究が活発化してきている。電圧駆動型の磁気デバイスに本材料を使用する場合、高信号出力化などの観点から高い飽和磁化 (M_s)、高集積化などの観点から垂直磁気異方性 ($H_{k\perp}$)、などの磁気特性が求められる。しかしながら、これまで検討されてきた強磁性・強誘電材料の多くは、強誘電材料に磁性元素をドーピングすることで強磁性を発現させてきた場合が多く、また良好な強誘電特性を維持する観点からそのドーピング量を抑制してきた結果、大きな M_s および明確な $H_{k\perp}$ を有する材料はほとんど報告されていない。著者がこれまで注目してきた $(\text{Bi}_{1-x}\text{Ba}_x)\text{FeO}_3$ 強磁性・強誘電材料について、酸化物や窒化物の薄膜の、高速成膜化・高成膜電圧化・アーク放電の抑制、に効果的な反応性パルス DC スパッタリング法を用いて薄膜成膜した結果、RF マグネトロンスパッタリング法で成膜していたこれまでの薄膜よりも高品位な薄膜が得られ、これまで得られていた値の 1.5 倍程度の大きな M_s (90 emu/cm^3) が得られた²⁾。しかし、その薄膜の磁化容易方向は薄膜面内であり、その保磁力は 2–3 kOe 程度と、磁気デバイス応用には適していなかった。本研究では、 $(\text{Bi}_{1-x}\text{Ba}_x)\text{FeO}_3$ 以外にも強磁性・強誘電性が確認されている材料、 $(\text{Bi}_x\text{A})(\text{Fe},\text{Co})\text{O}_3$ ($\text{A}=\text{La}^3, \text{Nd}^4, \text{Gd}^3$) の中から $(\text{Bi},\text{La})(\text{Fe},\text{Co})\text{O}_3$ に着目し、反応性パルス DC スパッタリング法を用いて、その高品位薄膜の作製を行い、磁気および誘電特性を調べた。

方法 $(\text{Bi}_{1-x}\text{La}_x)(\text{Fe}_{0.75}\text{Co}_{0.25})\text{O}_3$ ($x=0.44\sim 0.69$) (BLFCO) 薄膜(膜厚 300 nm)を、反応性パルス DC スパッタリング法を用いて、熱酸化膜付き Si 基板上に Ta(5 nm)/Pt(100 nm)の下地層を成膜した後、積層膜として作製した。積層膜は、Ta を室温、Pt を 300°C、BLFCO を 600°C、の基板温度で成膜した。スパッタリングターゲットには、La-Fe-O 粉末、Fe 粉末、Co 粉末を焼結させて作製した導電性ターゲットに Bi シートを配置したものをを用いた。反応性パルス DC スパッタリング法におけるパルス条件として、周波数を 50~250 kHz の範囲で変化させ、電力は 150 W、デューティー (ON:OFF) 比は 2:1 の一定値とした。作製した積層膜の構造解析は、X線回折装置(XRD)により、磁気測定は、振動試料型磁力計(VSM)により、誘電測定は、BLFCO 積層膜の最表面に Pt ドット状電極($\phi 100 \mu\text{m}$)を成膜した後に、強誘電体特性評価システムにより行った。

結果 Fig.1 に、反応性パルス DC スパッタリング法を用いて作製した BLFCO 薄膜の飽和磁化および保磁力の、Bi に対する La 置換量依存性を示す。保磁力に関しては、薄膜面内方向と垂直方向の両方の値を示している。最大の M_s が得られる時の La 置換量(60%程度)において、薄膜面内方向および垂直方向の両方で大きな保磁力が得られ、かつ垂直方向において明瞭に大きな保磁力が得られた。VSM 測定において印加磁界方向を薄膜面内方向から垂直方向まで変化させて磁化曲線を測定した結果、BLFCO 薄膜の磁化容易方向は完全に垂直方向であった。また、図中に示すように、本 BLFCO 薄膜において、原点对称性が良く明瞭なヒステリシスを有する P - E 曲線が得られており、良好な強誘電特性も得られている。これまで報告されている La ドープ BiFeO_3 薄膜では実現されなかった優れた磁気特性が得られた要因は、高いエネルギーを有するスパッタ粒子が離散(パルス)的に基板に到達することで、粒子の基板表面での拡散が促進し、結晶性の良い薄膜が得られたことによると考えられる。

参考文献 1) D. Pelleymounter et al., 2014 Soc. Vac. Coat., 57th Annual Technical Conference Proceedings, Chicago, USA. 2) 吉村 第 41 回日本磁気学会学術講演概要集, 19pA-15. 3) K. G. Yang et al., J. Appl. Phys., 107, 124109 (2010). 4) F. Huang et al., Appl. Phys. Lett., 89, 242914 (2006). 5) P. Suresh et. Al., Mater. Sci. Eng., 73, 012082 (2015).

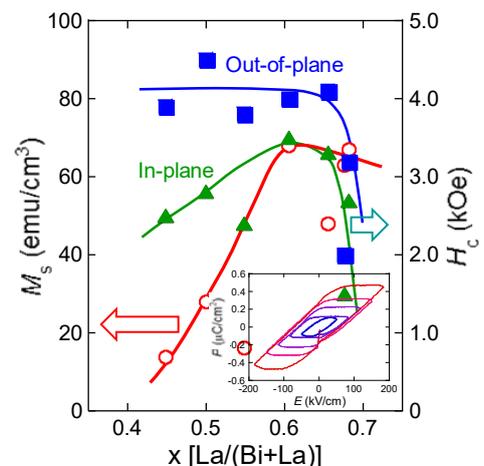


Fig. 1 Dependence of M_s and H_c on La concentration of $(\text{Bi}_{1-x}\text{La}_x)(\text{Fe},\text{Co})\text{O}_3$ thin films fabricated by pulsed DC reactive sputtering method. P - E curves of $(\text{Bi}_{0.41}\text{La}_{0.59})(\text{Fe},\text{Co})\text{O}_3$ thin film is also shown in this figure.

近赤外域での磁性多層膜への表面プラズモン励起条件

○斉藤 伸, 大木 敬介, 赤羽 浩一, 内田 裕久* (東北大学, *豊橋技術科学大学)

Condition of surface plasmon resonance in near-infrared region for magnetic multilayer film

S. Saito, K. Ooki, K. Akahane and H. Uchida* (Tohoku Univ. *Toyohashi Univ. Tech.)

1. はじめに

磁気センサは空間の磁界の大きさや方向を検出するデバイスである。所望の周波数帯において高い検出感度や必要なダイナミックレンジを達成するために、様々な磁界効果を測定原理とするデバイスが提案され、実用化されている。中でも光をプローブとしたセンサは検出部を小型にでき、真空中、液中、あるいは光ファイバを用いて狭空間中での磁界のセンシングが可能となるため注目されている。簡素な光学系によりセンサを構成するためには、偏光変化ではなく光の強度変化を用いることが有効であり、我々は強磁性/非磁性多層膜 (GMR 多層膜) やグラニューラ膜等に現れるマグネトリフラクティブ効果 (MRE) に注目している。MRE の先行研究は、理論報告は 1995 年以降¹⁾、実験報告は 2002 年以降²⁾ から散見される。しかしながら、実験者の主な興味が磁気抵抗素子の MR 曲線の非接触計測にあったため、MRE 増強についての材料・層構成についての検討は十分になされていない。著者らは、零磁場での反平行配列を確実に実現できる Co/Ru 磁性多層膜の MRE を検討し^{3,4)}、反射型で 0.3% 程度の MRE が得られることを報告した⁵⁾。今回は表面プラズモン共鳴 (SPR) を励起することで MRE 増強を試みた。本講演ではまず近赤外域での SPR 条件について説明する。

2. 実験結果

まず Au 薄膜の近赤外域での SPR 条件を計算した。Fig. 1 には膜厚 20 nm の Au 薄膜について、クレッチマン配置の際の P 偏光反射率の入射角依存性を、波長 250 nm から 1750 nm まで計算してマップ状に示した。挿入図は波長 1550 nm における反射率の入射角依存性であり、マップ内の破線に対応する。入射角依存性によると赤外域での SPR 吸収にともなう反射率の極小 (ディップ) は可視光域よりも鋭く観察されることがわかる。Au の膜厚についても検討したところ、波長 1550 nm では膜厚 20 nm 程度でディップが最も深くなり、波長が長くなるほどディップが深くなる膜厚が薄くなることが確認された。これは試料内での伝導電子の散乱損失が増大し SPR が弱められる結果である。

続いて SPR 強励起のための Au 層と磁性層との積層構造を検討した。Fig. 2 (右) には、Fig. 2 (左) の層構成の試料・セッティングにおける、波長 1550 nm の P 偏光を入射した場合の SPR 共鳴角でのディップの深さ $100-R_{\min}$ を種々の Au 層膜厚 x , z に対して計算した結果を示した。磁性層部分の層構成を Co(4 nm)/ Ru(0.7 nm)/ Co(4 nm) とした場合 ($N=1$)、 $x < 10$, $z = 0$ で深いディップが現れることがわかる。このディップの深さは、多層膜の N 数を大きくするほど浅くなり低膜厚側へとシフトした。以上の計算の結果から、1550 nm で SPR を強励起するためには、磁性層を可能な限り薄くし、空気側に 10 nm 以下の薄い Au 層を設ける層構成が有効であると見積もられた。

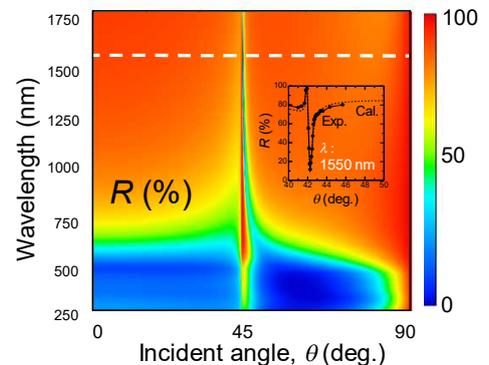
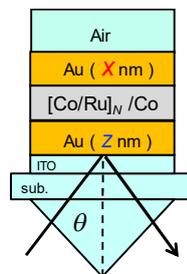


Fig. 1 P-pol. reflectivity map of a Au(20 nm) film with the Kretschmann configuration plotted against wavelength and incident angle.

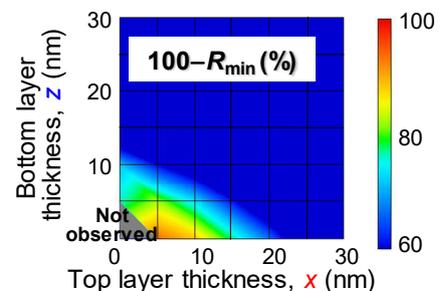


Fig. 2 (Left) Kretschmann configuration and stacking structure for reflectivity calculation. (Right) dip depth plotted against Au thicknesses, x and z for Au(x nm)/ Co(4 nm)/ Ru(0.7 nm)/ Co(4 nm)/ Au(z nm)/ ITO(2 nm)/ glass sub.

- 参考文献 1) J. C. Jacquet et al., *MRS*, **384**, 477 (1995).
 2) V. G. Kravets et al., *PRB*, **65**, 054415 (2002). 3) H. Sato et al., *IEEJ Trans. on Fund. and Mater.*, **136**, 174 (2016).
 4) K. Ooki et al., *41th Ann. Conf. Magn. Soc. Jpn.*, 19Pa-02.
 5) S. Saito et al., *41th Ann. Conf. Magn. Soc. Jpn.*, 19Pa-01.

表面プラズモン励起による Co/Ru 多層膜の 近赤外マグネトリフレクティブ効果の増強

○齊藤 伸, 大木 敬介, 赤羽 浩一, 内田 裕久* (東北大学、*豊橋技術科学大学)

Enhancement of NIR magneto-refractive effect for Co/Ru multilayer film by surface plasmon resonance

S. Saito, K. Ooki, K. Akahane and H. Uchida* (Tohoku Univ. *Toyohashi Univ. Tech.)

1. はじめに 強磁性/非磁性多層膜 (GMR 多層膜) で観測される反射型配置におけるマグネトリフレクティブ効果 (MRE) は、強磁性層の磁化配列に対応して反射光に強度変化が現れるため注目されている。しかしながら報告されている光量変化は 1550 nm で 0.3 % 程度と小さく、実際にアプリケーションに展開するためには MRE の材料および層構成の検討をさらに深める必要がある。一般に磁性多層膜における MRE は伝導電子のスピンの依存散乱によりもたらされる効果であると理解されている。そこで著者は MRE を増強する方策として伝導電子の集団運動の共鳴現象である、表面プラズモン共鳴 (SPR) を磁性多層膜に励起することを考えた。本講演では、近赤外域での MRE について SPR での増強現象を実測するとともに、スピン依存散乱を現象論的に扱った拡張ドルーデモデルに基づく誘電率解析により本現象を評価した結果を報告する。

2. 実験結果 Fig. 1 に Co(4 nm)/ Ru(0.7 nm)/Co(4 nm) 磁性多層膜にプラズモン励起層として Au(10 nm) のキャップ層を設けた試料をクレッチマン配置した際の、波長 1550 nm の P 偏光反射率の入射角依存性を示す。グラフの周囲には典型的な入射角における反射率磁気履歴曲線を示した。磁界は試料面内で光の進行方向と垂直方向に印加した。全反射臨界角 A では磁気光学効果は認められないが、B および D では横カー効果、C では MRE が支配的に観測されている。このことは磁性多層膜の磁化状態 (右向き/左向き、平行/反平行) を入射角の選定により判定できることを示している。横カー効果が発現しない SPR 共鳴角 C に注目し、MRE の SPR による増強効果について解析した。Fig. 2 上段に Au キャップ層膜厚を変化させた試料の MRE ($\Delta R/R$) をプラズモン励起強度 (ディップの深さ) に対してプロットした結果を示す。Au キャップ層膜厚を 30 nm から 4 nm まで薄くして SPR を強く励起すると、MRE は 1.8 % まで増大した。これは R の低下 (副軸参照) だけでなく ΔR の増加との相乗効果でもたらされたものである。磁性多層膜の部分を一層膜近似し、この層での伝導電子の平均散乱時間 τ_{SAL} 、平均スピン依存散乱係数 β_{SAL} を誘電率解析により求めた結果が Fig. 2 下図である。磁性多層膜の部分は Co(4 nm)/ Ru(0.7 nm)/Co(4 nm) で一定であるにもかかわらず、Au キャップ層の膜厚を 10 nm 以下にしていくと β_{SAL} が著しく増強していく様子がわかる。SPR 条件では伝導電子が膜厚方向の反電界を感じて集団運動をおこすことを考慮すると、 β_{SAL} の増大は個々の伝導電子の積層方向の運動成分が増加し多層膜中でのスピン依存散乱の頻度が高くなる結果もたらされたものと推察している。

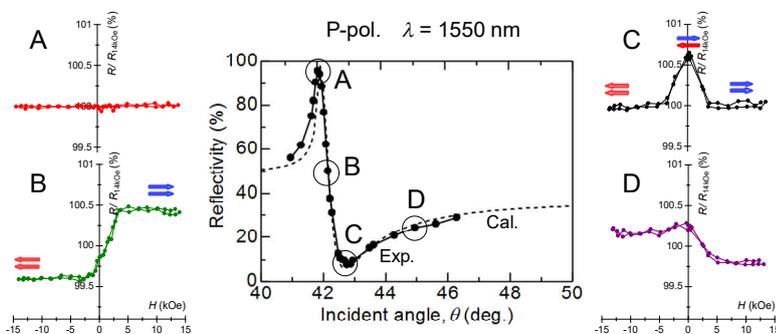


Fig. 1 Incident angle dependence of P-pol. reflectivity at 1550 nm for a Au(10 nm)/ Co(4)/ Ru(0.7)/ Co(4)/ ITO(2)/ sub. film with the Kretschmann configuration. Surrounding graphs are reflectivity hysteresis loops at (A) critical angle of total reflection, (B) intermediate angle between A and C, (C) SPR angle and (D) larger angle than C, respectively.

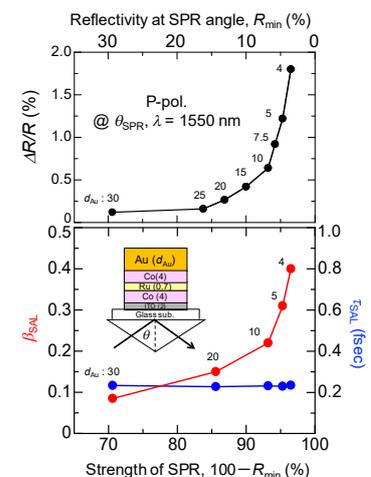


Fig. 2 (Upper) MRE and (lower) β_{SAL} and τ_{SAL} as a function of strength of SPR, $100 - R_{\text{min}}$ for Au(d_{Au} nm)/ Co(4)/ Ru(0.7)/ Co(4)/ ITO(2)/ sub. film with the Kretschmann configuration at the θ_{SPR} with $\lambda = 1550$ nm.

CeF₃ 単結晶の光軸に垂直な方向の Faraday 効果の正確な測定

朝日透、中川鉄馬*、チョウコン
(早稲田大学、*神奈川産技総研、**物材機構)

Accurate measurement of Faraday effect of CeF₃ single crystal in the direction perpendicular to its optic axis
Toru Asahi, *Kenta Nakagawa, Kun Zhang
(Waseda Univ., *KISTEC)

はじめに

近年、光通信や材料加工の分野において、レーザー光の発振強度の不安定の原因となる戻り光を遮断するため、磁場印加により発現する偏光面の回転 (Faraday 回転, FR) を利用した光アイソレータ材料の研究が盛んである。一方、既存の旋光計や円二色性分散計といった光学測定装置では、直線複屈折 (LB) や直線二色性 (LD) といった光学的異方性が発現する方向の FR の測定は不可能であったため、これまで、FR の研究が立方晶系結晶、異方性結晶の光軸方向、及びアモルファス材料に限定されていた。したがって、FR を利用した光学素子である光アイソレータの開発は、等方性材料以外はほとんど無視されてきた。

一方、我々が独自に開発してきた一般型高精度万能旋光計 (Generalized-High Accuracy Universal Polarimeter, G-HAUP) は、異方性媒質における光学活性、自然円二色性, LB, 及び LD の同時スペクトル測定が可能な光学測定装置である [1-3]。本装置の試料室に、光の伝搬方向に平行ないし反平行な外部磁場を印加出来る磁石を導入すれば、異方性材料の FR, 磁気円二色性 (MCD), LB, 及び LD の同時スペクトル測定が可能になると考えられる。

そこで、本研究では、*P-3c1* に属する一軸結晶である CeF₃ 単結晶の光軸 (*c* 軸) 方向及び光軸に垂直な (*a* 軸) 方向の FR, MCD, LB, 及び LD スペクトルを G-HAUP により測定することとした。

実験結果

磁場は測定試料を一組 (2 個) の Nd-Fe-B (NIB) 磁石で挟むことにより印加し、その大きさは 0.5 T であった。CeF₃ 単結晶の *c* 軸及び *a* 軸方向の LB, LD, FR, 及び MCD スペクトルを Fig. 1 に示す。*c* 軸及び *a* 軸方向の FR (Verdet constant: *V*) は、観測された波長領域で正であり、その大きさはほぼ等しかった。この結果は、*c* 軸及び *a* 軸方向の磁気感受率の大きさがほぼ等しいという SQUID による測定結果と一致する。

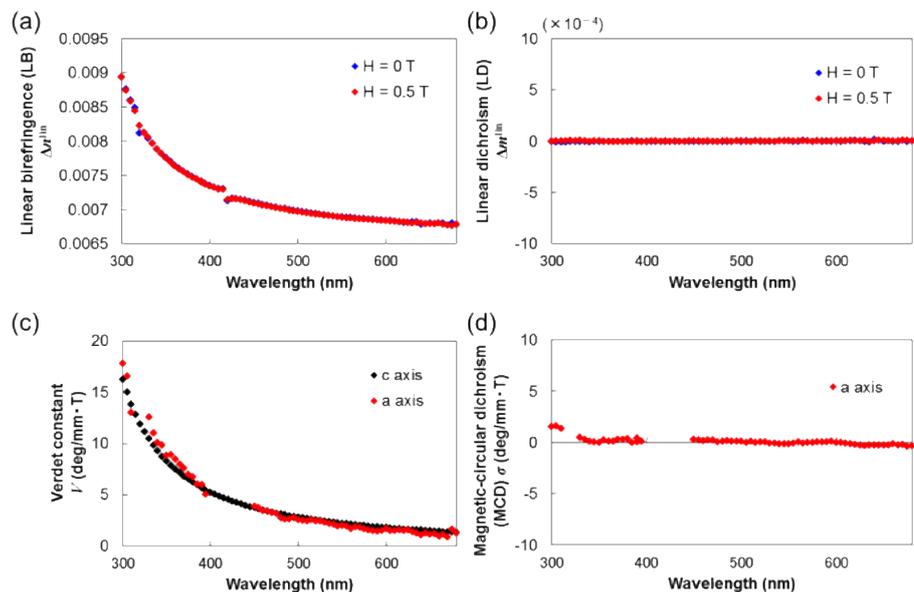


Fig.1 Wavelength dependences of LB (a), LD (b), *V* (c), and MCD (d) of CeF₃ single crystal along the *c* and *a* axes

参考文献

- (1) J. Kobayashi, T. Asahi, M. Sakurai, M. Takahashi, K. Okubo, Y. Enomoto, *Phys. Rev. B*, **53**, 11784 (1996).
- (2) M. Tanaka, N. Nakamura, H. Koshima, T. Asahi, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **45**, 175303 (2012).
- (3) A. Takanabe, M. Tanaka, K. Johmoto, H. Uekusa, T. Mori, H. Koshima, T. Asahi, *J. Am. Chem. Soc.*, **138**, 15066 (2016).

$R_{0.5}Bi_{2.5}Fe_5O_{12}$ (R = Eu, Sm, Pr) 薄膜の作製と評価

西川雅美¹、相場遥佳¹、浦川諒大¹、木村優太¹、藤枝崇周¹、山本匠¹、婁庚健¹
河原正美²、石橋隆幸¹

(¹長岡技術科学大学、²(株)高純度化学研究所)

Preparation and characterization of $R_{0.5}Bi_{2.5}Fe_5O_{12}$ (R=Eu, Sm, Pr) thin films.

M. Nishikawa¹, H. Aiba¹, R. Urakawa¹, Y. Kimura¹, T. Fujieda¹, T. Yamamoto¹, G. Lou¹,
M. Kawahara², T. Ishibashi¹

(¹Nagaoka Univ. of Tech., ²Kojundo Chem. Lab.)

はじめに

Biを置換した希土類鉄ガーネットは、磁場分布を可視化する磁気光学イメージングに利用されている。これまでに、我々は、MOD法により、希土類元素がY、Ndである高濃度Bi置換鉄ガーネット膜の作製に成功し、それらは優れた磁気光学効果を示すことを明らかにしてきた^{1,2)}。今後、更なる高感度化や高周波特性に優れた磁気光学素子の実現には、Bi置換希土類鉄ガーネットの磁気異方性を制御することで、ファラデー回転角の外部磁場依存特性の緻密に調整することが求められる。本研究では、誘導磁気異方性に関する逆磁歪効果に着目して、Y、Ndと磁歪定数の異なる希土類元素として、Eu、Sm、Prを選出し、これらの元素置換が、磁気光学特性に及ぼす影響について調査した。

実験

GGG (111)基板に、各組成のMOD溶液((株)高純度化学製)をスピコートし、100°Cで10分間乾燥した後、450°Cで10分間仮焼成を行った。この工程を5回繰り返した後、各温度(650~710°C)で本焼成を行い、Bi希土類鉄ガーネット薄膜($R_{0.5}Bi_{2.5}Fe_5O_{12}$: R=Eu, Sm, Pr)を得た。得られた薄膜は、波長520~530 nmにおけるファラデー回転角の磁場依存性を測定した。

結果と考察

Fig. 1に、希土類にEu、Sm、Prを用いたBi置換磁性ガーネット薄膜のファラデー回転角の磁場依存性を示す。比較のため、GGG (111)基板上に成膜したNdガーネット薄膜の結果も示す。いずれの希土類を用いた場合でも、Ndの場合に匹敵する大きなファラデー回転角が得られることと、ヒステリシスの形状から111方向が磁化容易軸であることがわかった。また、Ndガーネットと比べて、Eu、Sm、Prガーネットのヒステリシスループの傾きは緩やかになり、保磁力は大きくなる傾向が見られた。ヒステリシスの形状の違いは、磁歪定数の違いによる影響が考えられる。磁歪定数の λ_{111} 符号は、Prは不明であるが、NdとSmは負、Euは正である。そのため、GGG (111)とガーネット膜の間の格子不整合や熱膨張係数の違いによる歪みについても今後調べる必要がある。一方、保磁力が大きくなったことについては、結晶性の違いが影響している可能性もあるため、今後、薄膜作製条件の最適化が必要である。

以上から、これまで報告のない希土類(Eu、Sm、Pr)を用いたBi置換磁性ガーネットに関して作製に初めて成功し、Ndと同程度のファラデー効果が得られること、磁気異方性を制御できる可能性が示された。

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

参考文献

- 1) M. Sasaki et al., Jpn. J. Appl. Phys., 55 (2016) 055501.
- 2) G. Lou et al., Optical Mat. Exp., 7 (2017) pp.2248-2259.

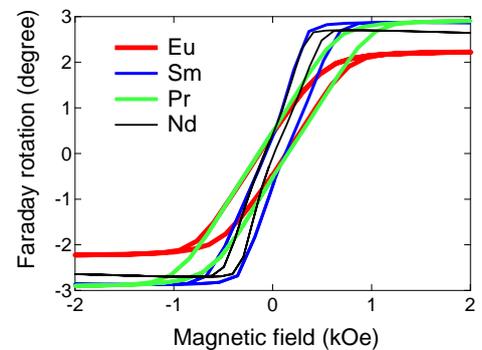


Fig. 1 Faraday hysteresis loops of the garnet films.

強磁性・強誘電薄膜の電気磁気効果測定に向けた (Bi_{1-x}La_x)(Fe,Co)O₃ 薄膜の磁気光学特性の評価

吉村 哲^{1,2}

(¹秋田大, ²JST さきがけ)

Evaluation of magneto-optical properties of (Bi_{1-x}La_x)(Fe,Co)O₃ thin films
for the measurement of electromagnetic effect of multiferroic thin films

S. Yoshimura^{1,2}

(¹Akita Univ., ²JST PRESTO)

はじめに 近年、磁気モーメントの電圧駆動に関する研究が盛んになってきており、新しい低消費電力磁気デバイスの実現が期待されている。報告例が多い代表的な研究に、1. 圧電材料と磁歪材料との積層体を用いる、2. トンネル磁気抵抗積層膜を用いる、3. 反強磁性・強誘電(BiFeO₃)薄膜と磁性薄膜との積層膜を用いる、4. 反強磁性・常誘電(α -Cr₂O₃)薄膜と磁性薄膜との積層膜を用いる、などが挙げられる。著者も、単相で強磁性・強誘電特性を有する薄膜を用いた、電界印加のみによる磁化反転の検討を行っている¹⁾。以上のような現状から、磁気モーメントの電圧駆動方式は、将来性のある新規かつ有効なものと位置付けられていることが明白である。しかしながら、作製した薄膜試料の特性評価では、振動試料型磁束計(VSM)や給電プローバ付きの強誘電テスターを使用し、磁気特性 (M (磁化)- H (磁界)曲線)と強誘電特性 (P (電気分極)- E (電界)曲線)が別々に評価されているに過ぎず、電圧駆動型の磁気デバイスの実用可能性を正しく検証するためには、その特徴ある現象: 電気磁気効果特性 (M - E 曲線: 磁化の電界応答) の評価を行うことが必要不可欠であるが、それを直接評価した報告はほとんど無い。本研究では、磁気 Kerr 効果測定機構と強誘電テスターとを組み合わせることで新規に構築を試みている、これまでに無かった、磁化の電界応答を測定する『電気磁気効果特性評価装置』を完成させることを最終目的とし、強磁性・強誘電薄膜の磁気光学特性の評価を行った。

構想 Fig.1 に、『電気磁気効果特性評価装置』の模式図を示す。強磁性・強誘電薄膜の下地層を兼ねる下部電極と強磁性・強誘電薄膜上に成膜した 100 μm 径の ITO (導電・透明) 上部電極に給電プローバを当てて強磁性・強誘電薄膜に電界を印加しながら、磁気 Kerr 効果測定のための偏光レーザーを上部電極部分に当ててその下部に位置する強磁性・強誘電薄膜の磁化を測定するものである。

検討事項 BiFeO₃ 系の強磁性・強誘電薄膜において、その光磁気特性の詳細はほとんど調べられていない。光磁気特性が不明である限り、『電気磁気効果特性評価装置』における磁気 Kerr 効果測定機構の仕様を確定させることができない。よって、本研究では、電圧駆動型の磁気デバイスに適用できる可能性のある、大きな磁化および垂直磁気異方性が得られた (Bi_{0.41}La_{0.59})(Fe_{0.75}Co_{0.25})O₃ (BLFCO) 強磁性・強誘電薄膜²⁾ において、その光磁気特性を調べた。

結果 Fig.2 に、BLFCO 強磁性・強誘電薄膜における、磁気 Kerr 回転角および楕円率のレーザー波長依存性を示す。あわせて、本薄膜における、VSM を用いて測定した磁化曲線 (薄膜面内および垂直) と極 Kerr 効果測定装置 (レーザー波長: 658 nm) を用いて測定した磁化曲線も示す。いずれの光磁気特性検出方法においても、650 から 700 nm までの波長領域において、非常に大きな値が得られたが、磁気 Kerr 回転角においては極性が変化する様子も見られた。これらの変化は干渉によるものと考えられる。以上より、BLFCO 強磁性・強誘電薄膜は、優れた光磁気特性を有する可能性があるものの、その電気磁気効果を正しく測定するためには、磁気 Kerr 効果測定機構において、適切なレーザー波長および検出方法を選択する必要があることが判った。

参考文献 1) S. Yoshimura et al., Magn. Soc. Jpn., 42, 11-14 (2018). 2) 吉村, 他 第 42 回日本磁気学会学術講演概要集, 発表予定。

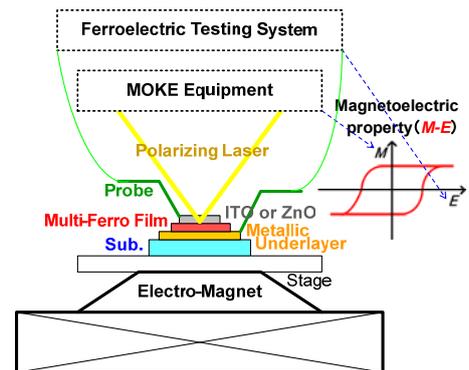


Fig.1 Schematic diagram of a new system for measurement of electromagnetic effect.

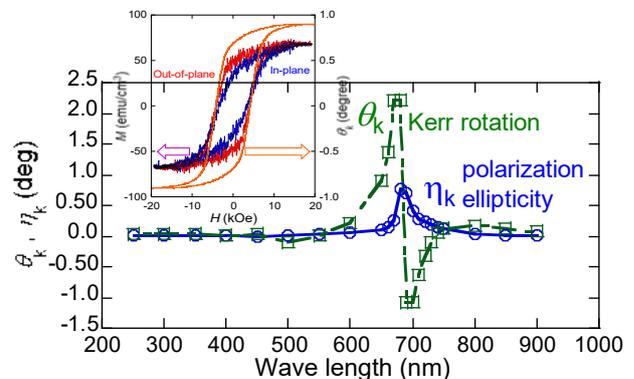


Fig.2 Dependence of θ_k and η_k on wavelength of polarized laser for BLFCO film. M - H curves (out-of-plane and in-plane) and θ_k - H curve are also shown.

Application of MEMS Magnetic Sensors for MedTech Innovation

Jian LU*, Ryutaro MAEDA

National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST),
Namiki 1-2-1, Tsukuba, Ikaraki, 305-8564, Japan

(*Corresponding Author email: jian-lu@aist.go.jp; Tel: 029-849-1180)

In recent days, the advances of MEMS technology enable mass production and commercialization of ultra-small and low-power MEMS magnetic sensor with ultra-high sensitivity of a few μT . Besides explosive growth in smart phone applications, those ultra-sensitive MEMS magnetic sensors are believed extremely important for medical technology innovations due to inherent characteristics of the magnetic field to human body.

Towards real time imaging of human organs during medical surgeries for organ excision or tumor care, i.e. laparoscopic hepatectomy, we have been engaged in developing a high-resolution location tracking system by using artificial magnetic field and 3D MEMS magnetic sensor nodes for years. In this talk, fundamental principle of the system will be presented and demonstrated. Our preliminary results indicated that location resolution of a few mm can be achieved when multi-pairs of electrical magnetics were applied to create a unique magnetic field, in which both DC and AC signals were combined for noise cancellation as well as for rotation recognition. Our experimental results also suggested that mapping of the whole magnetic field, as an extension of simulation, may greatly improve positioning accuracy. Besides stability and repeatability, many other specifications of the system were investigated and discussed in details.

In addition, a few other examples of using MEMS magnetic sensors will be given and discussed herein. Related works on integration and assembly of ultra-compact wireless implantable sensor nodes for animal monitoring as well as its wireless power supply system will be introduced too for better understanding technical issues for practical application of above technologies in MedTech Innovations.

Development of high-sensitive and wide-range linear magnetic field sensor

M. Masuda^{1,2}, Y. Moriyasu², Y. Ando¹

¹Tohoku University, 6-6-05 Aoba-yama, Sendai Miyagi 980-8579, Japan

²R&D center, Asahi Kasei Microdevices Corp., 3050 Okata, Atsugi Kanagawa 243-0021, Japan

Recently, there are increasing interests in high sensitive magnetic sensors from a view point of application to biomagnetic sensing and non-destructive analysis. For example, pT level or smaller value of magnetic detectivity is required for the detection of electrical activities in brain and heart. Spin-valve TMR sensor is one of the candidates to realize such high performance at room temperature without complicated equipment. High sensitive spin-valve TMR with bottom free layer structure has been reported^{1,2}. Nevertheless, in general, there are technical tradeoff between the magnetic sensitivity and the input range of the magnetic field.

In our study, an improved magnetic sensor structure with highly enhanced magnetic sensitivity has been developed by incorporating an optimally designed magnetic flux concentrators (MFC) with bottom free structured TMR. Also excellent linearity with wide input range has been successfully obtained by using magnetically balanced closed-loop system.

Figure 1 shows transfer functions of the magnetic sensor with MFC and that without MFC. The magnetic sensitivity is enhanced over 87 times larger than that without MFC. In order to make such high sensitivity compatible with wide input range, we utilized magnetically balanced closed loop system. The linearity of the closed loop sensor is better than $\pm 0.1\%$ F.S. (Fig.2) in the range as much as $\pm 100\ \mu\text{T}$, which is larger than the earth magnetic field. Figure 3 shows a sensor output signal spectrum in which an input sine wave signal of 354 pT rms at 10 Hz is detected with sufficient SNR.

This sensor device structure explained above is envisioned to become a key technology in realizing the magnetic sensing of pT level.

- 1) K. Fujiwara et al, Journal of Applied Physics, 111 (2012) 07C710
- 2) K. Fujiwara et al, Japanese Journal of Applied Physics, 52 (2013) 04CM07

Acknowledgement

The success of this sensor development owes much to helpful supports from and valuable discussions with Dr.Oogane and Dr.Fujiwara of Tohoku University.

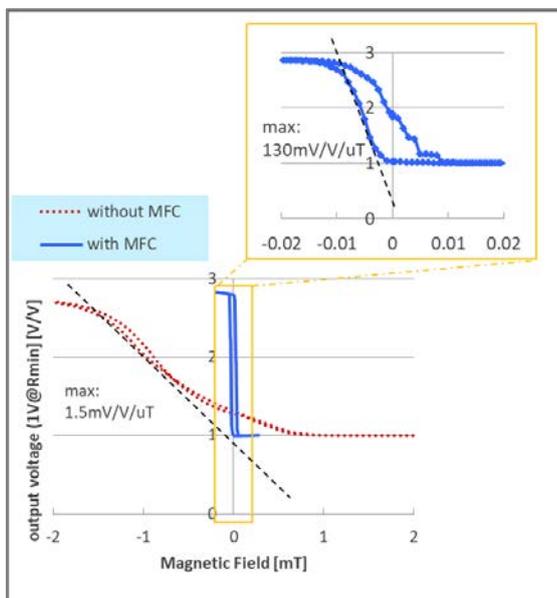


Fig. 1 transfer functions of the magnetic sensor

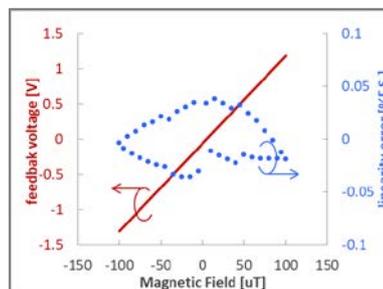


Fig. 2 Feedback voltage and linearity error

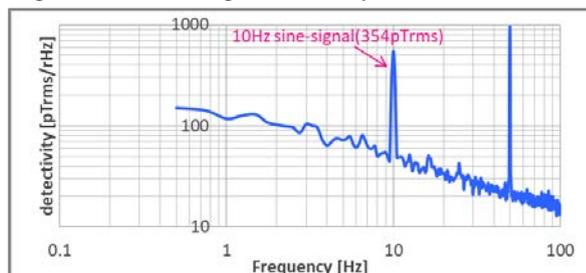


Fig. 3 Spectrum of the sensor output signal with 10Hz sine wave input

Magnetic Sensors for Automobile

Takamoto Furuichi¹, Masahiro Yoshimura¹, Ryuichiro Abe¹, Michihiro Makita²,
Mikihiko Oogane³, Takafumi Nakano³, Takahiro Ogasawara³, Masakiyo Tsunoda⁴, and Yasuo Ando³
(DENSO CORP. Sensor & Semiconductor Process R&D Div.¹, Semiconductor Sensor Engineering Div.²,
Tohoku Univ. Department of Applied Physics³, Tohoku Univ. Department of Electronic Engineering⁴)

Magnetic Sensors for Automobile

In order to address the enhancement of emission regulations, “Electronicization of cars” including electronic control of engines has progressed rapidly and many semiconductor sensor devices have been adopted in automobile. Magnetic sensors, for detecting the rotation angle of Cam and Crank, the position of accelerator pedal, the speed of vehicle / wheel, and the current of battery etc., are mounted about 10 or more pieces in a car, and the quantity of them are increasing. In the future, electric vehicles such as PHEV/EV will increase due to global fuel efficiency regulations and EV strategy of European automobile manufacturers, and the amount of current sensors for inverters and/or EV batteries are expected to grow drastically.

The needs for these current sensors are

- 1) Miniaturize ; To correspond the space reduction due to increasing the number of battery cells
- 2) High precision ; To use up batteries for extending the EV cruising distance
- 3) High current detection : To drive the motor with high current.

In general, Hall sensor is used as magnetic detecting devices for automotive current. It has a magnetic yoke to improve sensitivity and noise tolerance¹. Others, shunt resistance device and a flux gate device are used as more accurate detection applications. However, these devices have a disadvantage that the size is large.

Current Sensor using MTJ Element²

Therefore, we aimed to productionize the small (yokeless) and high precision current sensors, we developed the new type current sensors which detect the magnetic field without yoke using with the high sensitive magnetic tunnel junction (MTJ) element. To realize the high accuracy, we need to reduce the nonlinearity to 0.1% FS or less. In addition, currents to be monitored may be as large as 1,000A, it is estimated that the magnetic sensors should have a dynamic range as wide as the order of 1,000Oe.

For these reasons, we adopted a structure which have in-plane magnetized free layer and perpendicularly magnetized reference layer, compared to the conventional MTJ sensors which have in-plane magnetized free and reference layer of CoFeB / MgO / CoFeB MTJ. In reference layer, we applied the synthetic antiferromagnetic (SAF) structure due to the high exchange bias, the wide dynamic range of +/-2,500Oe. In free layer, in order to optimize the anisotropic magnetic field, we investigated the thickness dependence of it. When the thickness is 1.8 nm or more, it becomes in-plane magnetization, and when the film thickness becomes thick, the slope of minor $G - H$ curve decreases, it is equivalent to the decreasing the sensor sensitivity. This is consistent with the minor $G - H$ curve calculated by the Slonczewski model³. As the result, we achieved the nonlinearity <0.1% FS within $\pm 1,000$ Oe.

Reference

- 1) M. Kato, nikel BP Car Electronics p127 (2014)
- 2) T. Nakano, *et al.*, Appl. Phys. Lett. 110, 012401 (2017)
- 3) J. C. Slonczewski, Phys. Rev. B 39, 6995 (1989)

A multi-channel SQUID system for biomagnetic measurements

¹Yoshiaki Adachi, ²Shigenori Kawabata

(1. Applied Electronics Laboratory, Kanazawa Institute of Technology;

2. Department of Advanced Technology in Medicine, Tokyo Medical and Dental University)

Biomagnetic measurement is a promising tool to investigate electrical activities in a living body noninvasively. A weak magnetic field induced from nerves or muscles is detected by highly sensitive magnetic flux sensors, and magnetic source analysis reconstructs the electrophysiological current distribution.

Superconducting quantum interference devices (SQUIDs) are typically applied to the detection of the biomagnetic signals whose intensity is on the order of 10^{-15} – 10^{-12} T. The structure of the SQUID is a superconductor ring with a single or two Josephson junctions, consisting of two superconductors sandwiching a thin insulating or normal conducting layer to form a weak link. When a bias current larger than the critical current is applied to the ring, the SQUID induces a voltage (V). The voltage is modulated periodically depending on a magnetic flux (Φ) applied to the SQUID ring. The period is exactly equal to the magnetic flux quantum. This gives a large differential coefficient ($dV/d\Phi$) that contributes to highly sensitive magnetic flux detection. The SQUID is connected to a flux-locked loop (FLL) [1] to linearize its output and improve its dynamic range. The flux quanta counting [2], thanks to the periodic characteristics of the Φ -V curve of the SQUID, also broadens the dynamic range. The SQUID sensors are usually equipped with a superconducting gradiometric pickup coil to cancel external magnetic flux disturbances. These make it possible to detect cardiac biomagnetic fields outside of a magnetically shielded room [3].

We developed a SQUID biomagnetic measurement system intended for the spinal cord, peripheral nerves, and muscles [4]. The system had two main characteristic features. The first one was the sensor array equipped with 44 vector-type gradiometric magnetometers arranged in an area of 110 mm \times 160 mm. The vector-type gradiometric magnetometer was composed of one axial-type and two planar-type gradiometric pickup coils combined into a single bobbin. Each pickup coil was coupled with three individual SQUIDs and oriented perpendicular to each other so that three independent components of magnetic fields, not only the radial component but also the components tangential to the body surface, could be detected simultaneously. This is effective to extract the magnetic field information maximally from the narrow observation area, such as a neck or wrist. The second characteristic feature was the uniquely shaped cryostat to keep the SQUID sensors in their superconducting state. The cryostat had a cylindrical main body to reserve liquid helium (LHe) and a protrusion from its side surface. The sensor array was installed along the upper side in the protrusion so that the magnetic field could be detected from the bottom of the target pillowed on the protrusion. The cool-to-warm separation at the sensor array was approximately 10 mm.

Our SQUID system was equipped with closed-cycle helium recondensation using a pulse tube cryocooler [4]. In the past, high operational cost because of the LHe consumption to keep the superconducting state of the sensors prevented conventional SQUID systems from becoming widespread. However, the closed-cycle helium recondensation allowed us to recycle almost 100% of the LHe, so our SQUID system continued to be in operation for more than nine months without refilling the LHe, and the operational cost of the system was drastically reduced.

Using the SQUID system, we had already corrected spinal cords' or peripheral nerves' biomagnetic data from more than one hundred subjects. Neural current distributions were reconstructed from the obtained biomagnetic data using spatial filter analysis. Propagation of the neural signals along spinal cords or peripheral nerves was clearly visualized as a transition of the reconstructed current distribution. It was indicated that clinically significant information can be obtained by our SQUID system [5].

References

- 1) D. Drung, R. Cantor, M. Peters, H.J. Scheer, and H. Koch: *Appl. Phys. Lett.*, **57**, 406 (1990).
- 2) D. Drung: *Supercond. Sci. Tech.*, **16**, 1320 (2003).
- 3) K. Kobayashi, M. Yoshizawa, D. Oyama, and Y. Uchikawa: *IEEE Trans. Mag.*, **50**, 5001003 (2014).
- 4) Y. Adachi *et al.*: *Supercond. Sci. Tech.*, **30**, 063001, (2017).
- 5) S. Sumiya *et al.*: *Sci. Rep.*, **7**, 2192, (2017).

Recent developments on magnetoimpedance sensor

Tsuyoshi Uchiyama

Graduate school of engineering, Nagoya University, Nagoya 464-8603, Nagoya, Japan

Sensitive micro magnetic sensors referred to as MI sensors¹⁾ are based on magnetoimpedance (MI) effect in amorphous wires and CMOS IC electronic circuits providing a sharp-pulse excitation. Micro sized mass production MI IC chips for electronic compasses have been supplied since 2002 for mobile phones and since 2010 for smart phones. Making use of ultra-low intrinsic magnetic noise in amorphous wires, pico-Tesla (10^{-8} Oe) resolution had been realized for developed MI sensor, in which several hundred turns pick-up coil was used for signal detection.

For measuring extremely weak magnetic field such as a bio-magnetic field, it is necessary for canceling the background uniform noises such as geomagnetic field. We have developed a gradiometer based on the MI sensor. The gradiometer is composed of a pair of MI elements: a sensing element and a reference element with distance between elements of 3 cm. The gradiometer has a good linearity and a high sensitivity of 1.2×10^5 V/T even for no amplification (Fig.1). The sensitivity difference in two heads is within 1%. As shown in Fig. 2, the noise level of the gradiometer is approximately $2 \text{ pT/Hz}^{1/2}$ at 1Hz. We have also demonstrated bio-magnetic field measurement using the high performance MI gradiometer²⁾⁻³⁾.

Three principal advantageous features of the amorphous wire MI sensor in summarized are follows.

- 1) Sub-millimeter size sensor head is realized with a high sensitivity of several nT resolution. Utilizing this advantage, 3-axis electronic compass chips having $10 \text{ }\mu\text{m}$ diameter amorphous wire heads are in producing; those are compatible with the advanced integrated circuitry for smart phones.
- 2) Ultra high sensitivity with a resolution of 1 pT without any magnetic shielding in a portable type MI sensor operating at room temperature have been realized.
- 3) Ultra quick response for magnetic field signal detection will be useful for micro size wireless receiver application.

References

- 1) K. Mohri, Y. Honkura, L. V. Panina, T. Uchiyama, Journal of Nanoscience and Nanotechnology, **12**(2012), 7491.
- 2) K. Wang, S. Tajima, D. Song, N. Hamada, C. M. Cai, T. Uchiyama, J. Appl. Phys., **117**(2015), 17B306.
- 3) T. Takiya and T. Uchiyama, IEEE. Trans. Mag., **53**(2017),4002804.

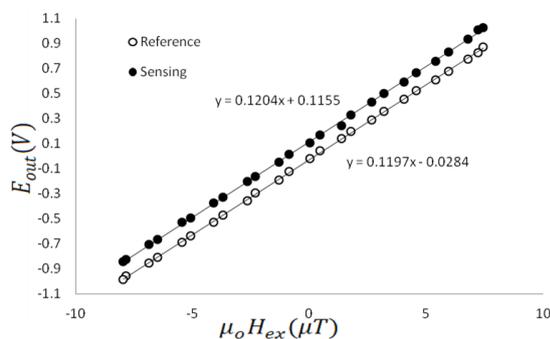


Fig.1 Field detection characteristics of the MI gradiometer. Number of turns of the pick-up coil is 600 and the length of the wire is 1 cm.

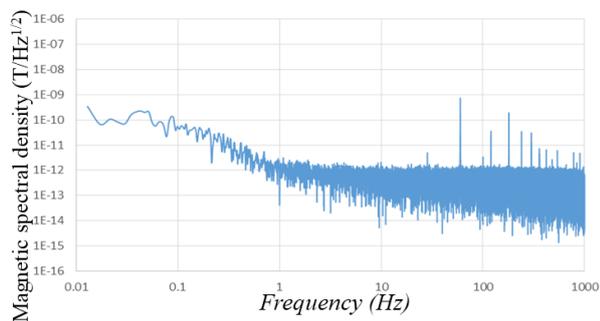


Fig.2 Magnetic noise spectral density of the MI gradiometer.

Measurement of Magnetoencephalography and Magnetocardiography using Tunnel Magneto-Resistance Sensor

K. Fujiwara¹, M. Oogane¹, A. Kanno², M. Imada³, J. Jono³, T. Terauchi³, T. Okuno³, Y. Aritomi³,
K. Hashimoto³, M. Morikawa³, M. Tsuchida³, N. Nakasato⁴, and Y. Ando¹

¹Department of Applied Physics, Graduate School of Engineering, Tohoku University, Sendai 980-8579, Japan; ²Department of Electromagnetic Neurophysiology, Tohoku University School of Medicine, Sendai 980-8575, Japan; ³Konicaminolta, Inc., Hachioji, Tokyo 192-8505, Japan; ⁴Department of Epileptology, Tohoku University School of Medicine, Sendai 980-8575, Japan)

The electrical activity of the tissue of the human body creates magnetic field. Measurement of biomagnetic fields such as magnetoencephalography (MEG) and magnetocardiography (MCG) is useful for elucidation of biological functions and diagnosis of diseases from its non-invasiveness and high spatial resolution. However, such measurements requires the use of SQUIDs with high equipment and running costs, especially the price of liquid helium. We have been studying to measure these biomagnetic fields using tunnel magneto-resistance (TMR) sensor which is a room temperature operating device. In this study, we performed MCG and MEG measurement using low noise, high sensitivity TMR sensor and circuit system.

The Magnetic Tunnel Junction (MTJ) multilayer film constituting the TMR sensor was deposited on a thermally oxidized Si substrate. MTJs were micro-fabricated by photolithography and Ar ion milling. To reduce the $1/f$ noise, MTJs were connected in 870 series and 2 parallel¹⁾; the size of the integrated TMR sensors was $7.1 \times 7.1 \text{ mm}^2$.

Fig. 1 shows the MCG signals using TMR sensor. The R peak of MCG was observed without averaging. This is the first demonstration of real-time MCG measurement using the TMR sensors. In addition, the Q and S peaks were clearly observed with 64 times averaging. Fig. 2 shows the MEG signal acquired by the TMR sensor. The signal was averaged 10,000 times with alpha wave as a trigger. Although there was a phase shift, the same 10 Hz signal as the brain wave was obtained in the MEG. The amplitude of the magnetic field was approximately 2 pTp-p, which is consistent with the reported value²⁾; the correlation coefficient of the MEG with the EEG was as high as 0.7 or more.

This work was supported by the S-Innovation program, Japan Science and Technology Agency (JST) and Center for Spintronics Research Network, Tohoku University.

Reference

- 1) K. Fujiwara et al., Jpn. J. Appl. Phys. 52 (2013) 04CM07
- 2) D. Cohen, Science 175 (1972) 664

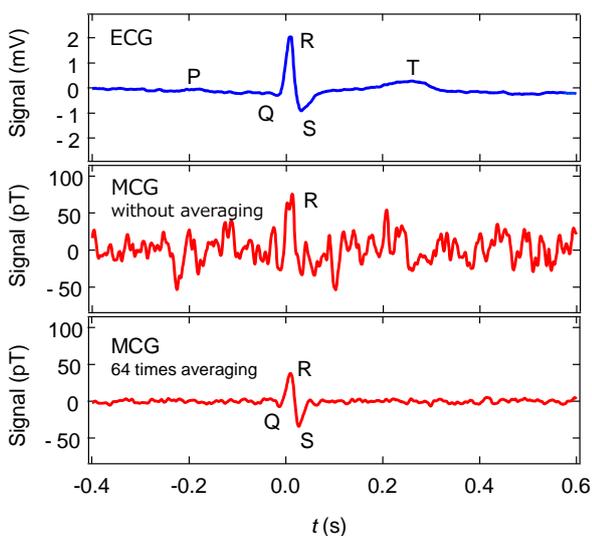


Fig. 1 Electrocardiography (ECG) and magneto-cardiography (MCG) using TMR sensor.

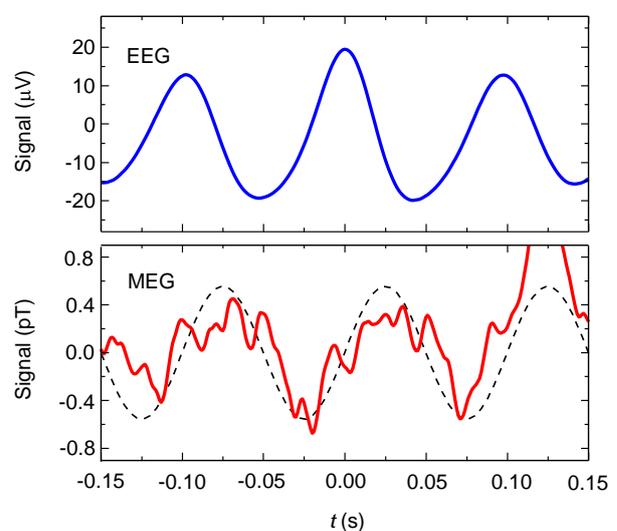


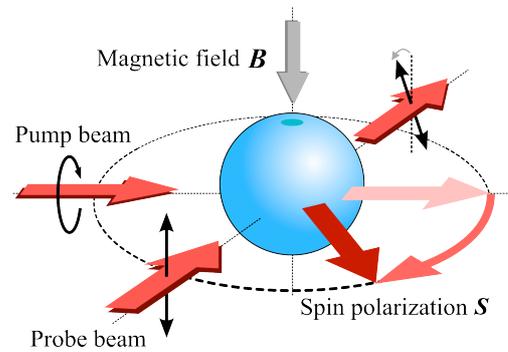
Fig. 2 Electroencephalography (EEG) and magneto-encephalography (MEG) using TMR sensor.

Optically Pumped Atomic Magnetometers: Perspectives for New Optical Biomagnetic Imaging Systems

Tetsuo Kobayashi

Graduate School of Engineering, Kyoto University, Kyoto 615-8510, Japan

In recent years, **optically pumped atomic magnetometers (OPMs)** operating under **spin-exchange relaxation-free (SERF)** conditions have reached sensitivities comparable to and even surpassing those of superconducting quantum interference devices (SQUIDs) [1-3]. OPMs are based on the detection of electron spin precession in alkali-metal atoms contained in glass cells. In the pump-probe arrangement as shown in the right figure, a circularly polarized pump laser beam and a linearly polarized probe laser beam crossed orthogonally in the center of the glass cell including vaporized alkali-metal atoms. At present, the most sensitive OPM has sensitivity of $160 \text{ fT/Hz}^{1/2}$ in a gradiometer arrangement with a measurement volume of 0.45 cm^3 at the frequency range lower than 100 Hz. In addition, OPMs have the intrinsic advantage of not requiring cryogenic cooling. Therefore, OPMs are currently expected to overtake SQUIDs and the possibilities for using OPMs for biomagnetic field measurements and MRI have been demonstrated.



We have been developing OPMs with pump-probe arrangement since 2006 [3-6] and started to fabricate compact and portable potassium OPM modules in 2012 [7]. The figure at the bottom illustrates one of our OPM module reported in 2015 [8]. The sensitivity of the OPM module reached $21 \text{ fT/Hz}^{1/2}$ at 10 Hz, so that we carried out measurements of human magnetoencephalograms with it. Compared with the results obtained with SQUID-based magnetometers, we could successfully observe distinct features of event-related desynchronization in the 8-13 Hz (alpha) band associated with eyes open [8].

Meanwhile, we have also been challenging to detect NMR signals and MRI with OPMs [9] at ultra-low field (ULF) below several hundred μT . Since sensitivity of OPMs does not depend on frequency, OPMs are suitable to be used as receiving sensors for ULF-MRI systems. In 2017, for the first time, we have shown that MRI and NMR signals could be acquired with the same OPAM module described above operating at a Larmor frequency of 5 kHz without the use of any cryogenics [10].

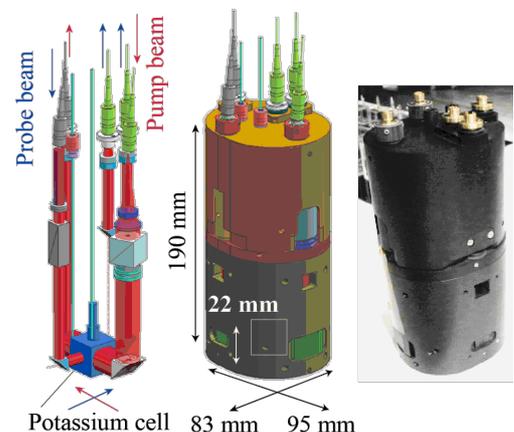
We believe that the applicability of new ultra-sensitive optical biomagnetic imaging systems might provide important advancements in neuroscience and also improve the clinical diagnosis of neurological and psychiatric disorders.

Acknowledgement

This work was supported by Grant-in-Aid for Researches (15H01813), MEXT, Japan as well as Grant Program through The Nakatani Foundation for Advancement of Measuring Technologies in Biomedical Engineering, Japan.

References

- 1) D. Budker and M. Romalis, *Nature Physics*, **3** (2007) 227-234.
- 2) I.K. Kominis *et al*, *Nature*, **422** (2003) 596-599.
- 3) T. Kobayashi, *Magnetics Japan*, **13**(3) (2018) 135-143.
- 4) Y. Ito *et al*, *AIP advances*, **2** (2012) 032127.
- 5) K. Kamada *et al*, *JJAP*, **54** (2015) 026601.
- 6) K. Nishi *et al*, *Optic Express*, **26**(2) (2018) 1988-1996.
- 7) K. Okano, *et al*, *Proc. of IEEE Sensors 2012* (2012) 239-243.
- 8) K. Kamada *et al*, *Optics Express*, **23**(5) (2015) 6976 -6987.
- 9) T. Oida *et al*, *J. of Magnetic Resonance*, **217** (2012) 100-108.
- 10) I. Hilschensch *et al*, *J. of Magnetic Resonance*, **274** (2017) 89-94.



Possibilities of Diamond Quantum Sensors

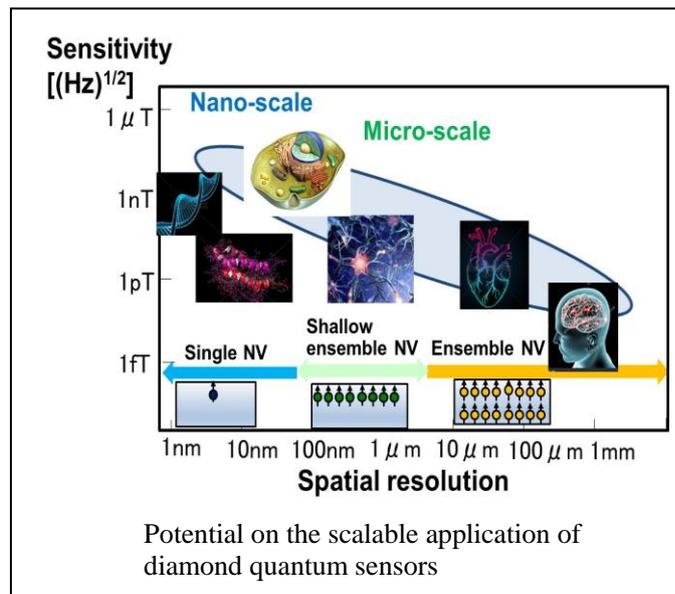
Mutsuko Hatano and Takayuki Iwasaki

(Department of Electrical Engineering, Tokyo Institute of Technology).

Ookayama, Meguro, Tokyo 152-8552, Japan

Phone: +81-03-3726-3999 E-mail: hatano.m.ab@m.titech.ac.jp

Nitrogen-vacancy (NV) centers in diamond have superior physical properties at room temperature for quantum sensing of magnetic field, electronic field, temperature, and pressure with scalable applications from atomic-scale to macroscopic range. We would like to introduce highly sensitive diamond sensors by applying advanced nano-device technologies, quantum sensing protocols and module system. For application, we will show the biological imaging, nano-scale NMR, and the device sensing. Advanced technologies for spintronics and electronics are needed for higher performance.



MBE法で作製した Co_2MnSi 薄膜のハーフメタル特性

大兼幹彦¹, A. P. McFadden², 福田健二¹, 角田匡清¹, 安藤康夫¹, C. J. Palmström²
(¹ 東北大学大学院工学研究科, ² University of California)

Half-metallic properties in Co_2MnSi thin film grown by molecular beam epitaxy
M. Oogane¹, A. P. McFadden², K. Fukuda¹, M. Tsunoda¹, Y. Ando¹, and C. J. Palmström²
(¹ Graduate School of Engineering, Tohoku University, ² University of California)

背景

室温でハーフメタル特性を示すと考えられるホイスラー合金に対する期待は大きい。特に Co 基のホイスラー合金を用いた強磁性トンネル接合や面直通電型巨大磁気抵抗(CPP-GMR)素子では、大きな磁気抵抗効果が観測されている。しかし、原理的にはさらに大きな磁気抵抗効果が得られるはずであり、さらなるハーフメタル特性の改善が求められている。本研究では、分子線エピタキシー(MBE)法を用いて高品質の Co_2MnSi ホイスラー合金薄膜を作製し、ハーフメタル特性の改善を目的として実験を行った。先行研究を参考にして、負の異方性磁気抵抗(AMR)効果¹⁾、および、小さい磁気緩和定数²⁾をハーフメタル特性の指標として用いた。

実験方法

MgO(001)単結晶基板上に、20 nm の MgO 下地層薄膜を電子ビーム蒸着により作製し、10 nm の $\text{Co}_{2-x}\text{Mn}_{1+x}\text{Si}$ ホイスラー合金薄膜を MBE 法で形成した。成膜時の温度は室温で、薄膜形成後に成膜チャンバ内で 600°C にて熱処理を行った。また、共蒸着により組成を制御し、 $x = -0.1 \sim 0.3$ の間で変化させた。作製した薄膜の結晶構造を X 線構造解析、磁気特性を SQUID で測定した。異方性磁気抵抗効果は微細加工によりホールバーを形成し、直流 4 端子法で測定した。また、磁気緩和定数は強磁性共鳴(FMR)を用いて測定した。

実験結果

薄膜の組成分析の結果から、作製した試料は若干設計値よりも Co リッチの組成であったが、MBE 法で組成制御ができていたことが分かった。X 線回折の結果から、 $x = 0.0-0.2$ の組成では、高い B2 規則度を有していることを確認した。また、飽和磁化がバルクと同程度の値が得られたことも、薄膜の規則度が高いことを示している。AMR 効果を測定した結果、すべての組成において負の AMR 効果が観測された。特に $x = 0.0-0.2$ の化学両論組成に近い試料では、従来のスパッタ法によって作製された Co 基ホイスラー合金の AMR 比に比べて、大きな AMR 効果が観測された。さらに磁気緩和定数を測定した結果、 $x = 0.0-0.2$ において小さな磁気緩和定数が観測された。特に $x = 0.1$ 組成では、0.0007 と金属磁性体の中では極めて小さい磁気緩和定数が得られた。本研究で得られた、大きな負の AMR 効果と非常に小さい磁気緩和定数を有する Co_2MnSi ホイスラー合金薄膜は、非常に良好なハーフメタル特性を有しているものと考えられる。

謝辞

本研究は、東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センター(CSRN)、JST S-イノベーションプロジェクト、および U.S. Department of Energy (DE-SC0014388)の支援を受けて行われた。

参考文献

- 1) Y. Sakuraba, S. Kokado, Y. Hirayama, T. Furubayashi, H. Sukegawa, S. Li, Y. K. Takahashi, and K. Hono, *Appl. Phys. Lett.* **104** 172407 (2014).
- 2) M. Oogane, T. Kubota, Y. Kota, S. Mizukami, H. Naganuma, A. Sakuma, and Y. Ando, *Appl. Phys. Lett.* **96** 252501 (2010).

Analysis of microstructure and transport properties in Mn_2CoAl Heusler alloy

Z.Chen, X.Xu, Y.Sakuraba, W. Zhou, J. Wang, T. Nakatani, K.Hono
(Research Center of Magnetic and Spintronic Materials, NIMS)

1. Introduction

A spin gapless semiconductor (SGS) is a new type of material in spintronics which is predicted to have a band gap in one of the spin channels and a zero band gap in the other, allowing novel spin transport functionalities such as carrier spin-polarization tunability by electric field [1]. Recently, various SGS materials have been reported in the group of Heusler compounds. Mn_2CoAl is most widely studied SGS material, which was reported to exhibit SGS-like behavior in a bulk sample [2]. However, such SGS-like properties have not been reproduced in thin films [3][4]. We have already noticed that the phase separation often happens in Mn_2CoAl thin films made by a sputtering method, therefore, we could not observe the transport properties arising from SGS such as low carrier density and positive MR ratio at low temperature. Since no one has ever investigated how the composition, atomic ordering and microstructure affect the transport properties in Mn_2CoAl , in this study we fabricated bulk Mn_2CoAl with different composition to carry out systematic investigation and find out what the critical factor to determine SGS properties is.

2. Experiment

Mn_2CoAl bulk alloy was prepared by arc melting Mn, Co, and Al high purity metals. The initial ratio of materials was Mn:Co:Al=50:25:25. The alloy buttons were annealed at 1100°C for 72h, then quenched in ice water. According to the result of ICP, the composition of the bulk was determined to be $Mn_{47.1}Co_{27}Al_{25.9}$ (at%), the Mn is less than stoichiometry. XRD is used to detect the structure. Conventional Van der Pauw method was used to measure temperature dependence of electric resistance, Hall effect and MR ratio in bulk MCA by PPMS. Microstructure of the samples was carefully investigated by SEM, TEM, 3D atom probe and EDS.

3. Results and Discussion

XRD result shows a diffraction pattern arising from single phase MCA and clear (111) super lattice peak, suggesting the presence of either $L2_1$, $D0_3$ or XA ordering. Curie temperature was 827K, which did not change by annealing. Temperature dependence of resistivity shows semiconducting behavior. The carrier density as $2.17 \times 10^{22} cm^{-3}$ at 10K, and $2.73 \times 10^{22} cm^{-3}$ at 300K, are much higher than reported for a bulk (10^{17}) and a thin film (10^{20}). The result of MR ratio has the similar trend as the reported for the bulk [4], positive at low temperature. However, the MR ratio was only 0.12% at 10K, which is much lower than the reported previously, 5% at 40K. According to the 3D atom probe map and TEM analysis, the annealed sample contained nanoscale Mn-rich second phase, while the matrix is Mn_2CoAl having inverse Heusler structure. Therefore, the observed transport property cannot be attributed to the single phase SGS.

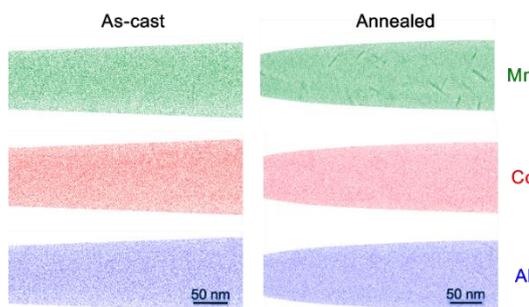


Fig.1 3D atom probe map of the samples before and after annealing.

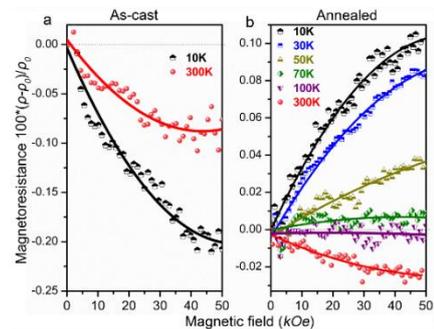


Fig.2 MR ratio measured at different temperature

Reference

- 1) X. L. Wang, PRL 100, 156404 (2008).
- 2) Michelle E. Jamer et al., Appl. Phys. Lett. 103, 142403 (2013).
- 3) G. Z. Xu et al., Appl. Phys. Lett. 104, 242408 (2014)
- 4) S. Ouardi et al., Phys. Rev. Lett. 110, 100401 (2013)

CoVMnAl 合金の原子配列と電子状態

梅津理恵、福島鉄也*、齊藤耕太郎**、小野寛太**、黒田文彬*、小口多美夫*、石垣徹***
(東北大、*阪大、**高エネ研、***茨城大)

Atomic configuration and electronic state for CoVMnAl alloy

R.Y. Umetsu, T. Fukushima*, K. Saito**, K. Ono**, F. Kuroda*, T. Oguchi*, T. Ishigaki***
(Tohoku Univ., *Osaka Univ., **KEK, ***Ibaraki Univ.)

はじめに

近年、様々な4元素系ホイスラー合金がハーフメタル型電子状態やスピンギャップ半導体(SGS)型電子状態を有することが第一原理計算において報告されている¹⁻³⁾。これらの合金の電子状態は原子配列や規則度に影響されると考えられるが、合金が電子散乱因子の近い元素から構成されている場合、粉末X線回折測定から結晶構造を精密に決めることは困難である。本研究では、CoVMnAl合金の多結晶試料を作製して粉末中性子回折測定を行い、原子の配列を決定するとともに、その構造について電子状態の計算を行った。

実験方法

CoVMnAl多結晶試料は高周波浮揚溶解(レビテーション溶解)により作製し、1473 Kにて2日間均一化熱処理を施した後、水中に急冷して得た。規則-不規則相変態温度を調べるために示差走査熱量(DSC)測定を行い、その結果を基に時効熱処理温度を決定した。磁化測定はSQUID磁束計を用い、粉末中性子回折測定は、J-PARCのBL20に設置されている茨城県材料構造解析装置(iMATERIA)を用いて飛行時間法(TOF)により行い、解析にはZ-Codeを用いた^{4,5)}。

実験結果

ICP発光分光分析法により、得られた合金試料の組成はCo-26.7, V-26.1, Mn-22.1 and Al-25.1 at.%であることが確認された。Fig. 1に500 Oeの磁場中で測定した熱磁化曲線を示す。内挿図は5 Kにおける磁化曲線である。試料はそれぞれ1323 K、または873 Kにて時効熱処理を施して急冷した。磁化曲線より得た自発磁化の値を単位砲当たりの磁気モーメントに換算すると、それぞれ0.15、0.04 μ_B /f.u.と非常に小さく、高い温度から急冷して得た試料の方が値がやや大きい。熱磁化曲線の温度微分において極小値をキュリー温度と定義すると、それぞれ48 K, 11 Kであった。Fig. 2は室温で測定を行った、873 Kより急冷して得たCoVMnAl合金の粉末中性子回折測定による回折パターンである。LiMgPdSn型構造として解析を行うと、実験で得られた回折パターンは全く説明がつかず、空間群225の $L21_b$ 型構造とした場合に最も良く実験結果が再現された。この場合の電子状態は、ハーフメタル性は維持されるものの、8cサイトのCoとMnの不規則化によりSGS型の電子状態の特徴は損なわれていた。

参考文献

- 1) X. Dai *et al.*, J. Appl. Phys. 105 (2009) 07E901.
- 2) G. Z. Xu *et al.*, Euro. Phys. Lett. 102 (2013) 17007.
- 3) K. Özdoğan *et al.* J. Appl. Phys., 113 (2013) 193903.
- 4) R. Oishi *et al.*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 600 (2009) 94.
- 5) R. Oishi-Tomiyasu *et al.*, J. Appl. Cryst. 45 (2012) 299.

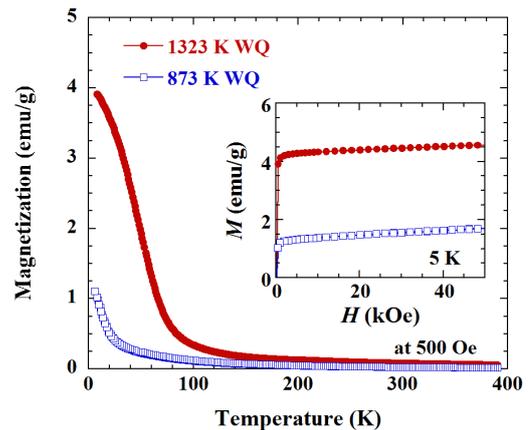


Fig. 1 Thermomagnetization and magnetization curves for the CoVMnAl specimens obtained by the annealing at 1323 K and 873 K.

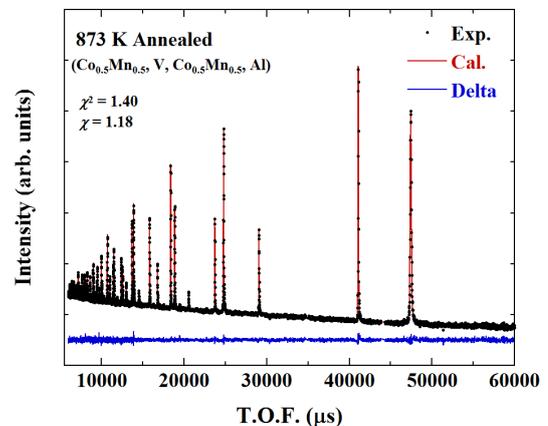


Fig. 2 Powder neutron diffraction pattern of the CoVMnAl specimen annealed at 873 K.

Large MR ratio in epitaxial $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}/\text{Cu}/\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ current-in-plane giant magnetoresistive devices

K.B. Fathoni^{1,2}, Y. Sakuraba¹, T. Sasaki¹, T. Nakatani¹, K. Hono¹
¹National Institute of Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan
²University of Tsukuba, Tsukuba 305-8577, Japan

Current in-plane giant magnetoresistance (CIP-GMR) is a classical magnetoresistive effect, which had been utilized as read heads for HDD. After tunnel magnetoresistance (TMR) became major interest in spintronics, the research on CIP-GMR has become obsolete. However, CIP-GMR is worth to be revisited for a highly sensitive magnetic field sensor because of its advantages such as small low frequency noise and small bias voltage dependence of MR ratio unlike TMR devices. A serious drawback of CIP-GMR is low MR ratio compared to TMR devices, at most 29% in the trilayer device by using the specular reflection technique [1]; thus the enhancement of MR ratio will expand the possibility of CIP-GMR for various sensor applications. Although the spin-dependent scattering at the ferromagnetic layer/non-magnetic spacer interface is essential in CIP-GMR, the relationship between magnetotransport properties and interfacial microstructure in epitaxially grown CIP-GMR have not been systematically studied so far. Therefore, in this study, we fabricated epitaxial and poly-crystalline CIP-GMR devices having different crystalline orientation and interfacial lattice matching to investigate their transport property and microstructure systematically.

A multilayer stack of $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}(6)/\text{Ag}(t)$ or $\text{Cu}(t)/\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}(6)/\text{IrMn}(8)/\text{Ta}(3)$ (thickness in nm) was deposited onto $\text{MgO}(001)$ single-crystalline substrate using ultrahigh magnetron sputtering system and then annealed at 250°C under 3 kOe constant magnetic field to obtain the exchange bias by IrMn. The thicknesses (t) of the Cu and Ag spacers were varied from $t = 0 - 5$ nm. Figure 1 shows t dependence of MR ratio. As t decreases, MR ratio increases until two $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ layers are coupled ferromagnetically. Interestingly, the device with Cu spacer having a large lattice mismatch with $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ (lattice misfit $\sim 10\%$) shows larger MR ratios up to 25% at room temperature compared to those with a Ag spacer with a smaller lattice mismatch with $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ (lattice misfit $\sim 2\%$). Figure 2 shows temperature dependences of MR ratio and ΔR of the CIP-GMR devices with Cu and Ag spacers. As temperature decreases, the MR ratio of both samples increases. On the other hand, ΔR increases with decreasing temperature in the device with a Cu spacer while ΔR decreases in the sample with a Ag spacer. If we assume the same spin-dependent bulk scattering in $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ between two samples, this result suggests a spin-dependent scattering at the $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}/\text{Cu}$ interface enlarges with decreasing temperature.

Reference

- 1) M. Seigler, IEEE Trans. Magn., **43** (2007) 651.

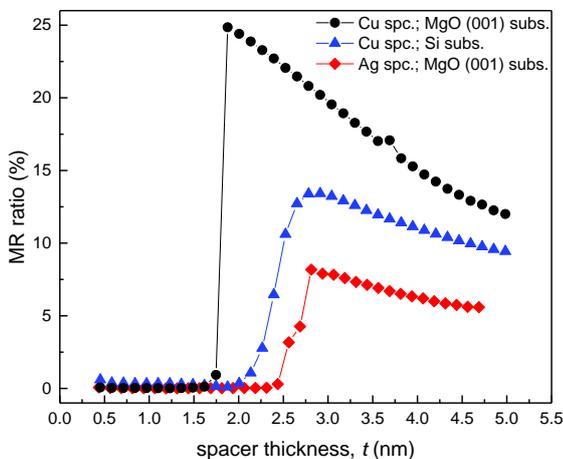


Figure 1. Spacer thickness (t) dependence of MR ratio.

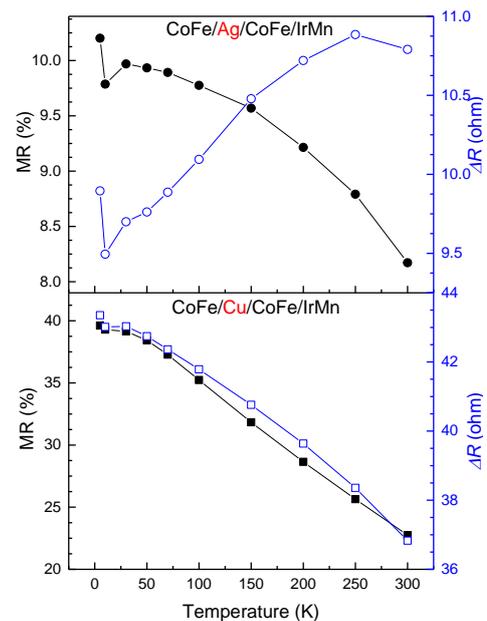


Figure 2. Temperature dependences of MR ratio and ΔR with Ag and Cu spacers.

非化学量論組成 MBE 法で成長した CoFeVSi エピタキシャル薄膜の磁性および磁気伝導特性

小林慎也¹, 山田晋也^{1,2}, 浜屋宏平^{1,2}

(¹阪大基礎工、²阪大基礎工スピントロニクスセンター)

Magnetic and magnetotransport properties of CoFeVSi epitaxial films grown by a nonstoichiometric MBE technique

S. Kobayashi¹, S. Yamada^{1,2}, and K. Hamaya^{1,2}

(¹Graduate School of Engineering Science, Osaka Univ.,

²Center for Spintronics Research Network, Osaka Univ.)

はじめに

スピングャップレス半導体(SGS)は、高スピン偏極率と高キャリア移動度を併せ持ち、電界などの外場によってフェルミ準位の位置を制御できる可能性を有している¹と予想されている。我々は、分子線エピタキシー(MBE)法を用いて、SGS 系の材料であると理論的に予測されている CoFeVSi(CFVS)²の薄膜の形成を試みてきたが、化学量論組成蒸着では組成ズレの影響が大きいことが明らかになっていた。本講演では、非化学量論組成蒸着を積極的に利用し、組成制御された CoFeVSi の薄膜成長に成功したため、それらの磁性および磁気伝導特性について述べる。

実験結果

MBE 法を用いて、MgO(100)基板の上に Co、Fe、V、Si を 1 : 1 : x : 1 の比率(x=1.13、1.26、1.39)で同時蒸着して CFVS 薄膜を形成した(基板温度:400 °C)。薄膜形成後の RHEED 像から、いずれの x においてもエピタキシャル成長に成功していることを確認した。EDX 分析の結果から、x の増加に伴って膜中の V 比率が増加し、x=1.26 で Co : Fe : V : Si = 1 : 1 : 1 : 1 に制御されていることが判明した。図 1 に x=1.26 の磁化曲線を示す。50 K における飽和磁化は約 1.7 μ_B /f.u. で、理論値(~2 μ_B /f.u.)²に近づく傾向が見られた。温度上昇に伴い磁化は減少し、キュリー温度は室温付近であることが示唆された。

作製した CFVS 薄膜の磁気抵抗(MR)比の温度依存性を図 2 に示す。低温で強磁性を示すにも関わらず、磁場に対して正の線形な MR の変化が観測されている。これは、SGS 特性が報告されているバルク Mn₂CoAl などでも観測された特徴的な磁気伝導特性³と同様の振る舞いである。また、ホール効果測定の結果から、温度降下に伴ってキャリアが正孔から電子に変化していく様子が観測され、フェルミ準位が SGS 特有のバンド構造の価電子帯と伝導帯の中心付近に存在することを示唆している。これらの結果は、作製した CFVS 薄膜において SGS 系に特徴的な電子構造が実現しつつあることを示唆している。講演では CFVS 薄膜の V 量が磁気特性や伝導特性に与える影響について述べる。

本研究の一部は、科研費基盤研究(A)(No. 16H02333)の支援を受けた。

参考文献

- 1) X. L. Wang, Phys. Rev. Lett. **100**, 156404 (2008).
- 2) Z. Ren *et al.*, J. Supercond. Nov. Magn. **29**(12), 3181 (2016).
- 3) S. Ouardi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **110**, 100401 (2013).

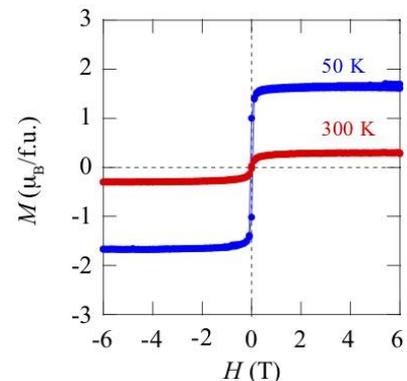


図 1: CFVS 薄膜(x=1.26)の磁化曲線。

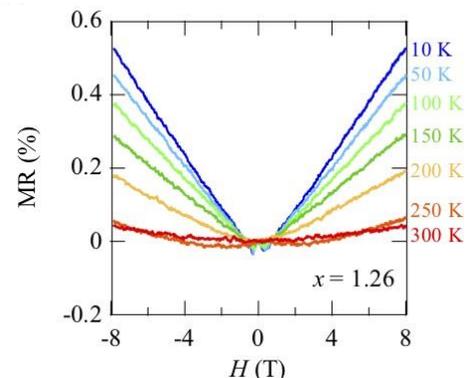


図 2: CFVS 薄膜(x=1.26)の磁気抵抗効果。

Bulk and near-interface magnetic properties of $\text{Co}_2\text{Fe}(\text{Ga}_{0.5}\text{Ge}_{0.5})$ Heusler alloy explored by magnetic circular dichroism in hard x-ray photoelectron spectroscopy

J. W. Jung¹, Y. Sakuraba¹, T. T. Sasaki¹, Y. Miura¹, A. Yasui², L. S. R. Kumara², T. Nakatani¹, and K. Hono¹

¹ National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-004, Japan

² Japan Synchrotron Radiation Research Institute, Sayo 679-5198, Japan

Co-based Heusler alloys have attracted attention for the applications as ferromagnetic (FM) electrodes in spintronic devices. In particular, large magnetoresistance (MR) ratios over 50% at room temperature have been demonstrated in the current-perpendicular-to-plane giant magnetoresistance (CPP-GMR) devices using Co-based Heusler alloys with the $L2_1$ structure¹⁾, which are one order of magnitude larger than those using conventional FMs such as CoFe. In general, however, the MR ratio in the CPP-GMR devices using Heusler alloys largely decreases with increasing temperature compared to the CoFe-based CPP-GMR, whose origin has not been understood sufficiently. One possibility for the origin of the large MR degradation at elevated temperature is the weak magnetic exchange stiffness at the interface between Heusler alloy and non-magnetic spacer, which is considered to lead to a large thermal fluctuation of the magnetization near the interface. In order to understand the mechanisms of such large temperature dependence of CPP-GMR, we performed *in-situ* hard x-ray photoelectron spectroscopy (HAXPES)-magnetic circular dichroism (MCD) experiment at beamline BL09XU of SPring-8. The HAXPES-MCD is a powerful method for investigating the element-specific magnetic properties in thin magnetic films and buried layers of multilayers.²⁾ By varying the take-off angle (TOA) of photoelectron by using a rotatable sample stage, it is possible to control the probing depth of circularly polarized x-rays from near-interface (lower TOA) to bulk (higher TOA) region. We performed HAXPES-MCD measurements for two kinds of samples: CoFe(50 nm) and CFGG(50 nm) thin films, which were grown epitaxially on a MgO (001) single-crystal substrate buffered by Cr (10 nm)/Ag (100 nm). Thin Ag (2 nm)/Ta (2.5 nm) were deposited on top of films to prevent surface oxidation. Before the measurement, we confirmed atomically flat interface between CFGG and Ag by STEM/HAADF. The HAXPES-MCD experiments with an excitation energy of 8003.58eV by circularly polarized x-ray were performed. Fig. 1 shows the normalized magnetic moments resulting from the normalized peak intensities at each Fe and Co $2p_{3/2}$ states for the CoFe and CFGG samples, as TOA is varied from 20°-70° from sample normal, which corresponds to an effective probing depth variation of 8-22 nm. The normalized intensities were calculated from different MCD intensities of opposite helicity divided by their sum of total intensities after subtracting a Shirley-type background. In the case of CFGG sample, the normalized intensities reduce with decreasing TOA, indicating large thermal fluctuation with smaller magnetic moment compared to that of bulk CFGG. On the other hand, for the CoFe case, the magnetic moment did not exhibit marked changes by changing TOA. Consequently, this result suggests that an improvement of exchange stiffness at near interface is the key to reduce temperature dependence of MR ratio in Heusler alloy-based CPP-GMR.

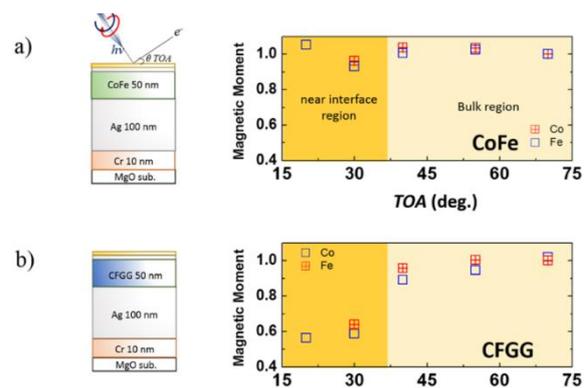


Fig. 1 Sketch of sample structure of CoFe and CFGG films. The normalized magnetic moments with Co and Fe elements in the case of a) CoFe and b) CFGG films

Reference

- 1) J.W. Jung *et al.*, Appl. Phys. Lett. **108**, 102408 (2016).
- 2) X. Kozina *et al.*, Phys. Rev. B **84**, 054449 (2011).

AgInZnO スペーサー層を用いたホイスラー合金 CPP-GMR 素子

中谷 友也、佐々木 泰祐、桜庭 裕弥、宝野 和博
(物質・材料研究機構)

CPP-GMR devices using Heusler alloy and AgInZnO spacer layer
Tomoya Nakatani, Taisuke Sasaki, Yuya Sakuraba, Kazuhiro Hono
(National Institute for Materials Science)

はじめに

ホイスラー合金を強磁性層に用いた面直電流巨大磁気抵抗 (CPP-GMR) 素子は、低素子抵抗かつ比較的大きな磁気抵抗 (MR) 出力のため、高記録密度ハードディスクドライブの再生ヘッドセンサや、高感度磁気センサへの応用が期待される。非磁性スペーサー層に Ag/InZnO など金属と酸化物の積層膜を用いることで、MR比の増大が報告されており[1]、さらなるMR出力の改善のためにスペーサー層の材料開発が重要である。本研究ではAgInZnOをスペーサー層に用いたCPP-GMR素子を作製し、磁気抵抗特性と微細構造を調査した。

実験方法

マグネトロンスパッタリングにより、多結晶擬スピバルブ膜を作製した。積層構造は Cu 電極 / Ta(2)/Ru(2)/CoFe(0.5)/CoFeBTa(1.5)/CMFG(5)/CoFe(0.4)/AgInZnO(1.2)/CoFe(0.4)/CMFG(5)/CoFeBTa(1.5)/Ru(8) (膜厚は nm) であり、成膜後に 280 °C で 3 h の熱処理をおこなった。CMFG は $\text{Co}_2(\text{Mn}_{0.6}\text{Fe}_{0.4})\text{Ge}$ ホイスラー合金であり、AgInZnO は Ag と InZnO (In_2O_3 10 wt. % - ZnO 90 wt. % の混合体) の同時スパッタリングにより成膜した。AgInZnO 中の Ag の公称濃度は 20-36 at. % である。比較のため、Ag₉₀Sn₁₀(3.5 nm) スペーサー、Ag(0.4 nm)/InZnO(1.3-1.75 nm) スペーサーを用いた CPP-GMR 素子を作製した。

実験結果

図 1 に CPP-GMR 素子の室温における素子抵抗×面積 (RA) と MR 比 ($\Delta R/R$) を示す。AgInZnO スペーサーを用いた素子では、AgInZnO 中の Ag 濃度の増加とともに $\Delta R/R$ と RA が減少し、Ag₉₀Sn₁₀ スペーサーを用いた全金属 CPP-GMR 素子の値 ($RA = 0.03 \Omega \mu\text{m}^2$, $\Delta R/R = 18\%$) に漸近する。 $RA > 0.2 \Omega \mu\text{m}^2$ の領域で $\Delta R/R \sim 60\%$, $RA = 0.08 \Omega \mu\text{m}^2$ において $\Delta R/R \sim 50\%$ という高い MR 比が多結晶薄膜を用いて実現される。これは面記録密度 5 Tbit/in² に要求される RA と $\Delta R/R$ の値[2]を満足しており、次世代の再生ヘッドセンサとして有望である。一方、Ag/InZnO 2 層スペーサーを用いた場合では、MR 比が最大で 35% と AgInZnO スペーサーに比べ低い値しか得られない。

図 2 に走査透過電子顕微鏡でのエネルギー分散型 X 線分析法による、CPP-GMR 膜内の元素分布を示す。元来 Mn は CMFG 層にしか存在しないはずであるが、スペーサー内に高濃度の Mn と O が見られた。電子回折図形からこれは岩塩構造の MnO であることがわかった。一方、In₂O₃ は還元され、AgIn 合金を形成している。AgIn は部分的に上下の CMFG 間をつなぐパスを形成しており、電流が狭窄して流れるために大きな MR 比が得られるのであると考えられる。

参考文献 [1] Nakatani *et al.* IEEE Trans. Magn. 54, 3300211 (2018). [2] Takagishi *et al.* IEEE Trans. Magn. 46, 2086 (2010).

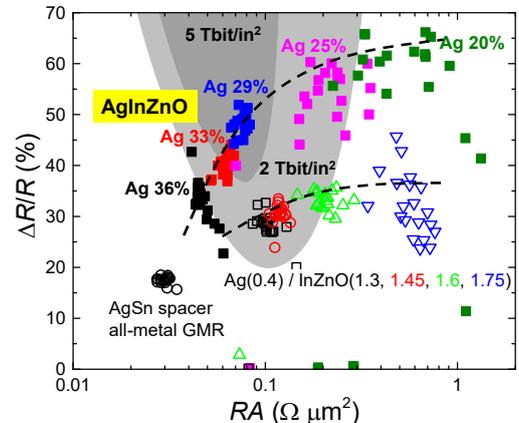


図 1 CPP-GMR 素子の RA と MR 比の分布。再生ヘッド要求値は文献[2]より引用。

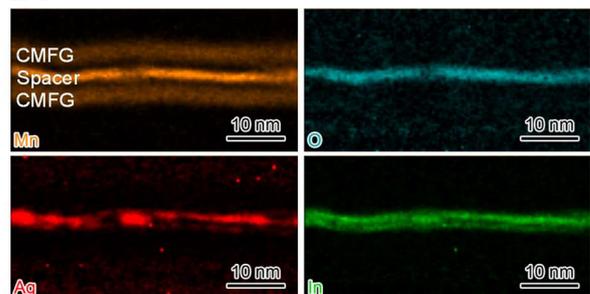


図 2 AgInZnO スペーサーを用いた CPP-GMR 膜中における Mn, O, Ag および In の分布。

CPP-GMR devices using $C1_b$ -type half Heusler alloys

Zhenchao Wen^{1,2}, Takahide Kubota^{1,2}, and Koki Takanashi^{1,2}

¹Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan

²Center for Spintronics Research Network, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan

Current-perpendicular-to-plane giant magnetoresistance (CPP-GMR) devices are promising as read heads for hard disk drives (HDDs) for achieving ultrahigh density magnetic recording of more than 5 Tbit/inch². Half-metallic Heusler alloys have shown great potential for enhancing CPP-GMR effect due to their high spin polarization. Half-metallic Heusler alloys are classified into full- and half-Heusler compounds with the chemical formula of X_2YZ in the $L2_1$ structure and XYZ in the $C1_b$ structure (X and Y : transition metals; Z : non-magnetic element). For half-Heusler alloys, the bandgap of minority spin originates from d -band hybridization of elements X and Y , which can form a larger bandgap compared to that in full-Heusler alloys. From the origin of the bandgap, half-Heusler alloys are beneficial for the development of high-performance CPP-GMR devices owing to the suppression of thermal activations on the bandgap. In this work, we fabricated half-Heusler alloy films (NiMnSb,^{1,2} PtMnSb, and NiMnSb with doping Ti) and investigated the CPP-GMR effect in the nanojunctions using the half-Heusler alloys.

Half-Heusler NiMnSb and PtMnSb alloy films were optimized with varying deposition temperatures on Cr/Ag-buffered MgO(001) substrates by investigating structural and magnetic properties. Fully (001)-oriented NiMnSb epitaxial films with flat surface and high magnetization were achieved at the substrate temperature of 300 °C. In the case of PtMnSb films, epitaxial growth was achieved at 200 °C while high magnetization was observed at 500 °C. Further, anisotropic magnetoresistance (AMR) effect was measured in the half-Heusler alloy films since negative AMR effect was reported to be a fingerprint for half-metallic band structure.³ A modest AMR value with negative sign was found in the NiMnSb films while a remarkably negative AMR effect was observed in the PtMnSb films. Epitaxial CPP-GMR devices using both the NiMnSb and the PtMnSb films were fabricated, and room-temperature (RT) CPP-GMR ratios for the half-Heusler alloys were determined for the first time. A CPP-GMR ratio of 8% (21%) at RT (4.2 K) was observed in the fully epitaxial NiMnSb/Ag/NiMnSb structures and a very low CPP-GMR ratio of 0.7% was shown in PtMnSb/Ag/PtMnSb nanojunctions at RT. In addition, TEM observation was carried out in order to examine the degree of $C1_b$ order in the NiMnSb film. It is found that $L2_1$ like structure is dominant in the NiMnSb alloy film while $C1_b$ order is rarely observed. This indicates a poor half metallicity for the NiMnSb film, which is consistent with the results of AMR and CPP-GMR. Nevertheless, the inconsistency between CPP-GMR and AMR effects was found in the PtMnSb material system, which could be due to high spin-orbit interaction in the PtMnSb films owing to Pt. Furthermore, in order to improve the $C1_b$ order in half-Heusler alloys, the element of Ti was doped into NiMnSb films. The epitaxial structure of the NiMn(Ti)Sb films was achieved at a post annealing temperature of 500 °C on Cr/Ag-buffered MgO(001) substrates. However, the NiMn(Ti)Sb based multilayers showed much weaker AMR effect and reduced CPP-GMR ratios compared to pure NiMnSb based samples. The result reveals the ordering structure was degraded by doping Ti at the current deposition condition. Table 1 summarizes the values of both AMR and CPP-GMR in half-Heusler based multilayers with NiMnSb, PtMnSb, and NiMn(Ti)Sb at RT. Reference data⁴ for $\text{Co}_2(\text{Mn}_{0.6}\text{Fe}_{0.4})\text{Si}$ were also shown. This study indicates that it is still challenging to improve the $C1_b$ ordering structure in half Heusler alloys for CPP-GMR applications at the current stage.

This work was partially supported by JSPS, ASRC, and CRDAM-IMR, Tohoku University. The authors also thank Mr. I. Narita of CRDAM, Tohoku University for his technical support.

Reference

- 1) Z. Wen *et al.*, *Sci. Rep.*, **5** (2015) 18387.
- 2) Z. Wen *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **108** (2016) 232406.
- 3) F. J. Yang *et al.*, *Phys. Rev. B (R)* **86** (2012) 020409.
- 4) Y. Sakuraba *et al.*, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **38** (2014) 45.

Table 1, AMR and CPP-GMR in half-Heusler based multilayers with NiMnSb, PtMnSb, and NiMn(Ti)Sb at RT.

	NiMnSb	PtMnSb	NiMn(Ti)Sb	Ref. ⁴ : $\text{Co}_2(\text{Mn}_{0.6}\text{Fe}_{0.4})\text{Si}$
AMR	-0.1%	-0.17%	-0.07%	-0.2%
CPP-GMR	8%	0.7%	1.5%	55%

ホイスラー合金 CPP-GMR 素子における界面挿入効果

窪田 崇秀^{1,2}, 温 振超^{1,2}, 高梨 弘毅^{1,2}

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

Interface layer effects for Heusler alloy based CPP-GMR junctions

T. Kubota^{1,2}, Z. Wen^{1,2}, and K. Takanashi^{1,2}

(¹ Institute for Materials Research, Tohoku Univ., ² Center for Spintronics Research Network, Tohoku Univ.)

はじめに

ハーフメタルホイスラー合金を用いた膜面垂直通電型巨大磁気抵抗 (CPP-GMR) 素子は、低抵抗領域 (面積抵抗値、 $RA < 0.1 \Omega \mu\text{m}^2$) において比較的大きな磁気抵抗変化率 (MR 比) が得られる点で注目されている。我々のグループでは最近 $\text{Co}_2\text{Fe}_{0.4}\text{Mn}_{0.6}\text{Si}$ (CFMS) ホイスラー合金と $L1_2$ 型 Ag_3Mg 規則合金中間層を組み合わせることで、室温で 60% を超える MR 比を報告したが¹⁾、応用の観点では出力特性の更なる向上が望まれる。Mn を含むホイスラー合金は、界面における交換ステイフネスの低下²⁾や Mn 元素の拡散³⁾などが更なる高 MR 化のための課題として議論されており、その対応策としてホイスラー合金層と中間層との界面への極薄挿入層の導入が提案されている⁴⁾。そこで本研究では CFMS/ Ag_3Mg /CFMS 素子における界面挿入の効果について検討した⁵⁾。

実験方法

積層膜試料は超高真空マグネトロンスパッタ装置を用いて MgO(100)単結晶基板上に作製した。膜構成は MgO 基板/Cr 20 nm/Ag 40 nm/CFMS 20 nm/界面層 t / Ag_3Mg 5 nm/界面層 t /CFMS 7 nm/Ag 2 nm/Au 5 nm である。界面層は Fe 又は Mg を用い、いずれも膜厚 (t) をゼロから 0.6 nm までの範囲で変化させた。積層膜は電子線リソグラフィ、イオンミリング法によりピラーに加工した。CPP-GMR は直流 4 端子法で測定し、低バイアス (電流密度、 $J \sim 10^5 \text{A/cm}^2$) に加えて、バイアス依存性による出力電圧 (ΔV) の評価を室温で行った。また、低バイアスにおける MR 比の測定温度依存性を 10 - 300 K の範囲で評価した。

実験結果

室温、低バイアス電流密度において、Fe、Mg いずれの挿入層の場合も MR 比は挿入層膜厚の増大に伴い低下した。一方、バイアス依存性の評価の結果、高バイアス ($J > 10^7 \text{A/cm}^2$) 領域における ΔV は挿入層膜厚に依存せず 4 mV 程度の値が得られた。加えて、 ΔV が最大値を示すバイアス電流密度が、挿入層を導入することで増加することを確認した。この結果は、挿入層の導入によりスピントランスファートルクによる磁化の揺動が抑制され、高バイアス領域で大きな出力電圧を維持しやすくなったためと考えられる。測定温度依存性においては、Fe 挿入の素子では MR 比が 50 ~ 250 K の範囲で最大値を示し、MR 比が最大となる温度が挿入層膜厚に依存することを確認した。一方、Mg 挿入の素子では、挿入層が無い素子と同様に測定温度の低下に伴い MR 比は増加した。講演では、挿入層材料に依存した測定温度依存性の違いの起源について議論する予定である。

謝辞

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

参考文献

- 1) T. Kubota *et al.*, Phys. Rev. Materials **1**, 044402 (2017).
- 2) Y. Sakuraba *et al.*, Appl. Phys. Lett. **101**, 252408 (2012).
- 3) Y. Sakuraba *et al.*, J. Phys. D: Appl. Phys. **44**, 064009 (2011); T. Kubota *et al.*, *ibid.* **59**, 014004 (2017).
- 4) J. W. Jung, *et al.*, IEEE Trans. Magn. **52**, 4400404 (2016).
- 5) T. Kubota *et al.*, Materials **11**, 219 (2018).

CoFe₂O₄/Pt/CoFe₂O₄ 三層膜のスピホール磁気抵抗効果

山本匠¹ 野土翔登¹ 柳瀬隆² 島田敏宏² ○長浜太郎²
(¹北大総化院 ²北大院工)

Spin Hall Magnetoresistance effect in CoFe₂O₄/Pt/CoFe₂O₄ trilayers
T. Yamamoto, S. Nodo, T. Yanase, T. Shimada, and T. Nagahama
(Hokkaido Univ.)

はじめに

近年スピン流研究が盛んに行われており、中でもスピン軌道相互作用を利用したスピン流生成に関する研究が精力的に進められている。とくに2013年に報告されたスピホール磁気抵抗効果は、YIG/Ptなどの二層膜を用いた簡便な直流抵抗測定により観測されることもあり、発見以後多くの研究が進められた。また、Chenらの理論式と比較することにより、スピン拡散長やミキシングコンダクタンスなどスピン流伝導に関連するパラメーターを決定することができる。本研究ではCoFe₂O₄/Pt/CoFe₂O₄三層膜を作製し、そのSMRについて調べた。三層膜のSMRに関する実験的な報告はなされていないが、理論的にはChenらによって調べられており、スピン拡散長依存性について二層膜と異なる振る舞いをする可能性が示されている。

実験

SMR研究はYIG/Pt二層膜で行われることが多いが、YIGは気相成長で作製することが難しく、三層膜作製には適していない。そこで、反応性蒸着法やスパッタでの作製が報告されているCoFe₂O₄を磁性絶縁体層として用いた。金属層としてはPtを用いた。製膜温度はCoFe₂O₄:300°C、Pt:100°Cである。CoFe₂O₄は10⁻⁴Paの酸素ラジカル中で製膜した。また二層膜についてはCoFe₂O₄/PtとPt/CoFe₂O₄の積層順の異なる試料を作製して、結晶構造や界面状態、SMRについて調べた。

結果

図にCoFe₂O₄(50nm)/Pt(4nm)/CoFe₂O₄(50nm)の角度依存磁気抵抗効果(ADMR)を示す。それぞれの角度 α 、 β 、 γ は図中に示す通りである。 α 、 β 方向では三角関数的な抵抗変化が観測され、 γ 方向では位相の異なる相対的に小さな抵抗変化が観測された。 α β 方向は通常のSMR、 γ 方向についてはPtの近接効果に起因するAMR効果であると考えられる。三層膜と二層膜を比較すると、三層膜は二層膜の3倍程度のSMRを示しており、大幅な増大が観測された。また、Pt膜厚依存性に関しては、Pt膜厚が薄い領域のSMRの振る舞いに違いがあることがわかった。

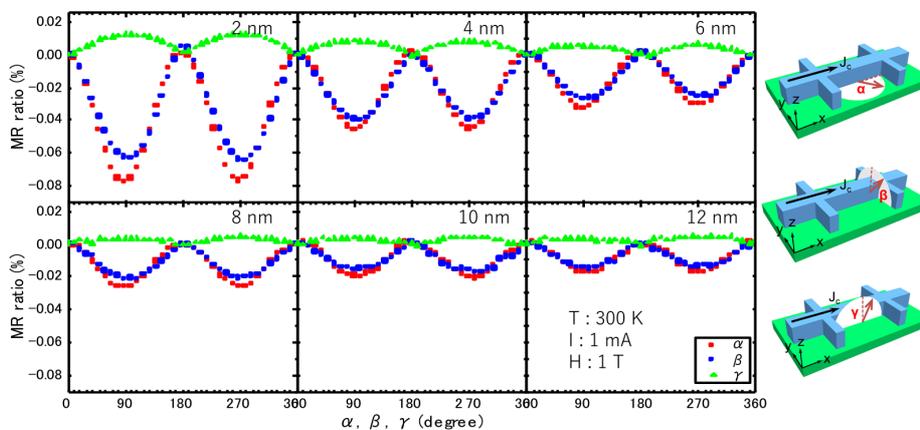


図1 CoFe₂O₄(50nm)/Pt(4nm)/CoFe₂O₄(50nm)の角度依存磁気抵抗効果。測定温度室温、測定磁場1 T。

Co₂MnSi 薄膜を用いた電流面直型スピバルブ素子における 双二次層間交換結合の起源

谷本哲盛¹, 犬伏和海², 毛利大樹¹, 井上将希¹, 中田勝之², 山本眞史¹, 植村哲也¹
(¹北海道大学, ²TDK 株式会社)

Origin of bi-quadratic interlayer exchange coupling in Co₂MnSi-based
current-perpendicular-to-plane spin valves

Tessei Tanimoto¹, Kazuumi Inubushi², Daiki Mouri¹, Masaki Inoue¹,
Katsuyuki Nakada², Masafumi Yamamoto¹, and Tetsuya Uemura¹
(¹Hokkaido University, ²TDK Corporation)

1. はじめに

Co 基ホイスラー合金を用いた電流面直型巨大磁気抵抗(CPP-GMR)素子は、ホイスラー合金のハーフメタル性に起因する高い磁気抵抗(MR)比が期待されることから、これまで盛んに研究がなされている¹⁻³。最近、我々は Co₂MnSi(CMS)を用いた CPP-GMR 素子において、その MR 比が Mn 組成とともに増加することを見出し、強磁性磁気結合(MTJ)同様、Mn-rich CMS の有用性を GMR 素子においても実証した¹。しかしながら、MR 比の温度依存性において異常な振る舞いが見られ、Mn 組成の増加につれ、低温における MR 比の顕著な減少が見られた。同様の低温における MR 比の減少は以前にも CMS あるいは Co₂(Mn,Fe)Si を用いた GMR 素子に対して報告されており^{2,3}、その起源の解明は Co 基ホイスラー合金の優れたハーフメタル性をフル活用する上で重要な課題である。これまで、低温における MR 比の減少がスピン移行トルク(STT)により緩和されることが見出されており、このことから、強磁性層間の bi-quadratic interlayer exchange coupling(90° coupling)の影響が指摘されている³。また、この 90° coupling の強さが温度に大きく依存することから loose spin model⁴ との関連が指摘されているが、その詳細な機構に関しては明らかになっていない。本研究の目的は、CMS 系 GMR 素子における 90° coupling の起源と loose spin model との関連を明らかにすることである。

2. 実験方法

MgO(001)単結晶基板上に(下部側から)Co₅₀Fe₅₀(CoFe)/Ag/CoFe 下地層を介して、CMS/Ag/CMS 三層構造を有する保磁力差型 CPP pseudo spin valve(PSV)素子(series-A)の層構造と、CMS と Ag の界面に厚さ 1.8 nm の極薄 CoFe 層を挿入した CPP-PSV 素子(series-B)の 2 通りの層構造を作製した。各シリーズにおいて、CMS 電極(Co₂Mn_αSi_{0.82})電極の Mn 組成 α を Mn deficient の $\alpha = 0.62$ から Mn rich な $\alpha = 1.40$ まで系統的に変化させた。CMS 電極の結晶性向上のため、上部 CMS 電極を室温にて堆積後、in-situ で 550°C のアニールを行った。上記の層構造に対して、微細加工により CPP-PSV 素子を作製し、それらの MR 特性および STT 特性を直流 4 端子法により測定した。

3. 結果および考察

図 1 に series-A の CPP-PSV 素子の、室温における MR 特性と STT 特性の比較を示す。磁場掃引による反平行(AP)状態の抵抗 $R_{AP}^{(MAG)}$ に比べ STT による AP 状態の抵抗 $R_{AP}^{(STT)}$ が大きくなり、磁場掃引では完全な AP 状態が形成されていないと考えられる。このことより 90° coupling の存在が示され、この結合の強さは、(1)Mn 組成増加とともに強くなること、(2)CMS と Ag スペースの界面に CoFe 層を挿入することで弱くなること、(3)低温で顕著に増大すること、が分かった。以上の結果は、CMS 層から Ag スペース層に拡散した Mn 原子が loose spin として振舞うという機構で説明できる。

参考文献

- 1) Y. Sakuraba et al., J. Phys. D: Appl. Phys. **44**, 064009 (2011).
- 2) M. Inoue et al., Appl. Phys. Lett. **111**, 082403 (2017).
- 3) H. S. Goripati et al., J. Appl. Phys. **110**, 123914 (2011).
- 4) J.C. Slonczewski, J. Appl. Phys. **73**, 5957 (1993).

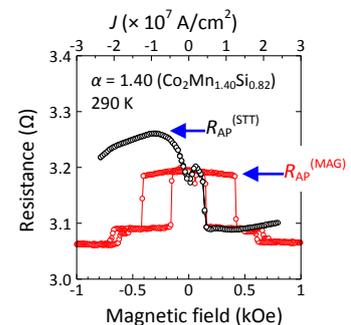


Fig. 1. Comparison between an MR curve and an STT curve at 290 K for a series-A PSV (w/o CoFe insertion) with a Mn composition of $\alpha = 1.40$ (Co₂Mn_{1.40}Si_{0.82}). The red and black curves indicate the MR curve and STT

低キュリー温度 CoPd/Pd 系多層膜を用いた MRAM 用交換結合ハイブリッドメモリ層

趙望臻、木村匠、董夏茵、大島大輝、加藤剛志、園部義明*、川戸良昭*、岩田聡
(名古屋大学, *サムスン日本研究所)

Exchange coupled hybrid memory layer with low Curie temperature CoPd/Pd multilayer for high-density magnetic random-access memory cells

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

1. はじめに

MRAM における磁化反転には、スピン注入磁化反転が利用されているが、10 Gbit 級の大容量の MRAM を実現するには、高い熱安定性 Δ と低い臨界電流密度 J_{sw} を両立させる高効率な磁化反転手法の開発が求められている。大容量 MRAM を実現するメモリ層として、異なるキュリー温度の磁性層を交換結合したハイブリッドメモリ層が提案されている[1]。これまでに我々は、高キュリー温度 (T_C) の Co/Pd 多層膜 (ML) と低 T_C の CoPd/Pd ML の交換結合二層構造ハイブリッドメモリ層を作製し、CoPd/Pd ML の T_C 以上である 170°C から冷却する過程で CoPd/Pd ML の磁化方向が、交換結合により高 T_C Co/Pd ML の磁化方向に支配されることを報告した[2]。今回我々は、(高 T_C Co/Pd ML)/(低 T_C CoPd/Pd ML)/(高 T_C Co/Pt ML) の三層ハイブリッド構造の磁化過程を報告するとともに、低 T_C CoPd/Pd メモリ層のスピン注入磁化反転について報告する。

2. 実験方法

熱酸化膜付 Si 基板上にマグネトロンスパッタ法により、Si sub. / Ta (10 nm) / Pt (5nm) / [Pt (1.2 nm) / Co (0.4 nm)]₆ ML / [Pd (1.2 nm) / Co₄₈Pd₅₂ (0.3 nm)]₃ ML / [Pd (1.2 nm) / Co (0.4 nm)]₃ ML / SiN (5 nm) (サンプル A) を作製した。中間層の CoPd/Pd ML は 130 °C 程度の低い T_C を持つ。また、この低 T_C CoPd/Pd ML を非磁性の Pd (4.5 nm) に置き換えたもの (サンプル B) も作製し、その磁化過程を比較した。

3. 実験結果

図 1 は室温及び 172°C における三層ハイブリッド膜(サンプル A) の Kerr ループを示している。高 T_C の Co/Pd ML および Co/Pt ML が低 T_C CoPd/Pd ML 中間層を介して交換結合するため、三層が同時に反転している。一方、172°C では、二つ高 T_C ML が独立に反転し、Kerr ループが二段の形状になっており、高 T_C の Co/Pd および Co/Pt の保磁力 H_c はそれぞれ、0.42 kOe, 1.8kOe である。図に示されていないが、中間層を Pd (4.5 nm) としたサンプル B の室温における Kerr ループはサンプル A の 172°C での Kerr ループと同様、二段のループになっている。図 2 は、サンプル A の(a) Kerr 回転角と(b)保磁力の温度依存性を示している。Kerr 回転角は温度上昇とともに減少する。図 2 (b)は、サンプル A が室温から 130°C まで中間層を介した交換結合により三層同時に反転しているが、130°C を超えると、Co/Pd ML と Co/Pt ML が独立に反転するようになり、温度上昇とともに、保磁力がそれぞれ減少、増加することを示している。これより、CoPd/Pd 層を介した交換結合が温度により制御できることが分かる。講演では、低 T_C の CoPd / Pd ML のスピン注入磁化反転の結果も述べる。

4. 参考文献

- [1] Machida et al., IEEE Trans. Magn., **53**, 2002205 (2017).
[2] W. Zhao et al., IEEE Trans. Magn., DOI: 10.1109/TMAG.2018.2828138 (2018).

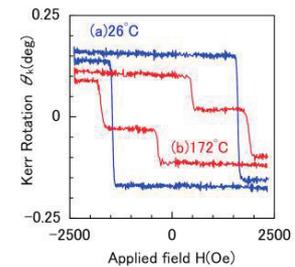


Fig. 1 Kerr hysteresis loops of sample A, [Co/Pd] / [CoPd/Pd] / [Co/Pt], measured at (a)26°C and (b)172°C.

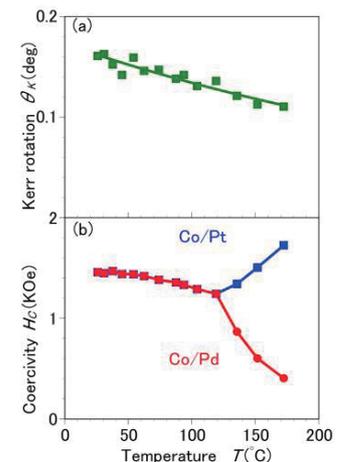


Fig. 2 Temperature dependence of Kerr rotation and coercivities of Pt/Co and Pd/Co MLs in the sample A.

Co/Pd 多層膜のスピ注入磁化反転臨界電流の層厚比依存性

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

Dependence of critical current of spin transfer torque magnetization switching on the layer thickness ratio of Co/Pd multilayers

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

1. はじめに

スピ注入磁化反転は、大容量 MRAM を実現する技術として開発が進められているが、10 Gbit を超える容量の実現には、高い熱安定性と低い臨界電流を両立させる高効率な磁化反転手法の開発が求められる。我々は高効率な磁化反転を実現するメモリ層として、低いキュリー温度 (T_C) の低 T_C 層と高 T_C 層を交換結合させた積層型垂直磁化メモリ層に注目している[1]。低 T_C 層として CoPd/Pd 多層膜、高 T_C 層として Co/Pd 多層膜を用いた積層膜の磁化反転を検討し、低 T_C 層の磁化反転が、高 T_C 層の磁化方向との交換結合により制御できることを示してきた[2]。今回は高 T_C 層である Co/Pd 多層膜へのスピ注入磁化反転を検討し、その臨界反転電流密度の層厚比依存性を調べたので報告する。

2. 実験方法

熱酸化膜付 Si 基板上にマグネトロンスパッタ法により、Si sub./Ta (10)/Cu₇₀Ta₃₀ (150)/Pt (5)/[Pt (1.0)/Co (0.6)]₆/Cu (2.5)/[Co (t_{Co})/Pd (t_{Pd})]₃/Cu (5)/Ta (2) (膜厚の単位は nm) を作製した。素子の微細加工には、フォトリソグラフィ、ECR プラズマ Ar イオンエッチング、および電子ビームリソグラフィを用い、直径 140 - 200 nmφ の接合を有する CPP-GMR 素子を作製した。磁気抵抗特性は直流 4 端子法により評価し、スピ注入磁化反転はパルス幅 10 μsec ~ 10 msec のパルス電流を印加後、100 μA の読み出し電流で接合抵抗を測定することで評価した。

3. 実験結果

Fig. 1 は Co (0.3 nm)/Pd (1.2 nm) 層へのスピ注入磁化反転の臨界電流密度のパルス幅依存性である。素子直径は 140 nmφ であり、Fig. 1 には反平行状態(AP)から平行状態(P)への電流密度 (J_{AP-P})、P から AP への電流密度 (J_{P-AP}) 及びそれらの平均電流密度 J_{ave} を示している。臨界電流密度はパルス幅 τ の増大により減少しているが、これから $\tau = 1$ nsec の電流密度 J_{c0} 、熱安定性指標 $\Delta = K_u V / k_B T$ を見積もった。Fig. 2 は様々な素子直径の Co/Pd の J_{av} のパルス幅依存性より見積もった J_{c0} と Δ の層厚比 t_{Pd}/t_{Co} 依存性である。 $t_{Pd}/t_{Co} \leq 2$ では、 J_{c0} は t_{Pd}/t_{Co} の増加とともに増加している。Co/Pd 多層膜では t_{Pd}/t_{Co} の増大によりダンピング定数 α が増加することから[3]、この領域での J_{c0} の増加は Co/Pd の α の増加を反映している可能性がある。一方、 t_{Pd}/t_{Co} がさらに増加すると J_{c0} が減少する傾向が見られ、Co/Pd の J_{c0} が α の変化のみでは説明できないと考えられる。一方、Fig. 2 から Δ の t_{Pd}/t_{Co} 依存性は小さいと考えられる。

4. 参考文献

- [1] Machida et al., IEEE Trans. Magn., **53**, 2002205 (2017).
[2] W. Zhao et al., IEEE Trans. Magn., DOI: 10.1109/TMAG.2018.2828138 (2018).
[3] T. Kato et al., IEEE Trans. Magn., **48**, 3288 (2012).

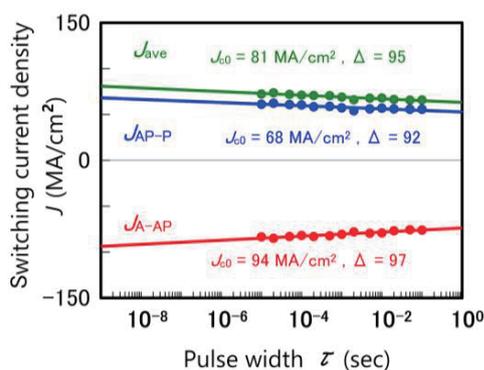


Fig. 1 Pulse width dependence of the STT switching current densities of the Co/Pd multilayer with a pillar diameter of 140 nmφ.

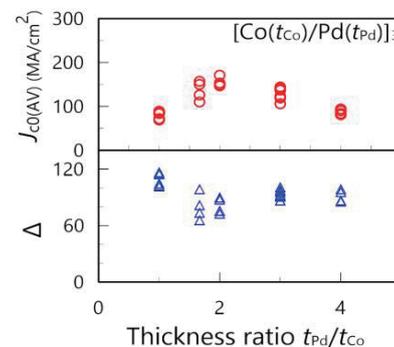


Fig. 2 Dependence of $J_{c0(av)}$ and Δ on the thickness ratio t_{Pd}/t_{Co} of the [Co (t_{Co})/Pd (t_{Pd})]₃ ML. The data taken from the CPP-GMR nano-pillars with various pillar diameters are plotted.

垂直磁化 Co 超薄膜における電界アシストスピホール磁化反転

國島 和哉, 周 興, 大島 大輝, 加藤 剛志, 岩田 聡
(名古屋大学)

Electric-field-assisted spin Hall magnetization switching in perpendicularly magnetized Co ultra-thin films
K.Kunishima, X.Zhou, D.Oshima, T.Kato, S.Iwata
(Nagoya University)

はじめに

磁気ランダムアクセスメモリ(MRAM)は、不揮発性、高速のランダムアクセス、無限の書き換え耐性といった特長を持ち、次世代のメモリとして注目されている。現行の MRAM は消費電力が大きいという欠点があるため、新たな磁化反転の手法として、スピホール効果を用いた磁化反転が検討されている¹⁾。しかし、この手法でも純スピ流を生成するために、重金属膜に $10^6 \sim 10^7$ A/cm² 程度の大きな電流密度を必要とする。近年、磁性層に電界を印加することにより界面異方性を制御し、スピホール磁化反転の反転電流密度を低減できることが報告されている²⁾。ここでは、垂直磁気異方性を示す Co 超薄膜において、電界による磁気特性の制御と電界アシストスピホール磁化反転を調べた。

実験方法

超高真空マグネトロンスパッタリング装置を用いて、MgO (10 nm) / Co (0.4 nm) / Pt (3 nm) / SiN (5 nm) / (熱酸化膜付き Si 基板) を成膜した。電子線露光装置と Ar⁺イオンエッチング装置を用い、異常ホール効果測定用の幅 $3 \mu\text{m} \times 6 \mu\text{m}$ の十字パターンに加工した。その後、電圧を印加して測定を行うため、フォトリソグラフィとスパッタリングにより絶縁層パターン HfO₂ (100 nm) と電極パターン Al (100 nm) を作製した (Fig. 1)。異常ホール効果の測定は、膜面内方向に電流 $30 \mu\text{A}$ を流し測定した。スピホール磁化反転の測定は、電流と平行方向に外部磁界を 200 Oe 印加し、パルス幅 0.01 msec ~ 1 msec のパルス電流を印加した直後のホール電圧を測定することで行った。これらの測定時には、Al 電極にゲート電圧 $V_G = -20 \text{ V} \sim +20 \text{ V}$ を印加し、電界印加効果を調べた。

実験結果

Fig. 2 はゲート電圧 $V_G = -20 \text{ V}$, $+20 \text{ V}$ を印加した場合の異常ホールループである。保磁力は $V_G = +20 \text{ V}$ のとき 336 Oe, $V_G = -20 \text{ V}$ のとき 291 Oe と、0.3 %/V 程度の保磁力変化が確認された。Fig. 3 はスピホール磁化反転における、反転電流密度 J_s の電流パルス幅 τ 依存性を示している。反転電流密度は、電流パルス幅が大きくなるにつれて減少している。また、正の V_G 印加で J_s が増加、負の V_G で J_s が減少することは、保磁力の変化と対応しており、 $V_G = +20 \text{ V}$ から -20 V へ変化することで J_s が 0.5 MA/cm^2 程度減少することが確認された。

参考文献

- 1) L.Liu et al., Phys. Rev. Lett., **109**, 096602 (2012).
- 2) T. Inokuchi et al., Appl. Phys. Lett., **110**, 252404 (2017).

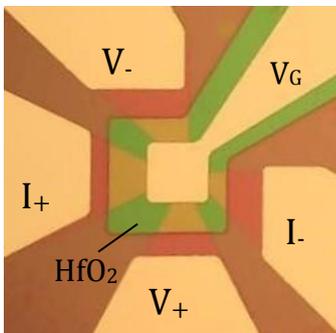


Fig. 1 Optical microscope image of the micro-fabricated Co ultrathin film.

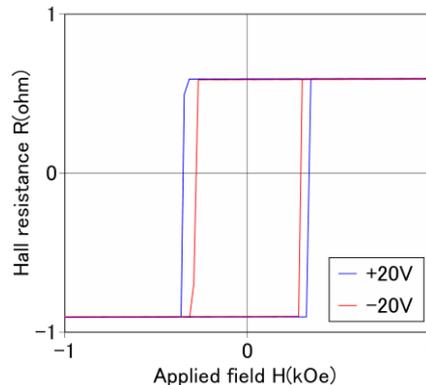


Fig.2 Hall loops of microfabricated MgO / Co / Pt measured under $V_G = \pm 20 \text{ V}$.

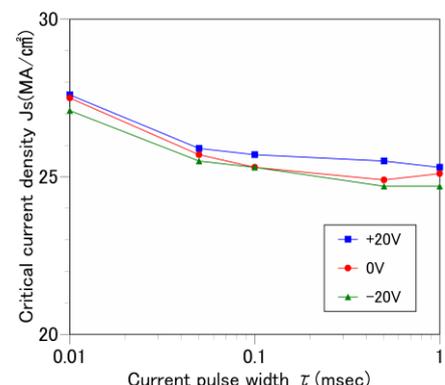


Fig.3 Pulse width dependence of critical current density of spin Hall switching of MgO / Co / Pt under $V_G = 0, \pm 20 \text{ V}$.

エピタキシャル CoFe/n-Ge/Fe₃Si 縦型構造の作製

椎原貴洋¹、沖宗一郎¹、酒井宗一郎¹、井川昌彦¹、山田晋也^{1,2}、浜屋宏平^{1,2}

(1 阪大基礎工, 2 阪大基礎工スピントロニクスセンター)

Fabrication of all-epitaxial CoFe/n-Ge/Fe₃Si vertical structures

T. Shiihara¹, S. Oki¹, S. Sakai¹, M. Ikawa¹, S. Yamada^{1,2}, and K. Hamaya^{1,2}

(¹Graduate School of Engineering Science, Osaka Univ., ²Center for Spintronics Research Network, Osaka Univ.)

[はじめに]

我々は、分子線エピタキシー(MBE)法と固相成長(SPE)法を併用することで、エピタキシャル CoFe/p-Ge/Fe₃Si 縦型構造を低温で形成し[1]、その縦型構造を用いて p 型 Ge を介した室温スピン伝導の観測に成功してきた[2]。しかし、p-Ge のスピン拡散長は非常に小さく[2]、スピン信号は温度の上昇とともに急速に減衰する。一方、n-Ge のスピン拡散長は、p-Ge のスピン拡散長よりも室温で 1 桁大きい[3]。そのため、Fe₃Si 層上に n-Ge 層を成長できれば、CoFe/Ge/Fe₃Si 縦型構造のスピン信号の増大が期待される。

本研究では、Fe₃Si 層上に Sb を同時蒸着した Ge 層を成長し、CoFe/n-Ge/Fe₃Si 縦型構造の作製を試みる。

[実験方法]

MBE 法を用いて Ge(111)基板上に Fe₃Si 層(50 nm)を成長した後、最表面を Si 面終端した[4]。その直上に非晶質 Ge 層(2 nm)を室温堆積し、125°C で 30 分のアニール処理を施した(SPE-Ge)[1]。その後、温度を 175°C に上げて、SPE-Ge 層上に Sb を同時蒸着(セル温度:280°C)した Ge 層(18 nm)を MBE 成長した。最後に、基板温度を室温まで下げた後、CoFe 層(10 nm)を MBE 成長し、CoFe/Sb-doped Ge/Fe₃Si 縦型構造とした。

[実験結果]

Fig. 1 に各層を成長した後の RHEED パターンを示す。Fig. 1(b) から、Sb を同時蒸着しても Ge 層はエピタキシャル成長しており、低温成長によって Sb の表面偏析を抑制できていることがわかる。また、Fig. 1(c)に示すように、三層成膜後でも RHEED はストリークパターンを維持している。つまり、エピタキシャル CoFe/Sb-doped Ge/Fe₃Si 縦型構造の作製に成功した。

Fig. 2 に 300 K で測定した磁化曲線を示す。二段のヒステリシス曲線が観測され、CoFe、Fe₃Si が Ge を介して磁氣的に分断していることが示唆される。講演では、Au-Ti/Sb-doped Ge/Fe₃Si/p-Ge/Al 縦型デバイスの電気伝導特性について述べ、作製した Ge 層が n 型伝導を示すことについても言及する。

本研究は、科研費基盤研究(A)(16H02333)・科研費基盤研究(S)(17H06120)の補助を受けた。

参考文献

- 1) S. Sakai *et al.*, *Semicond. Sci. Technol.* **32**, 094005 (2017).
- 2) M. Kawano *et al.*, *Phys. Rev. Mater.* **1**, 034604 (2017).
- 3) M. Yamada *et al.*, *Appl. Phys. Express* **10**, 093001 (2017).
- 4) S. Yamada *et al.*, *Cryst. Growth Des.* **12**, 4703 (2012).

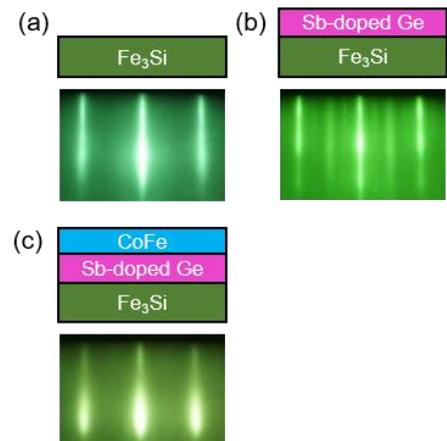


Fig.1 RHEED patterns of (a) Si-terminated Fe₃Si, (b) Sb-doped Ge and (c) CoFe layers.

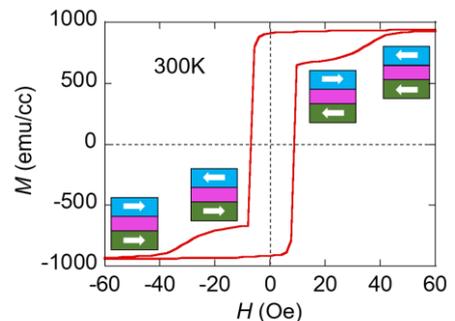


Fig. 2 M - H curve of a CoFe/n-Ge/Fe₃Si trilayer at 300 K.

反平行磁化配置が不安定なゲルマニウム横型スピバルブ素子における非局所スピ伝導

沖宗一郎¹、山田道洋¹、山田晋也^{1,2}、澤野憲太郎³、浜屋宏平^{1,2}

(1 阪大基礎工, 2 阪大基礎工スピントロニクスセンター, 3 東京都市大)

Nonlocal spin signals in Ge-based lateral spin valves with unstable anti-parallel magnetic configuration

S. Oki¹, M. Yamada¹, S. Yamada^{1,2}, K. Sawano³, K. Hamaya^{1,2}

(¹Osaka Univ., ²Center for Spintronics Research Network, Osaka Univ., ³Tokyo City Univ.)

【はじめに】

一般的に、半導体へのスピ注入を実証する時に用いられる横型スピバルブ素子では、用いる強磁性体の物性によって反平行磁化配置を作ることが容易でないものもある。我々のこれまでの研究で、Fe₃Si という 2 元ホイスラー合金をスピ注入/検出電極として用いた半導体横型スピバルブ素子では、反平行磁化配置を作ることが難しく、スピ伝導の評価が難しかった[1]。本研究では、最近我々がスピ伝導特性を明らかにした Ge をチャンネル材料として、この Fe₃Si を注入電極とした横型スピバルブ素子のスピ伝導評価を行う。

【実験方法および結果】

n-Ge($n \sim 1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$)/Si(111)上に MBE 法で膜厚 10 nm の Fe₃Si 薄膜[2]を作製し、電子線描画と Ar⁺ミリングを用いて Fig.1 (a)の横型スピバルブ素子へと加工した[3]。Fig.1 (b)に 8 K で測定した非局所磁気抵抗信号を示す。従来と同様に、緩やかな抵抗変化を伴った信号が観測された[1]。この信号は温度の上昇とともに減衰し、 $\sim 150 \text{ K}$ で消失した。Fig.1 (c)には、平行磁化配置における非局所 Hanle 信号(黒点)を示す。平行磁化配置を実現するために、y 軸方向に磁場(H_y)を 300 Oe 印加し、 H_y をゼロにした後に Hanle 信号を測定した結果である。この平行配置の Hanle 信号の解析から、n-Ge のスピ緩和時間は $\sim 0.2 \text{ ns}$ と見積もられ、これまでの我々の報告[3]と一致していることから、観測されている信号はスピ信号であると判断される。観測された Hanle 信号の大きさは、(b)に示されたスピ信号の大きさとほぼ同じであることから、(b)で観測されている信号強度は、反平行磁化配置を実現していない状態で出現しているスピ信号であると判断される。次に、 H_y を変化させて Hanle 信号を測定したところ、信号強度に明瞭な変化が見られた。これは、Fe₃Si スピ注入電極と検出電極間の磁化配置が、(b)から予想される通り、緩やかに磁化回転的に変化しているため、反転途中の磁化状態で留まっている時の Hanle 信号を測定できていることを示している。同様の挙動は、Si スピバルブ系の実験でも既に報告されている[4]。

本研究は、科研費基盤研究(A)(16H02333)・科研費基盤研究(S)(17H06120)の補助を受けた。

参考文献

- [1] Y. Ando *et al.*, App. Phys. Lett. **94**, 182105 (2009); Appl. Phys. Express **3**, 093001 (2010).
- [2] K. Hamaya *et al.*, Phys. Rev. B **83**, 144411 (2011).
- [3] M. Yamada *et al.*, Phys. Rev. B **95**, 161304(R) (2017).
- [4] O. M. J. van 't Erve *et al.*, Appl. Phys. Lett. **91**, 212109 (2007).

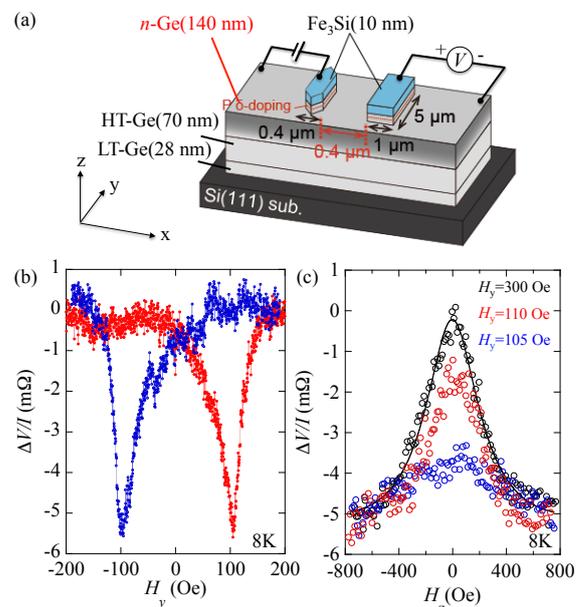


Fig.1 (a) Illustration of the fabricated lateral spin-valve device. (b) Nonlocal spin signal and (c) nonlocal Hanle signals, at $I = -1 \text{ mA}$, 8K. The black solid curve shows the fitting curve using one-dimensional spin-drift diffusion model.

AlGaAs/GaAs 系高移動度 2次元電子系へのスピン注入及び検出

潘達¹, 林志超¹, Mahmoud Rasly¹, 植村哲也¹
 (¹北海道大学大学院情報科学研究科)

Electrical spin injection and detection in an AlGaAs/GaAs-based
 high-mobility two-dimensional electron system

Da Pan, Zhichao Lin, Rasly Mahmoud, and Tetsuya Uemura

(¹Graduate School of Information Science and Technology, Hokkaido University)

1. はじめに

従来のトランジスタ機能に加え、スピンの機能性を有するスピントランジスタの実現に向け、強磁性電極から半導体にスピンの揃った電子を注入する半導体スピン注入の研究が盛んに行われている。これまで GaAs [1]や Si[2], Ge[3]など種々のバルク半導体へのスピン注入が室温で実証されている。一方、AlGaAs/GaAs 2次元電子ガス(2DEG)構造は高い電子移動度を有することから、高電子移動度トランジスタ(HEMT)をはじめとする高速デバイスへの応用が期待されている。また、スピントランジスタのチャンネルとしても有用である。

しかしながら、これまで AlGaAs/GaAs 2DEG チャンネルへのスピン注入の報告例は少なく、強磁性半導体の GaMnAs をスピン源として用いた素子で実現されているのみである[4]。さらに、GaMnAs の強磁性転移温度(T_C)は室温より低いため、スピン注入の実証も 50 K 以下に限られている。今回、我々は T_C が室温より十分高い CoFe ($T_C > 1000$ K) をスピン源に使い、AlGaAs/GaAs 2DEG チャンネルへのスピン注入を 138 K まで実証したので報告する。

2. 実験方法

半絶縁性 GaAs(001)基板上に、ud-GaAs (400 nm)/ud-Al_{0.3}Ga_{0.7}As (100 nm)/n⁻-Al_{0.3}Ga_{0.7}As (Si = 3×10^{18} cm⁻³, 100 nm)/ud-Al_{0.3}Ga_{0.7}As (15 nm)/ud-GaAs (50 nm)/n⁻-GaAs (Si = 7×10^{16} cm⁻³, 100 nm)/n⁺-GaAs (Si = 5×10^{18} cm⁻³, 30 nm)からなる逆 HEMT 構造を、分子線エピタキシー法(MBE)により成膜した。次に、厚さ 5 nm の CoFe 層をマグネトロンスパッタリング法により室温で成長した。その後、電子線リソグラフィと Ar イオンミリングにより非局所四端子素子に加工した。スピンの注入と検出用の電極のサイズはそれぞれ $0.5 \times 5 \mu\text{m}^2$ と $1.0 \times 5 \mu\text{m}^2$ であり、両者の間隔は 0.5 μm である。

3. 結果および考察

ホール効果測定により、製作した 2DEG 層の 77 K におけるシートキャリア濃度及び移動度はそれぞれ 6.9×10^{11} cm⁻² ~ 8.5×10^{11} cm⁻² と $24200 \sim 43700$ cm²/V·s となり、高い移動度を有することが分かった。このことは、良好な AlGaAs/GaAs ヘテロ界面が形成され、また、キャリアは 2DEG 層を伝導していることを示している。Fig. 1(a)に 77 K における非局所スピンバルブ信号を示す。図に示すように、注入電極と検出電極間の相対磁化配置の変化による明瞭なスピンバルブ信号が観測され、GaMnAs を用いた先行研究[4]に比べ、より高い温度でスピン注入を実証した。同図(b)には、スピン注入の大きさの指標として、非局所電圧の変化量と注入電流の比で定義された $|\Delta V_{\text{NL}}/I_{\text{bias}}|$ の温度依存特性を示す。CoFe をスピン源として用いることで、非局所信号は 138 K まで検出された。バルク GaAs ではスピン信号の大きさは温度の上昇と共に単調に減少するのに対し、2DEG チャンネルでは 80 K 付近で最大となった。講演ではこの複雑な温度依存性についても議論する。

参考文献

- [1] T. Uemura et al., Appl. Phys. Lett. **99**, 082108 (2011).
- [2] T. Suzuki et al., APEX **4**, 023003 (2011).
- [3] M. Yamada et al., APEX **10**, 093001 (2017).
- [4] M. Oltcher et al., Phys. Rev. Lett. **113**, 236602 (2014).

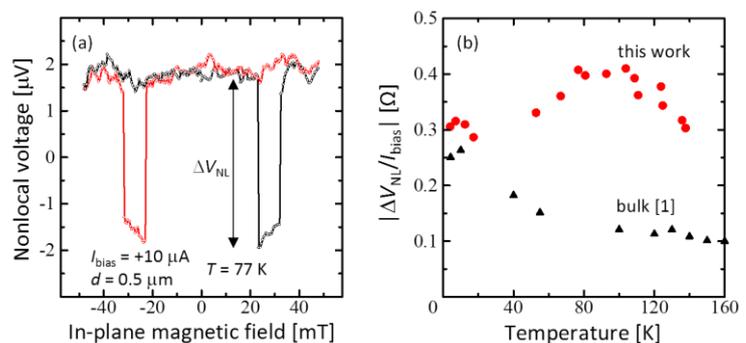


Fig. 1(a). 77 Kにおけるスピンバルブ信号 (b) 非局所信号の温度依存性

パワーエレクトロニクス励磁のためのアモルファス材の試作

濱島拓未、竹内恒博、藤崎敬介
(豊田工業大学)

Trial Manufacturing of Amorphous Material for Power Electronics Excitation

Takumi Hamashima, Tsunehiro Takeuchi, Keisuke Fujisaki
(Toyota Technological Institute)

電気モータの電気自動車応用に端を発し、その傾向が機関車、船、飛行機といった移動手段すべへの適用検討が進められている。移動に必要な可変速技術は、パワーエレクトロニクス励磁においてモータにて初めて実現可能とし、その傾向は十数年後には電気エネルギーの8割を介して制御されるといわれている。こうしたパワーエレクトロニクス技術において僅々の技術課題となっているのが高周波大電力のための磁性材料である。例えばMHz程度の周波数をMW程度の大電力に対し変圧器を用いようとする、少なくとも μm 厚み程度以下の鋼板を量産化すべきともいえる²⁾。単にロールで急冷しても20 μm 厚程度が限界といわれているので、アモルファス材のガラス転移点に着目した³⁾。そこで今回、鉄合金($\text{Fe}_{78}\text{Si}_9\text{B}_{13}$)を単ロールで急冷シアモルファス材を作り、その後圧延にて薄くすることを試み、その磁気特性を計測した⁴⁾。ガラス転移温度(420 $^{\circ}\text{C}$)前後にて300Maを10分程度圧下し鋼板厚みを1-2割程度薄くなった(図1参照)。10kHzでの磁気計測をしたところ、市販のアモルファス材(2605SA1:日立金属社製)より鉄損を小さくすることができた(図2参照)。

参考文献

- 1) 藤崎敬介「パワーエレクトロニクスで励磁される磁性材料」第41回日本磁気学会学術講演会 S-2,シンポジウム, パワーエレクトロニクスで励磁される磁気・磁性材料の研究の必要性, 平成29年9月22日, 九州大学.
- 2) 藤崎敬介「マイクロ材料電磁界数値解析による高周波軟磁性材料の形状と損失特性」電気学会マグネティックス・リニアドライブ・日本磁気学会合同研究会資料, MAG-14-208, LD-14-100, 2014.12.
- 3) T. Takeuchi et al., Local atomic arrangements and electronic structure of the Zr-Ni-Al bulk metallic glass -Analysis by use of the relevant crystals - Mat. Sci. Engng. A, 449-451 pp.559-604 (2007).
- 4) 濱島拓未「パワーエレクトロニクスに応用可能な軟磁性材料の開発」豊田工業大学卒業論文,2018.3

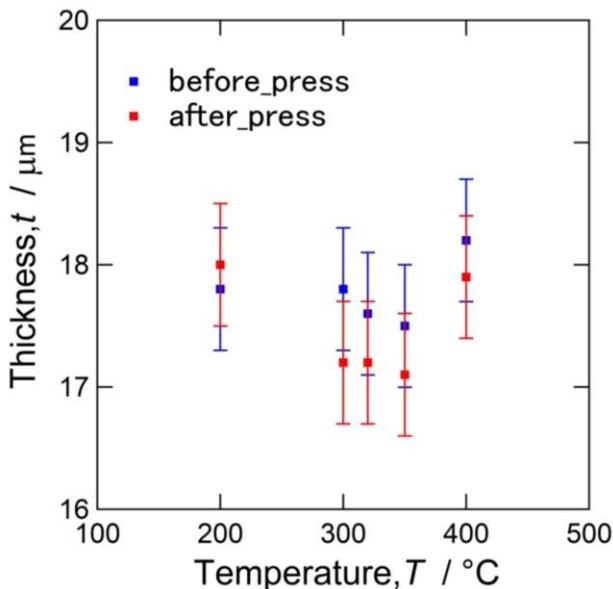


図1. 圧下による鋼板厚みの変化

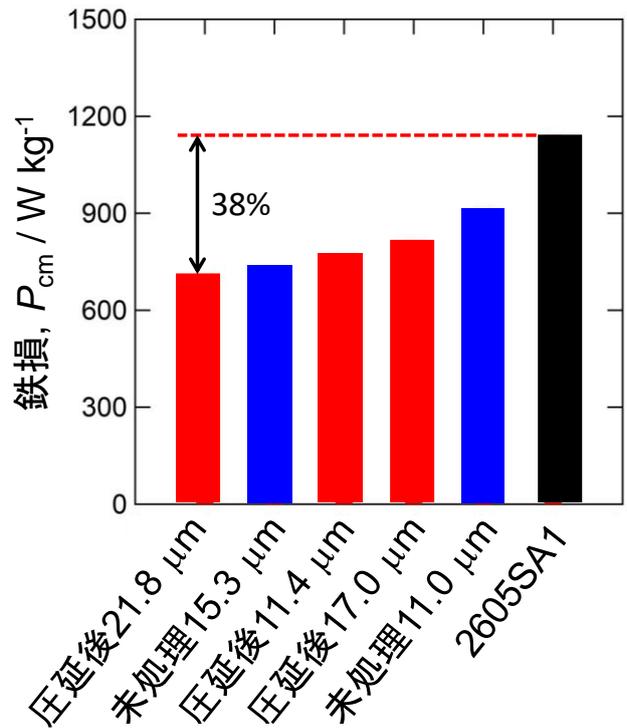


図2. アモルファス材の高周波鉄損特性 (10 kHz)

パワーエレクトロニクス励磁のための対向ターゲット式スパッタによる $1\mu\text{m}$ 厚鋼帯の試作

高村陽太*, 小川良正*, 古我城航*, 中川茂樹*, 藤崎敬介**

*東京工業大学電気電子系, **豊田工業大学

Fabrication of 1- μm -thick CoFeB steel strips for power electronics excitation

Y. Takamura*, Y. Ogawa*, W. Koganoki*, S. Nakagawa*, K. Fujisaki**

Dept. of Electric and Electronic Eng., Tokyo Inst. of Tech., **Toyota Technological Inst.

背景

パワーエレクトロニクス技術の進展で電力: MW クラス、周波数: MHz 程度といった高周波・大容量化の実用化が検討され始め、 μm 厚み程度以下の鋼帯の磁気特性の把握が求められている¹⁾。従来の鋼帯作製技術では、薄層化に限界があった。一方の集積エレクトロニクスで用いられる真空成膜法²⁾では、数十 nm の薄さの成膜を得意とするため、 μm オーダーの成膜はほとんど試されてこなかった。本研究では、真空薄膜作製技術の一つであるスパッタ法を用いて、 $1\mu\text{m}$ 厚鋼帯の試作に成功したので報告する。

作製方法

鋼帯は対向ターゲット式スパッタ法によりガラス基板上に作製した。まず、ガラス基板をアセトンとエタノールを用いてそれぞれ10分間超音波洗浄を10分間行った。基板を真空チャンバーに導入後、背圧が 1.5×10^{-4} Pa に達したところで、Ar ガスを導入し、Ar 分圧 0.1 Pa の下、1時間30分間スパッタ成膜を行った。成膜速度は 12 nm/分であった。ターゲットは、mol 比で Fe:Co=7:3 の合金上に B チップを乗せたものを使用した。

結果

作製した FeCoB 鋼帯は、約 $1\mu\text{m}$ という厚みにも関わらず、基板からの剥離や皺は確認されなかった。(図1挿入写真)このことは、さらなる厚膜化や多層構造化が可能であることを示唆している。また、鏡面をしていたことから、平坦な表面を持っていると考えられる。膜厚が $1.1\mu\text{m}$ であることは、試料を成膜装置の試料台にカプトンテープで貼り付けた跡の段差を実測し、確認している。

図1に試料振動型磁力計で測定した直流磁場に対する $B-H$ 特性を示す。飽和磁束密度と残留磁束密度は、それぞれ、2.3 T と 0.7 T だった。

X 線回折による結晶構造解析から、CoFeB 鋼帯が(110)配向した体心立方格子を形成していることを確認した。格子定数は、0.286 nm であった。

また、膜の組成が、 $(\text{Fe}_{0.7}\text{Co}_{0.3})_{0.93}\text{B}_{0.07}$ であることも誘導結合プラズマ発光分析 (ICP-OES)法を用いて分析した。

今回の結果は、真空成膜法を用いて $1\mu\text{m}$ の鋼帯が作製可能であることを示している。当日は、交流磁場に対する応答測定の結果等も含め発表を行う。

参考文献

- 1) 藤崎敬介「パワーエレクトロニクスで励磁される磁性材料」第41回日本磁気学会学術講演会 S-2,シンポジウム, パワーエレクトロニクスで励磁される磁気・磁性材料の研究の必要性, 平成29年9月22日, 九州大学.
- 2) 中川茂樹「斜方入射スパッタ粒子を利用して作製した高異方性磁界を有する FeCoB 膜」日本磁気学会誌まぐね, 7, 26, (2011).

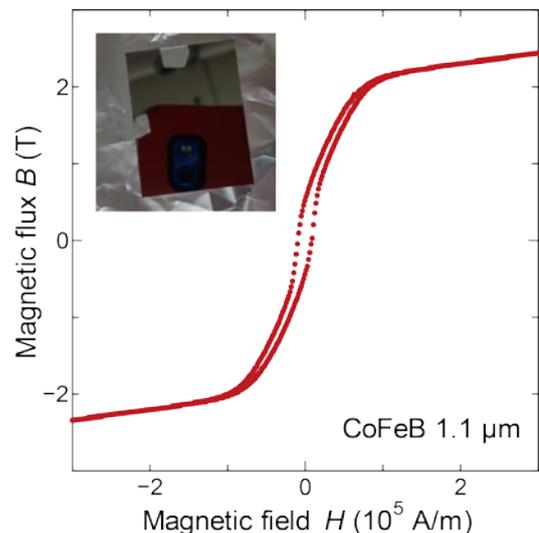


Fig. 1. DC magnetic hysteresis loops for a 1- μm -thick CoFeB steep strip on a glass substrate. The inset is the photograph of the steep strip.

軟磁性金属扁平粉末を用いた高周波電源用薄型磁心材料の開発

御子柴 駿, 嶋 博司, 茶谷 健一
(株式会社 トーキョー)

Soft magnetic metal flake composite suitable for high frequency, low profile power supply.

S. Mikoshiba, H. Shima, K. Chatani
(TOKIN Corporation)

はじめに

MPU や GPU など高性能プロセッサの性能向上に伴う供給電流の増加は著しく, DC-DC コンバータからプロセッサへの給電経路で発生するジュール損失の削減が課題となっている. 損失削減の手法として, プロセッサの直下やパッケージに DC-DC コンバータを形成し, 給電経路を短縮することによる消費電力削減が挙げられる. ここでチョークコイルは DC-DC コンバータを構成する部品の中で大きな体積を占めるため, プロセッサの直下に配置するためには, コイル磁心の小型・薄型化は必須である. スイッチング周波数を MHz 超として構成部品を小型・薄型化することが考えられるが, フェライト系材料や従来の金属系圧粉体などは一般に脆性を示すため, 割れ等の問題を生じ薄型化に限界がある.

そこで本報告では, 薄型磁心を実現するために, 表皮深さ程度の厚さを持つ扁平状粉末を高充填成形した磁心の磁気特性について報告する.

実験方法

ガスアトマイズ法で作製したセンダスト粉末(Fe-Si-Al)を, ボールミルにて鍛造し扁平状粉末を用意した. 扁平粉末の配向にはドクターブレード法を採用し, 扁平粉末とシリコンレジン, 増粘剤, 溶剤を混合して得たスラリーをシート状に成形した. 得られたシートに加圧成型と熱処理を施し, 扁平粉末を一様に配向させた磁心を作製した. 評価に使用する磁心の寸法は外径 26 mm×内径 16 mm×厚さ 0.5 mm とした. 初透磁率はインピーダンスアナライザ, 鉄損は交流 B-H アナライザ, 磁化特性は直流 B-H アナライザで測定した. また構造観察には走査電子顕微鏡 (SEM)を用いた.

実験結果

Fig. 1 に平均長径 40 μm , 平均厚さ 1.5 μm に鍛造した扁平粉末を用いて作製した磁心の断面図を示す. 扁平粉末の充填率は 70 vol. %を示し, 扁平粉末の一様な配向が確認された. また扁平粉末が交互に積み重なった構造を有するため, 面直方向に亀裂が進展しにくいと考えられる. すなわち曲げ応力に対し靱性を示し, 薄型磁心に適した構造であると推察される.

Fig. 2 に上記磁心の複素透磁率 μ' , μ'' を示す. μ' は 280 の値を 4 MHz 程度でも維持しており, 既存の金属系圧粉磁心よりも優れた軟磁気特性を有している. これは数 MHz の周波数で想定される表皮深さ程度の厚さを持つ扁平粉末を, 磁束の方向に対し一様に配向させたことによる電流の抑制と, 充填率 70 vol. %の高充填を同時に実現できたためだと考えられる.

本磁心の構造, 扁平粉末の厚さと鉄損の関係については当日詳細に報告する.

参考文献

- 1) F. C. Lee et al., *IEEE Trans. Power Electron.*, **28**, 4127-4136 (2013).

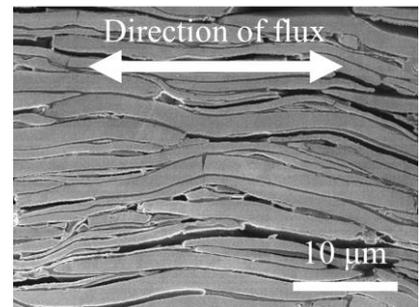


Fig. 1 Cross section of flake composite core. The average length of flake is 40 μm , thickness is 1.5 μm .

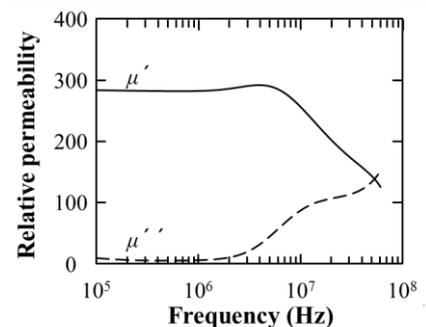


Fig. 2 The relative permeability of flake composite core in Fig. 1.

大電流用低背インダクタの開発

○嶋博司、御子柴駿、茶谷健一
(株式会社トーキン)

Development of low height inductor for high current

H.Shima, S.Mikoshiba, K.Chatani
(TOKIN Co.)

はじめに

近年、FPGA やサーバー用プロセッサを駆動する DC/DC コンバータにおいて、低電圧高電流化、スイッチングの高周波化が求められている。またこれら DC/DC コンバータに搭載されるインダクタにおいても、大電流対応、損失低減が求められている。

今回、軟磁性金属扁平粉を含む磁心(扁平粉磁心)を用いてインダクタを作製し、既存のインダクタとの特性比較を行った。その結果、扁平粉磁心を用いたインダクタが低背化に適することが明らかとなった。

実験方法

扁平粉磁心の外周に金属導体を配置・接合した構造(Fig.1)、扁平粉磁心を基板に埋め込んだ構造(Fig.2)のインダクタを作製した。これらのインダクタについて直流重畳特性(Fig.3)、直流電気抵抗を測定し既存のインダクタとの性能比較を行った。



Fig.1 扁平粉磁心を用いたインダクタ

実験結果

インダクタの特性を比較するにあたり①インダクタンス L 、②許容最大電流 I_{sat} 、③直流電気抵抗値を DCR とし、インダクタの性能指標を

$$L \times I_{sat} / DCR$$

で定義した。

扁平粉磁心を用いたインダクタは、特にインダクタ高さの制限が大きい場合に優れた特性を示した。これは今回作製したインダクタの構造がラテラルフラックス型であるためと考えられる¹⁾。

また基板に内蔵した場合、省スペース化が可能になる他、プロセッサ直下にインダクタを配置することで、基板パターンによる銅損も削減することができる。

以上より、インダクタの低背化設計において扁平粉磁心を用いたインダクタが優位性を示すと言える。

参考文献

- 1) Qiang Li, Fred C. Lee, "High Inductance Density Low-Profile Inductor Structure for Integrated Point-of-Load Converter", 2009 IEEE Applied Power Electronics Conference and Exposition (APEC), Washington, District of Columbia, Feb. 15 - 19, 2009, pp. 1011 - 1017.

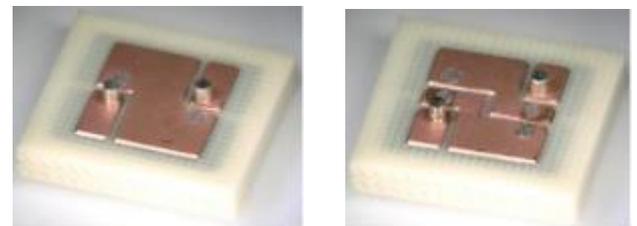


Fig.2 扁平粉磁心を基板に内蔵したインダクタ
2ターン(左)、3ターン(右)

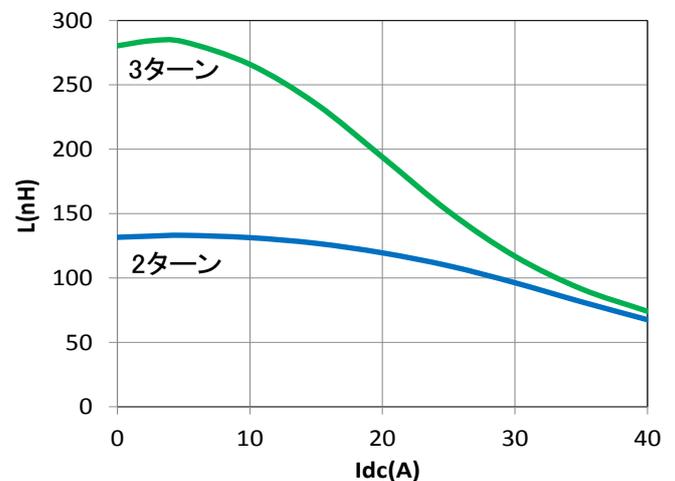


Fig.3 基板内蔵型インダクタの直流重畳特性

LED ストロボ照明による方向性電磁鋼板の励磁状態磁区観察

小田切 雄介、柳沢 栄二、目黒 栄、斉藤 伸* (ネオアーク株式会社、*東北大学)

Strobe method magnetic domain observation of
oriented electrical steel sheet in condition of excitation using LED light source

Y. Odagiri, E. Yanagisawa, S. Meguro, S. Saito* (Neoark Corporation, *Tohoku University)

はじめに

近年、地球温暖化対策として低炭素社会実現のために様々な取り組みが行われている。電磁鋼板は変圧器やモーターのコア材として幅広く活用されており、その性能改善はエネルギー利用効率上昇に直結する。電磁鋼板の磁気特性把握の手法としては商用周波数での実働状態における磁区観察が有用である。我々はこれまで磁気光学 Kerr 効果を利用した cm オーダ領域の広視野磁区観察装置の開発を行ってきた [1]。一般に商用周波数励磁下で磁区観察を行うためには、おおよそ 1000 fps 以上の高速度カメラを用いる必要がある。しかし、早いフレームレートにおける観察では 1 フレームの露光量が微弱となり、特に広視野観察において品位の高い観察像を得ることが困難となる。そこで我々はパルス駆動 LED を光源としたストロボ法を用いて商用周波数駆動における電磁鋼板の動的磁区観察を可能とする装置開発を行ったので報告する。

観察原理と装置構成

Fig. 1 に今回開発したストロボ法を適用した磁区観察装置のブロック図を示す。2 チャンネルのファンクションジェネレータを用い、一つのチャンネルで 50 Hz の正弦波信号を出力し、その信号を元に励磁用電源で交流磁場を発生させた。もう一つのチャンネルではパルス信号を出力して光源のパルス駆動を行った。光源を短時間点灯することで、高速な磁化挙動中の点灯時の励磁タイミングでの磁区像を切り出すことが可能となり、2 チャンネル間の位相差を変更していくことで磁区変化の撮像が可能となる。

光源には白色 LED を採用した。LED の点灯時間は 200 μsec とし、観察に用いるカメラのシャッター速度を 0.5 sec とした。約 25 発のパルスにより得られる光学情報を積算することで磁区像を取得した。試料を商用周波数で励磁するためにパーマロイコアの電磁石を製作した。この電磁石では 100 V、10 A 出力の励磁用電源と組み合わせ、60 Hz の周波数において 1 kOe 振幅の交流磁場を発生可能である。

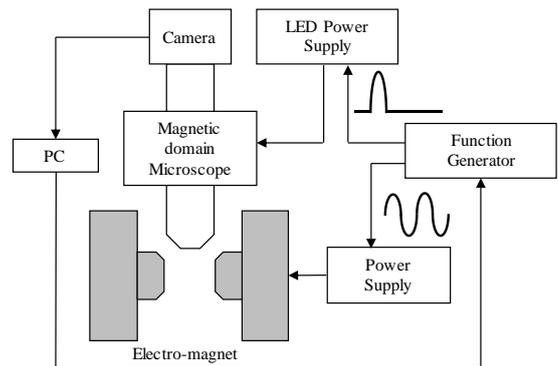


Fig.1 Block diagram of new developed equipment with stroboscopic irradiation by LED.

観察結果

Fig. 2 に方向性電磁鋼板の観察結果を示す。周波数 50 Hz、磁場振幅 800 Oe にて試料を励磁し、磁場がほぼ 0 Oe となるタイミングで像観察した。磁壁が明瞭な領域と不明瞭な領域が確認できる。これは 25 回の観察像において磁壁移動の再現性に分布があることを示唆している。このように商用周波数励磁での時間分解磁区観察は、比較的低い周波数で励磁した場合の磁化過程の再現性やヒステリシス損失の解析に有用な知見を与えるといえる。講演では、アモルファスリボンについての観察結果も報告する予定である。

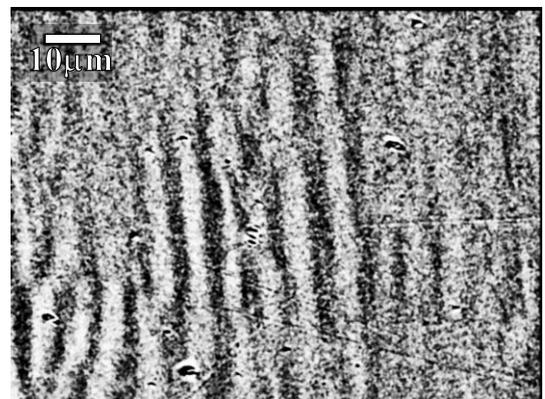


Fig. 2 Magnetic domain of electrical steel with applying the magnetic field of 50 Hz.

参考文献

- 1) S. Meguro et al.: 28th Ann. Conf. Magn. Soc. Jpn., 24aF-9 (2004).

自己フラックス法を用いた六方晶フェライト単結晶の作製

佐保拓未、柿崎浩一、神島謙二
(埼玉大学)

Single crystal growth by self-flux method of hexagonal ferrites

T. Saho, K. Kakizaki, K. Kamishima
(Saitama Univ.)

1. 緒言

六方晶フェライトは、Sブロック $((2\text{MeFe}_2\text{O}_4)^{0\pm}, (2\text{Fe}_3\text{O}_4)^{2+})$ 、Rブロック $((\text{BaFe}_6\text{O}_{11})^2)$ およびTブロック $((\text{Ba}_2\text{Fe}_8\text{O}_{14})^{0\pm})$ の積層構造となっている(Meは二価遷移金属イオン)。これらのブロックの組み合わせにより、様々な構造を形成する。その構造に応じて硬磁性材料にも高周波軟磁性材料にもなりうる。¹⁾ 本研究では、フラックス法を用いて6種類の既知構造の六方晶フェライト単結晶を作製し、その作製条件および磁気特性を調査した。

2. 実験方法

試料は自己フラックス法によって作製した。フラックスとして BaB_2O_4 ($T_m = 1105^\circ\text{C}$)を選択した。原料は BaCO_3 , ZnO , $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$, B_2O_3 を用いた。六方晶フェライトの化学量論組成通りに秤量し、この組成とフラックスが25:75 (75 mol%), 50:50 (50 mol%), 75:25 (25 mol%)のモル比になるように秤量した。これらを混合し、白金るつぼに充填した。1250°Cで5時間保持した後、10°C/hで1050°Cまで徐冷し、1050°Cからは放冷した。生成物から酸洗浄によりフラックスを除去し、六角板状の単結晶試料を得た。この試料を、大きさによって>1, 1~0.3, <0.3 mmに分けて回収した。得られた試料の結晶相は、粉末X線回折(XRD)を用いて同定し、磁気特性は振動試料型磁力計(VSM)を用いて調査した。

3. 結果と考察

図1は各組成で作製した試料のX線回折図を示す。単結晶の大きさにはばらつきがあったものの、目的の単結晶はすべて得られた。

図2は各試料の熱磁気曲線である。M型とY型は参照データと近いキュリー温度が得られた。²⁾ Z型はM型とY型が積層した構造となっており、キュリー温度はそれらの中間の値となった。また、X型とU型はそれぞれM型とW型またはZ型の中間の積層構造となっているため、キュリー温度も各フェライトの中間の値が得られた。

RブロックとSブロックのみで構成される構造はフラックスが75 mol%で、Tブロックを含むものはフラックスが25, 50 mol%で良質な単結晶が得られた。これは、Rブロックからなる構造とTブロックからなる構造の溶解度が異なっており、Tブロックからなる構造の方が、溶解度が高いためであると考えられる。

六方晶フェライトに含まれるブロックにより、生成のし易さに違いがあることが明らかになった。この結果より、さらに複雑な積層構造をもつフェライト³⁾を作製できる可能性がある。

参考文献

- 1) 平賀貞太郎 他, フェライト 丸善株式会社 (1986) 6, 18.
- 2) 近角聡信 他, 磁性体ハンドブック 朝倉書店 (1975) 636~644.
- 3) J. A. Kohn and D. W. Eckart, Zeit. Krist., 119 (1964) 454.

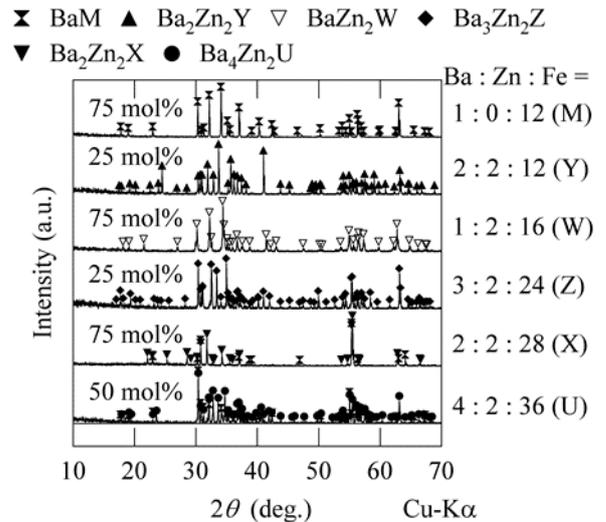


図1. 組成の異なる各試料のX線回折図

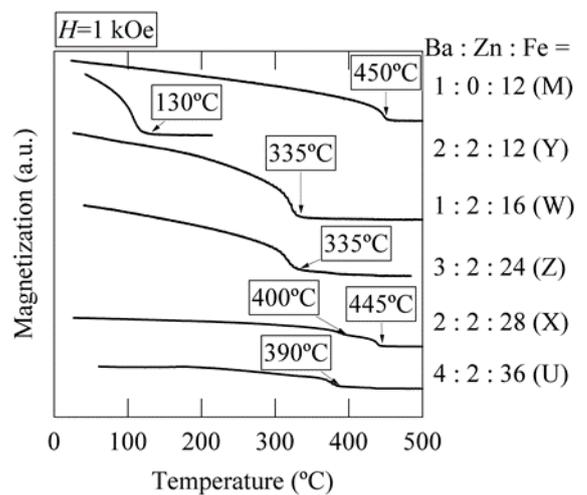


図2. 組成の異なる各試料の熱磁気曲線

エピタキシャル $\text{bcc-Fe}_{100-x}\text{Co}_x$ 合金薄膜の回転磁界中における磁歪挙動

芹澤伽那^{1,2}・川井哲郎¹・大竹充¹・二本正昭²・桐野文良³・稲葉信幸⁴
 (¹横浜国大, ²中央大, ³東京藝大, ⁴山形大)

Magnetostriction Behaviors of $\text{Fe}_{100-x}\text{Co}_x$ Alloy Epitaxial Thin Films under Rotating Magnetic Fields

Kana Serizawa^{1,2}, Tetsuroh Kawai¹, Mitsuru Ohtake¹, Masaaki Futamoto², Fumiyoshi Kirino³, and Nobuyuki Inaba⁴
 (¹Yokohama Nat. Univ., ²Chuo Univ., ³Tokyo Univ. Arts, ⁴Yamagata Univ.)

はじめに Fe および Fe-Co 合金は代表的な軟磁性材料であり、トランスなどの電磁エネルギー変換機器からセンサーなどの磁気デバイスまで幅広く用いられている。これらの応用では、飽和磁化や保磁力などの基本磁気特性に加え、磁歪特性の制御もしばしば要求される。我々は、これまで、結晶方位が異なる MgO 単結晶基板上に $\text{Fe}_{70}\text{Co}_{30}$ (at. %) 合金膜をエピタキシャル成長させ、その磁歪特性を回転磁界を用いて調べてきた¹⁾。本研究では、Co/Fe 組成を変化させることにより $\text{Fe}_{100-x}\text{Co}_x$ 合金膜を形成し、組成が磁歪挙動に及ぼす影響について系統的に調べた。

実験結果 いずれの組成においても、Mg(001), MgO(110), MgO(111)/ Al_2O_3 (0001)基板上には、それぞれ、bcc(001)単結晶, bcc(211)双結晶, bcc(110)複合エピタキシャル膜が形成された。また、磁化曲線を測定した結果, Fe, $\text{Fe}_{70}\text{Co}_{30}$, $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ 膜の順に磁気異方性が減少する傾向が認められた Fig. 1(a-1)および(a-2)にそれぞれ Fe(001)単結晶膜の bcc[100]および bcc[110]方向に対して観察を行った磁歪の出力波形を示す。いずれの観察方向においても、低磁界強度では、磁気異方性により磁化と回転磁界方向が一致していないため²⁾, Fig. 1(a-1)ではバスタブ状, Fig. 1(a-2)では三角状の波形が現れている。磁界強度の増加に伴い、磁化と磁界方向が一致し、正弦波に近づく傾向が認められる。Fig. 1(b)および(c)に $\text{Fe}_{70}\text{Co}_{30}$ および $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ 膜の磁歪波形をそれぞれ示す。磁気異方性の減少に伴い、より低磁界強度で正弦波となっていることが分かる。また、1.2 kOe の磁界印加時の出力波形から求めた Fe, $\text{Fe}_{70}\text{Co}_{30}$, $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ 膜の磁歪定数(λ_{100} , λ_{111})は、それぞれ、(25×10^{-6} , -24×10^{-6}), (170×10^{-6} , 11×10^{-6}), (70×10^{-6} , 62×10^{-6})となり、バルク結晶³⁾と同様に $x = 30$ の組成付近で大きな λ_{100} が現れることが分かった。当日は、bcc(211)双結晶および bcc(110)複合膜の磁歪挙動についても報告する。

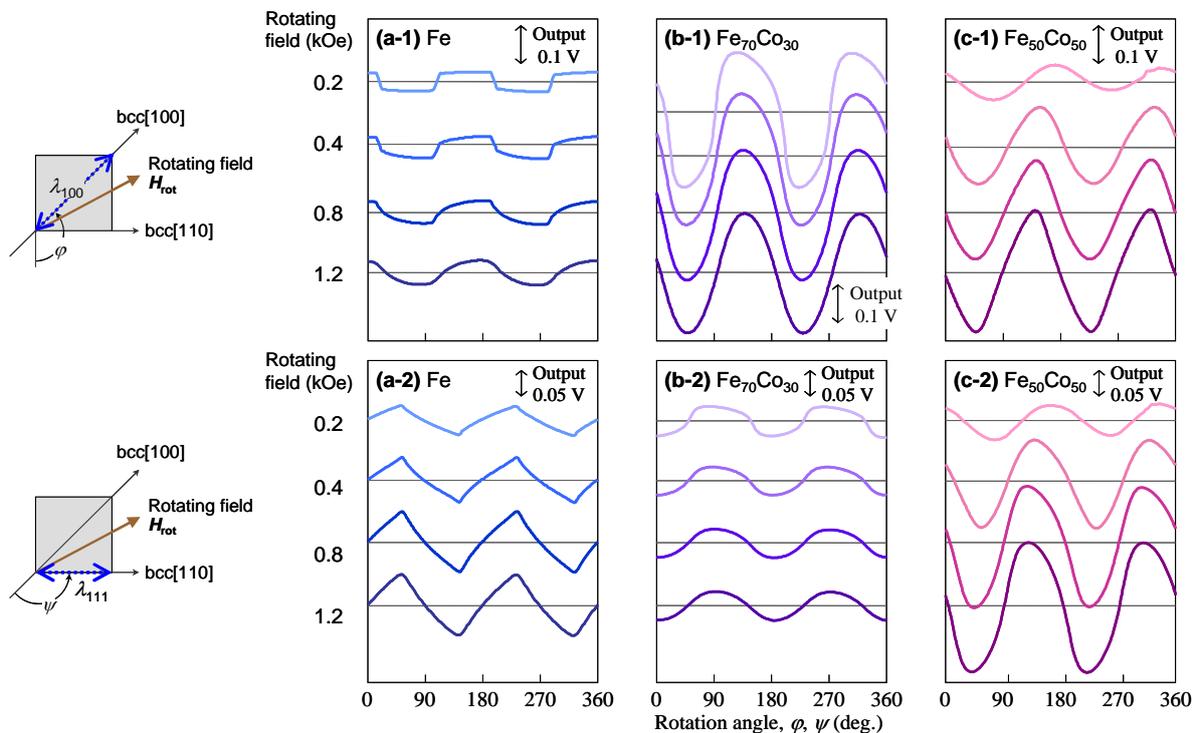


Fig. 1 Output waveforms of magnetostriction for bcc(001) single-crystal (a) Fe, (b) $\text{Fe}_{70}\text{Co}_{30}$, and (c) $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ films measured parallel to (a-1)-(c-1) bcc[100] and (a-2)-(c-2) bcc[110] under different rotating magnetic fields.

参考文献

- 1) 芹澤伽那, 川井哲郎, 大竹充, 二本正昭, 桐野文良, 稲葉信幸: 第41回日本磁気学会学術講演会概要集, p.166 (2017).
- 2) T. Kawai, T. Aida, M. Ohtake, and M. Futamoto: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **39**, 181 (2015).
- 3) 近角聡信: 強磁性体の物理, p.122 (1963).

Thickness and growth temperature dependence of soft magnetic properties of (FeCo)-Si alloy thin films

K. Abe^{1,2}, Shuang Wu^{1,3}, Y. Ariake^{1,2}, I. Kanada^{1,2}, T. Mewes^{1,3}, G. Mankey^{1,3}, Y. Tanaka²,
C. Mewes^{1,3}, and T. Suzuki^{1,4,5}

¹Center for Materials for Information Technology, The University of Alabama, Tuscaloosa, AL 35487 USA

²Materials Development Center, TDK Corporation, Narita 286-0805, Japan

³Department of Physics and Astronomy, The University of Alabama, Tuscaloosa, AL 35487 USA

⁴Department of Metallurgical and Materials Engineering, The University of Alabama, Tuscaloosa, AL 35487 USA

⁵Department of Electrical and Computer Engineering, The University of Alabama, Tuscaloosa, AL 35487 USA

Iron-based crystalline alloys with low effective damping parameter have potential applications for future high-frequency devices. Recent work on Fe-Co-Al alloy thin films report an effective damping parameter as low as about 0.0004 for a composition of $\text{Fe}_{73}\text{Co}_{25}\text{Al}_2$ measured by FMR over a frequency range from 12 to 66 GHz.^{1,2,3} Although (FeCo)-Si alloy thin films have been extensively studied,^{4,5} very little information can be found in literature about the relation between effective damping parameter and structural properties. In this paper, the thickness and growth temperature dependences of soft magnetic properties of $(\text{Fe}_{75}\text{Co}_{25})_{95}\text{Si}_5$ alloy thin films are presented.

Multilayers of $[\text{Fe}(0.35 \text{ nm})/\text{Fe}_{66}\text{Co}_{34}(1.1 \text{ nm})/\text{Si}(0.14 \text{ nm})] \times N$ were sputter-deposited onto MgO (100) single crystal substrates using DC magnetron sputtering, where N is the number of repetitions. Deposition was carried out in Ar atmosphere of 4 mTorr. The substrate-deposition temperature T_s was varied from ambient to approximately 300 °C. An in-plane field of 50 Oe was applied during deposition to induce a uniaxial magnetic anisotropy. A 5 nm thick Ru layer was over-coated to prevent oxidation. Structural analyses were performed by XRD and TEM. Measurements of magnetic properties were carried out by VSM and longitudinal MOKE. The magnetization dynamics was evaluated by ferromagnetic resonance (FMR) at room temperature over a frequency range from 12 to 66 GHz.

Figure 1 shows the dependence of (a) saturation magnetization M_s , (b) coercivity H_c , and (c) effective damping parameter α_{eff} on film-thickness d at different T_s . It is seen that M_s tends to decrease slightly with d from about 1,700 to 1,500 emu/cm^3 , while H_c initially increases with d , and then decreases. The α_{eff} rapidly decreases with d , and then slightly increases for both the deposition temperatures.

The work is in part supported by the MINT-TDK collaboration program.

References

- 1) I. Kanada et al., AIP Advances, 7, 056105 (2017).
- 2) Y. Ariake et al., IEEE Trans. Magn., 53, 11 (2017).
- 3) Y. Ariake et al. AIP Advances 8, 056119 (2018).
- 4) M. Hayakawa et al., IEEE Trans. Magn., 23, 5 (1987).
- 5) L. Xi et al., Physica B 405,608 (2010).

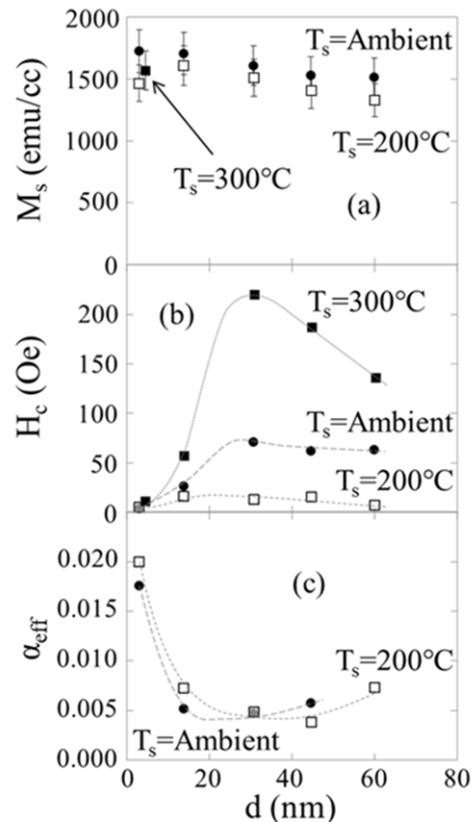


Fig. 1 Thickness dependence of (a) saturation magnetization M_s , (b) coercivity H_c , and (c) effective damping parameter α_{eff} for $(\text{Fe}_{75}\text{Co}_{25})_{95}\text{Si}_5$ films deposited onto MgO(100).

有機金属分解法による亜鉛フェライトの合成と磁気特性

安達信泰、中田勇輔、太田敏孝
(名古屋工業大学)

Preparation and Magnetic Properties of ZnFe_2O_4 by MOD Technique

N. Adachi, Y. Nakata, T. Ota (Nagoya Institute of Technology)

1.はじめに

ZnFe_2O_4 は、可視光領域に透過性のあるフェライトの一つであり、反強磁性を示すことで知られている。最近、急冷法やPLD法により作製した ZnFe_2O_4 結晶では、強磁性を示す報告がなされている^{1,2)}。我々は、有機金属分解法により、保磁力を示す ZnFe_2O_4 薄膜が作製できることを見出した。もともとのイオン配置は、 Zn^{2+} イオンが四面体位置、 Fe^{3+} イオンが八面体位置にあるが、一部の Fe^{3+} イオンが四面体位置に入ることによってフェリ磁性の準安定相ができると考えられている。本研究では、熱処理結晶化過程を磁化の温度変化、磁気共鳴の実験を行い、結晶化過程の違いによる ZnFe_2O_4 薄膜の磁気特性の変化を調べることを目的とした。

2. 実験方法

薄膜は、有機金属分解(MOD)法を用いて、シリカガラス基板上に作製した。溶液滴下後は、 100°C で乾燥し、 300°C で仮熱処理を行い、必要な膜厚まで、この工程を繰り返し、最後に、 600°C で ZnFe_2O_4 を熱処理結晶化させた。作製した試料に対し、XRDによる結晶の評価、SEMによる表面と断面と微構造観察、SQUIDとESRによる磁気特性の評価を行った。

3. 結果と考察

結晶化した薄膜は、単相の ZnFe_2O_4 を示す多結晶回折ピークのみが観測され、二次相によるピークは観測されなかった。EDSによる組成分析ではZnやFeの濃度偏析が見られなかったことから、組成比の均一な膜を得ることが確認できた。Fig.1に作製した膜の1000 Oeでのfield cool時のM-T曲線を示す。自然放冷した膜では15 K付近にカスプが現れ、ネール点と考えられる転移が観測されたが急冷した膜では、低温での磁化率の減少は見られなかった。4KでのM-H曲線では、Fig.2に示すように700 Oe程度の保磁力を示す強磁性ヒステリシス曲線が観測され、急冷した膜は自然放冷した膜よりも大きな磁化が観測された。磁気共鳴のスペクトルの温度変化では、極低温領域では、ゼロ磁場で共鳴が起きている振る舞いが観測され、温度上昇とともに共鳴磁界が高磁場側にシフトする結果が得られた。反強磁性相と強磁性相が共存し、四面体位置の Fe^{3+} イオン置換量が強磁性の原因と考えれば、熱処理過程でその割合を制御できる可能性が考えられる。

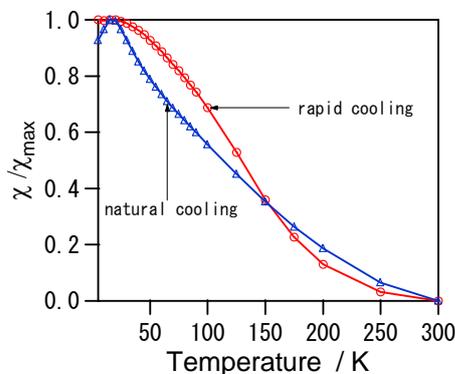


Fig.1 The field-cool M-T curve of ZnFe_2O_4 film under the magnetic field of 1000 Oe

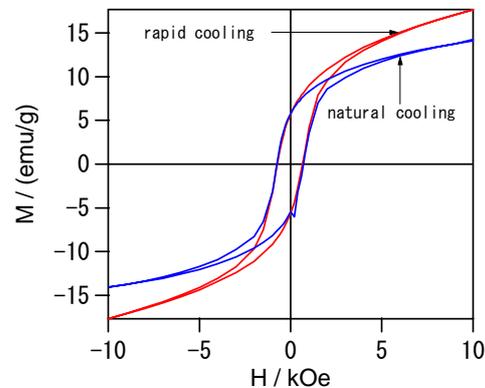


Fig.2. The H-H curves at 4 K of ZnFe_2O_4 films annealed at 600°C .

参考文献

- 1) K. TANAKA et.al., J. Phys. Chem Solids Vol 59, No. 9, pp. 1611-1618 (1998)
- 2) N. Wakiya et.al. J. Mag. Mag. Mat. 310 (2007) pp.2546-2548

DES 浴から作製した Fe-Ni 膜の浴添加剤による軟磁気特性改善

柳井武志, 山口知輝, 森村隆夫, 中野正基, 福永博俊 (長崎大学)

Improvement in soft magnetic properties of Fe-Ni films prepared in DES-based plating baths with additives
T. Yanai, T. Yamaguchi, T. Morimura, M. Nakano, H. Fukunaga (Nagasaki University)

はじめに

電解めっき法は、①高速成膜可能、②装置が簡素、③常温・常圧下での成膜が可能、などの利点を有しており、磁性膜作製の手法として魅力的な方法の一つである。磁性めっき膜に関する報告は、これまでに多くの研究者によってなされているが一般的に、水を溶媒とするものが多い。水は安価で扱いやすい溶媒であるが、比較的低電位で水の電気分解が生じるため、例えば希土類元素のような析出電位が大きく卑な元素を析出させることは困難である。そこで我々は、水に替わる新しい溶媒としてイオン液体の一種である深共晶溶媒 (DES: Deep Eutectic Solvent) に着目し、検討を重ねてきた。最近の DES 浴から作製した Fe-Ni 膜に関する研究で、一級アミンを浴添加することで Fe-rich 組成膜にて大きく軟磁気特性が改善できることがわかってきた[1-2]。本稿では、一級アミン添加剤としてアミド硫酸アンモニウムを用いた際の結果について報告する。

実験方法

10 g の塩化コリンと 10 g のエチレングリコールを無色透明になるまで攪拌したものを DES とした。この DES に塩化鉄と塩化ニッケルを合計で 15 g 加えた。膜の組成は、塩化鉄と塩化ニッケルの重量比によって任意の組成に調整した。このめっき浴にアミド硫酸アンモニウムを 3 g 添加した。浴温度は 100°C、電流密度は 66.7 mA/cm² とし、Cu 基板の上に Fe-Ni 膜を成膜した。

実験結果

Fig.1 に保磁力の Fe 組成依存性を示す。Fig.1 には、水溶媒の結果[3]およびマイクロマグネティクス理論で計算した保磁力の計算値も示している。Fig.1 より、DES 浴から作製した Fe-Ni 膜は Fe 組成の増加に伴い、保磁力が減少した。一方、水溶媒の結果および計算値は Fe₂₅Ni₇₅ 付近の組成で低保磁力を示しており、保磁力の Fe 組成に対する振る舞いが大きく異なることが了解される。Fig.2 に Fe₈₀Ni₂₀ 膜の TEM 像を示す。Fig.2 より、柱状の組織が形成されていることが了解される。このような柱状構造は Fe-poor な組成の膜では観測されなかった。よって、Fig.1 の保磁力の変化は Fe 組成の増加に伴い、ランダムな多結晶組織が柱状組織へ変化することが一つの要因として考えられる。Fe を多く含む組成領域で低保磁力を示す現象は結晶磁気異方性や磁気歪みからは予測できない DES 浴の特異的な現象である。本点に関しては現在も検討を継続しており、今後その要因を明らかにしていく予定である。

参考文献

- [1] T. Yanai, T. Yakaguchi *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, **53** (2017) #2004404.
[2] T. Yanai, T. Akiyoshi *et al.*, *AIP Advances*, **8** (2018) #056437.
[3] T. Shimokawa, T. Yanai *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, **48** (2012) 2907.

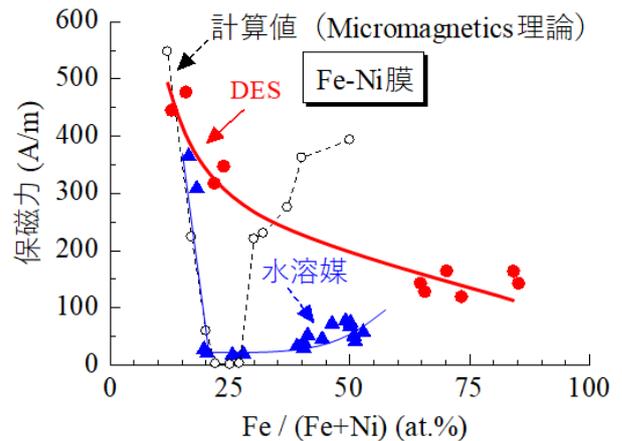


Fig.1 保磁力の Fe 組成依存性

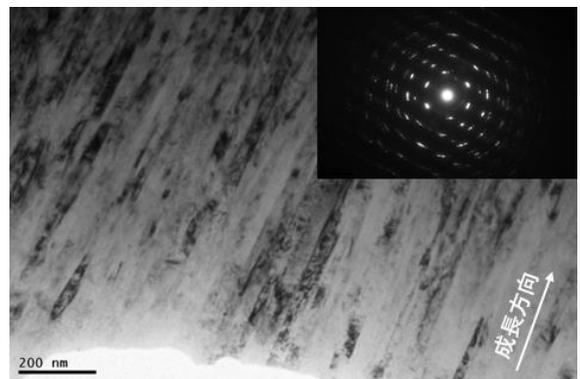


Fig.2 Fe₈₀Ni₂₀ 膜の TEM 像

鉄系金属微粒子へのシリカコートに関する基礎検討

稲垣 悠太郎, 杉村 佳奈子, 藪 直希, 佐藤 敏郎, 曾根原 誠
(信州大学)

Basic investigation on silica coating iron-based metal particles

Y. Inagaki, K. Sugimura, N. Yabu, T. Sato, M. Sonehara
(Shinshu University)

はじめに

電気エネルギーの効率的な運用の要であるパワーエレクトロニクス分野では、高速スイッチング・低 ON 抵抗の特徴を有する SiC/GaN 次世代パワーデバイスの利用に注目が集まっている。SiC/GaN パワーデバイスを用いることで、高効率・小型軽量を両立したスイッチング電源の実現が望めるが、数 MHz 以上を駆動周波数とする磁心材料が Ni-Zn フェライトに限られているのが実情である。筆者らは MHz 帯磁心材料である鉄系メタルコンポジット磁心を提案した。磁心中において粒子を跨いで流れる渦電流による渦電流損失の増加を防ぐために粒子表面に高抵抗被膜を形成し、電氣的に絶縁する必要がある。我々はこれまで、大気中熱酸化、シリカコーティング、酸溶液処理を提案した¹⁾³⁾。本稿では、シリカコーティングについて報告する。

実験方法

本稿では異なるメディアン径の鉄系アモルファス合金粉(以下 Fe-AMO)にシリカコーティングを行い、液相加水分解法(Stöber 法)を採用した。エタノール中に粉末を入れ、超音波洗浄機および攪拌棒を用いて粉末を分散させ、十分な処理時間コーティングを行うことにより粒子に被膜を形成した。

実験結果

Fig. 1 にシリカコーティング Fe-AMO の粒子の断面 SEM 像を示す。Fig. 1 より、シリカ被膜が形成されることが確認できる。Table 1 に 3 種類の Fe-AMO のメディアン径および比表面積を示し、Fig. 2 にそれぞれの Fe-AMO にシリカコーティングを行い、被膜の厚さを測長した結果を示す。横軸は粉末 1 g に対する TEOS の量を 0.04-0.32 [ml/g] の範囲で変化させた際の膜厚である。Fig. 2 より、何れの粒径の粉末においても膜厚は飽和し、粒径が小さいほど飽和領域の膜厚は厚くなることから、線形領域において、同じ TEOS の量でも比表面積が小さいほど膜厚が厚くなることから、線形領域での膜厚は比表面積に依存することが分かる。以上より、シリカコーティングにより形成される被膜は、TEOS の量や粉末のメディアン径、比表面積を加味することで制御が可能であることが明らかになった。

参考文献

- 1) K. Sugimura, et al, *AIP Advances*, **6**, #055932 (2016).
- 2) K. Sugimura, et al, *Annual Conf. IEEJ Fund. and Mat.*, 5-B-p2-2 (2016).
- 3) N. Yabu, et al, *41th Annual Conf. Meeting Magn. Jpn.*, 21pc-8 (2017).

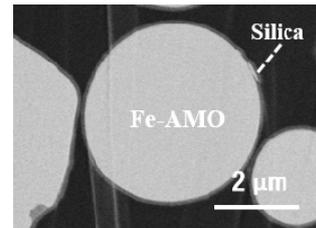


Fig.1 Silica coating on Fe-AMO($D_{50}=3.36 \mu\text{m}$)

Table.1 Three kinds of Fe-AMO

	Fe-AMO		
Median diameter	3.36 μm	5.16 μm	11.13 μm
Specific surface area	0.454 m^2/g	0.312 m^2/g	0.204 m^2/g

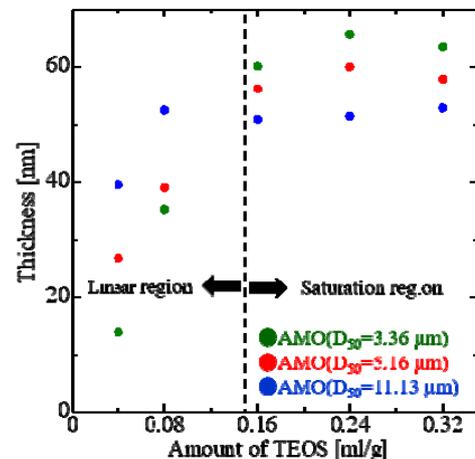


Fig.2 Silica coating on three kinds of Fe-AMO

自然長格子(LaO)ZnPn (Pn=P, As, Sb)の弱い室温強磁性

高瀬浩一、下村大河、高野良紀

(日本大学理工学部)

Room temperature weak ferromagnetism of the natural superlattice (LaO)ZnAs

K. Takase, T. Shimomura, Y. Takano

(College of Science and Technology, Nihon Univ.)

はじめに

希土類層状オキシニクタイト(LaO)ZnPは、ブロッケン層のLaO層と伝導層のZnP層が結晶の c 軸方向に交互積層した層状物質で、酸素は4つのLa原子に、Znは4つのPn原子に四面体的に囲まれた構造を有している。Znの $3d$ 軌道は10個の $3d$ 電子によって全て占められており、このため、この物質は磁性をもたない。

今回、我々は、Znを欠損させることでホールを導入し、磁気モーメントの誘起を試みた。Znを欠損させると、Pn原子の p 軌道に不対電子が生じるか(c)、Znの $3d$ 軌道に不対電子が生じる(d)と期待され、もし、うまくZnに不対電子が生じるなら、これがもとで磁気モーメントが生じる期待される。逆に、(c)の場合だと、価電子帯を構成する p 軌道に不対電子が導入されるので、キャリアの導入により電気抵抗が減少すると考えられる。

実験方法

試料は全て多結晶体であり、固相反応法を用いて作成した。試料の磁化はMPMSを用い、電気抵抗はPPMSを用いて測定した。

実験結果

Fig. 2に今回の試みの一例として、プニコゲンにPを選択した場合である(LaO)Zn_{1-x}Pの電気抵抗の温度依存性(a)と室温での磁化の磁場依存性(M-H)(b)を示す。電気抵抗はZn欠損導入により著しく低下するが、温度依存性は全ての試料で半導体的なままである。一方、M-Hカーブには、 $x=0.3$ で小さなヒステリシスが観測され、強磁性が観測された。

発表当日には、Pn=As, Sbの結果も紹介するとともに、室温で観測される弱い強磁性の起源について議論する。

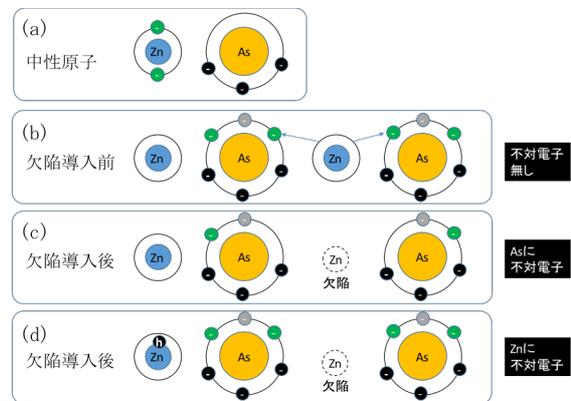


Fig. 1 Conceptual diagram of hole doping

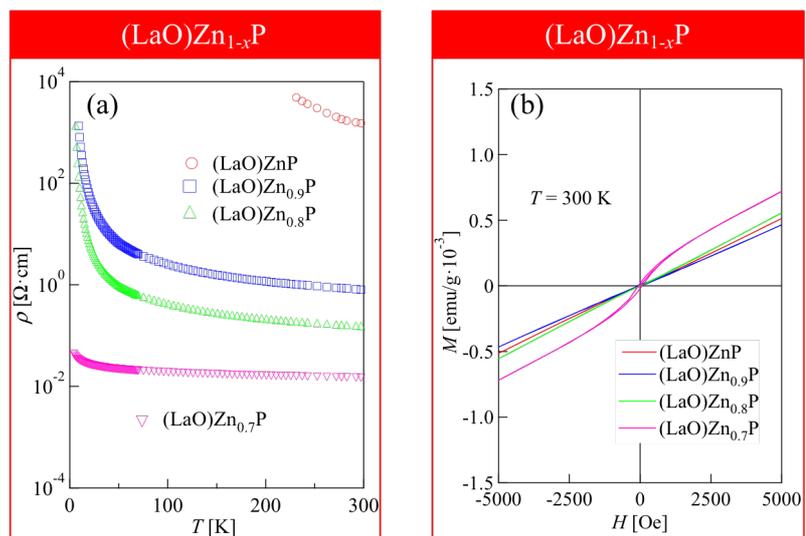


Fig. 2 Temperature dependence of electrical resistivity (a) and magnetic field dependence of magnetization at room temperature (b)

Issues with Micromagnetic Numerical Simulations of Magnetic Structures of Soft Magnetic Materials for Electric Vehicles

F. Akagi¹

¹Dept. of Applied Physics, Kogakuin Univ., Shinjuku 163-8677, Japan

1. Introduction

Ferromagnetic materials are used in the drive motors of electric vehicles. NdFeB magnets are used on the rotating part (or “rotor”) of drive motors and electrical steel is used on the stationary part (or “stator”). In terms of magnetic properties, NdFeB magnets are classified as hard magnetic material and electrical steel as soft magnetic material. Electrical steel has two magnetic characteristics. One is that iron loss (sum of hysteresis and eddy current losses) is low during transformation between electrical and magnetic energies. The other is that high magnetic flux densities are obtained even if low magnetic fields are applied to the soft magnetic materials. We previously reported that we performed micromagnetic numerical simulations of magnetic domain structures in electrical steel¹⁾. Calculation models were assumed to be grain-oriented electrical steel (GOES) for transformer cores with an anisotropy field at 20 kA/m. Magnetization reversal in the GOES occurred by applying a DC magnetic field of 8 kA/m. This DC magnetic field was less than half of the anisotropy field but experimentally equals zero, which corresponds to the coercivity (H_c) of the GOES. Therefore, the DC magnetic field used for the micromagnetic numerical simulations was larger than expected. In this report, we describe issues with using electrical steel in simulation models, and we compare MH-loops between soft and hard magnetic materials to clarify what the issues with the micromagnetic numerical simulations for soft magnetic materials are.

2. Micromagnetic numerical simulation

In this simulation, a dynamic magnetic reversal process was calculated using the Landau–Lifshitz–Gilbert equation as follows:

$$\frac{dM}{dt} = -\gamma(M \times H_{eff}) + \frac{\alpha}{M_s} \left(M \times \frac{dM}{dt} \right), \quad (1)$$

where, M is magnetization and M_s is saturation magnetization²⁾. H_{eff} is an effective field, which is the sum of an external, static, anisotropy, and exchange fields. γ is the gyromagnetic ratio and α is the damping factor.

In our calculations of MH-loops, a model of magnetic material contained $16 \times 16 \times 16$ cubic cells that were 3 nm long. The M_s was 1.0 T, the intercell exchange stiffness constant was assumed to be 1.0×10^{-11} J/m, and the damping constant was 0.02. The cells have uniaxial magnetic anisotropy, which aligned in one direction. The anisotropy field (H_k) was changed from 10–300 kA/m. The external field was defined by a cosine function, of which the frequency was 25 MHz.

3. Results and discussions

Table 1 compares the magnetic characteristics of soft and hard magnetic materials. Magnetic domain wall width (σ) and exchange length (ρ) are given as

$$\sigma = \pi \sqrt{\frac{A}{K_u}}, \quad \rho = \sqrt{\frac{A}{K_u}}, \quad (2)$$

where A is the exchange stiffness constant and K_u is the anisotropy constant. The soft magnetic materials are referred to as GOES and non-GEOS; the hard magnetic materials are referred to as NdFeB for motors and CoCr alloy for hard disk drives. The cell sizes of simulation models are defined by exchange length; the cell sizes must be equal to or less than the exchange length for the NdFeB and CoCr alloy. We must consider the cell size and magnetic domain width for

GOES or non-GOES. The exchange length cannot be calculated and the cell size cannot be determined because the magnetic domain wall width and the exchange stiffness constant are unknown. If the magnetic domain wall width is on the order of 10 nm—which equals 100–150 atoms—the intercell exchange stiffness constant is 2×10^{-13} J/m and the exchange length is about 4.5 nm. Therefore, the cell size should be smaller than 4.5 nm. However, the number of the cell is needed more than 20,000 in the direction of magnetic domain width, because the magnetic domain width is over 100 μm for GEOS. Therefore, simulations of GEOS are very difficult because they are time-consuming and require a lot of memory. As the cell increases in size, simulations of the motions of the magnetic moments in the magnetic domain wall are not precise.

Next, we compared MH-loops between soft and hard magnetic materials to clarify what the issues with the micromagnetic numerical simulations of the soft magnetic materials are. The magnetic materials were assumed to be small, as mentioned in Chapter 2. Figure 1 shows the relationship between H_k and H_c , calculated from MH-loops. The graph in Fig. 1 shows that when the H_k was higher than or equal to 100 kA/m, the H_c was proportional to the H_k . When the H_k was lower than 100 kA/m, the H_c was about 30–40 kA/m. In particular, when the H_k was lower than 20 kA/m, the H_c was larger than H_k . This might be due to the equilibrium between the exchange and static magnetic fields.

We have to solve the above issues in order to simulate soft magnetic materials using a micromagnetic numerical simulation.

Table 1 Comparison of magnetic characteristics of soft and hard magnetic materials.

Magnetic material		Grain size	Magnetic domain width	Magnetic domain wall width (nm)	M_s (T)	K_u (J/m ³)	H_k (kA/m)	Exchange stiffness constant (J/m)	Exchange length (nm)	Cell size (nm)
Soft	GOES	1–2 cm	> 100 μm	unknown	2	2×10^4	20	unknown	-	-
	Non-GOES	($\sim 10 \mu\text{m}$)	> 10 μm							
Hard	Nd-Fe-B	200–1000 (nm)	-	4.4	1.6	5×10^6	6000	1×10^{-11}	1.4	2
	CoCr alloy	< 10 (nm)	-	10.0	< 1.0	$> 1 \times 10^6$	2000	1×10^{-11}	3.2	1–10

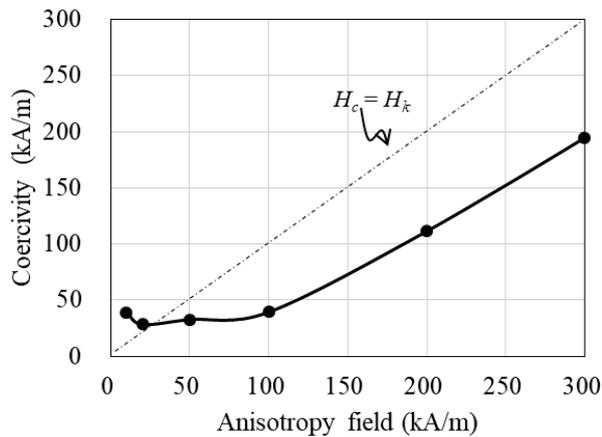


Fig. 1 Anisotropy field dependence of coercivity.

Acknowledgments

We thank Hitachi Corp. for providing us with the use of this simulator.

References

- 1) F. Akagi, K. Fujisaki, The Papers of Joint Technical Meeting on “Rotating Machinery” and “Linear Drives” RM-17-045, LD-17-026, 2017, p. 19.
- 2) F. Akagi, J. Ushiyama, A. Ayano, and H. Miyamoto, “Head and Granular Media for Thermally Assisted Magnetic Recording for Recording Density of 6 Tb/in²,” *IEEE Trans. on Magn.*, Vol. 49, Issue 7, 2013, p. 5667.

Polycrystalline Magnetic Field Analysis of Electrical Steel for Magnetic Multi-Scale

Keisuke Fujisaki
(Toyota Technological Institute)

Electrical steel is mainly used for electrical motor core or transformer due to high magnetic performance and mass production technology. It is polycrystalline material where each crystal has some magnetic domain with saturated magnetization. So it is said to be an important role between magnetic domain and electrical motor in magnetic multi-scale problem. Usually its calculation model of magnetic analysis should be carried out by magnetic domain model such as LLG or so. However, since electrical steel of polycrystalline has a lot of magnetic domains, when all the magnetic domains are considered for numerical calculation, mesh explosion problem will occur. So the polycrystalline of electrical steel should be modeled to avoid it. Here, static magnetic field analysis in finite element method is used for it in some assumptions that equivalent magnetic material constants are used in homogenized method and coordinate transform of magnetic flux density is used¹⁻³).

Figure 1 shows total coordinates in polycrystalline and local coordinates in each crystal. Magnetic anisotropy of each crystal is expressed in local coordinate and continuity of magnetic flux density is expressed in total coordinate⁴). So the coordinate transform between them is carried out. GO (grain oriented steel) material with 56 crystal grains in 80 mm² square are used for calculation in comparison with the measured magnetic property. Crystal orientations as α , β , γ angles defined in Fig. 1 are well organized and they are centralized within several degrees in average.

Figure 2 shows comparison of magnetic flux density distribution between 3D polycrystalline magnetic field analysis and distributed magnetic measurement⁴). Fig. 2 (a) is measured magnetic flux density by needle method with some square and Fig. 2 (b) is calculation one where magnetic flux density distribution as Fig. 3 (c) is averaged in some square of the needle method. The calculation result well expresses the measured one.

Figure 3 shows comparison of inclination angle of magnetic flux density vector \vec{B} between 3D polycrystalline magnetic field analysis and distributed magnetic measurement⁴). Fig. 3 is the calculated inclination angle which is an angle between the easy magnetization direction of the polycrystalline and the magnetic flux density vector, and Fig. 3 (b) is α angle of each crystal grain. Magnetic flux density is expected to flow in polycrystalline in order to follow each crystal orientation. So angle distribution of Fig. 3 (a) and (b) are in good agreement.

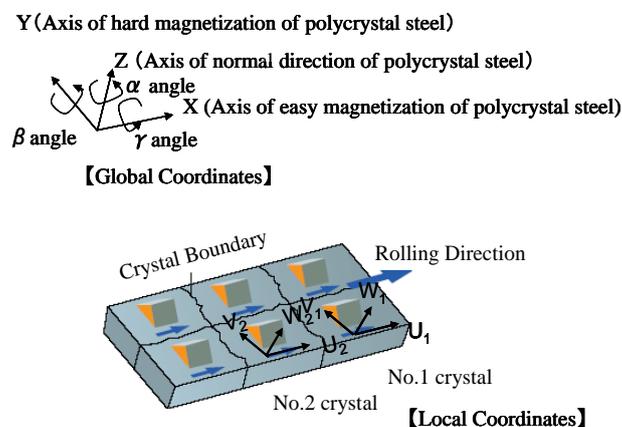


Fig.1. Total coordinates and local coordinates for polycrystalline magnetic field analysis.

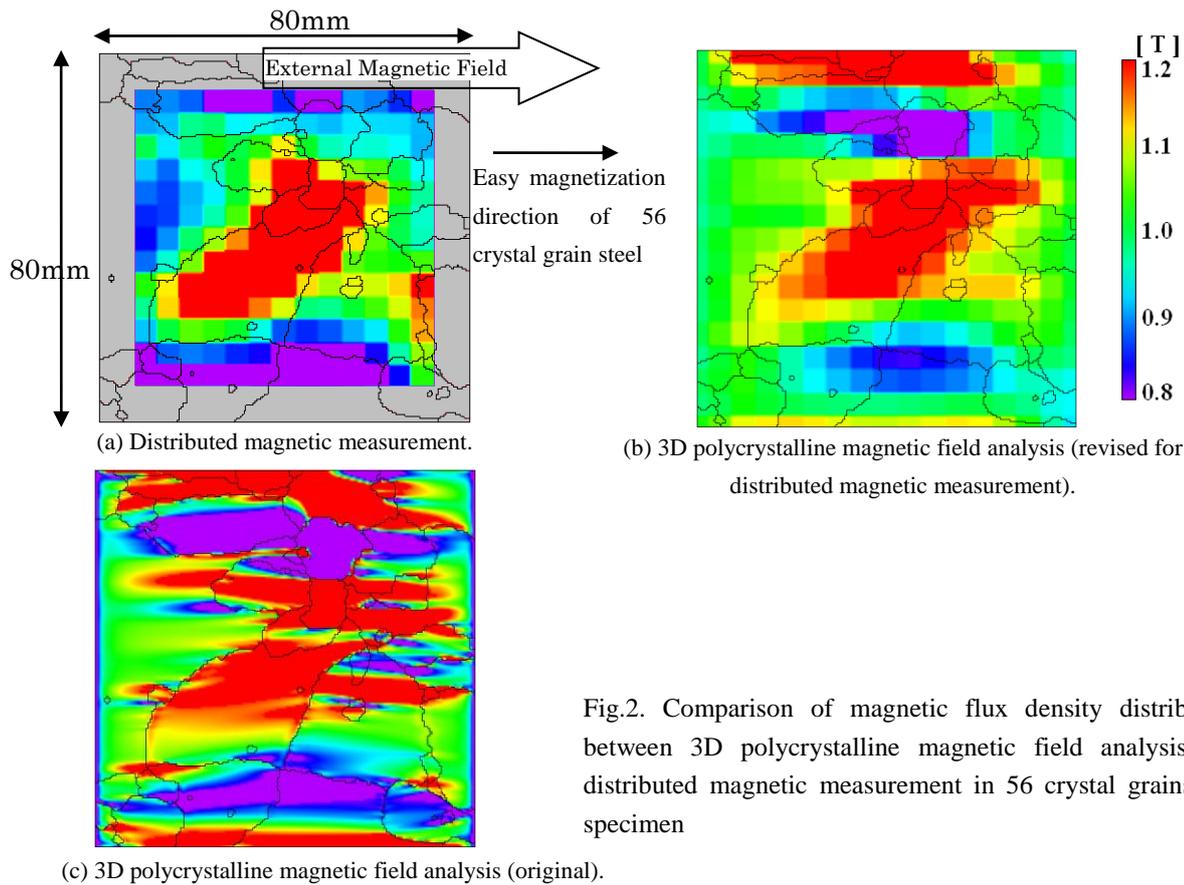


Fig.2. Comparison of magnetic flux density distribution between 3D polycrystalline magnetic field analysis and distributed magnetic measurement in 56 crystal grains GO specimen

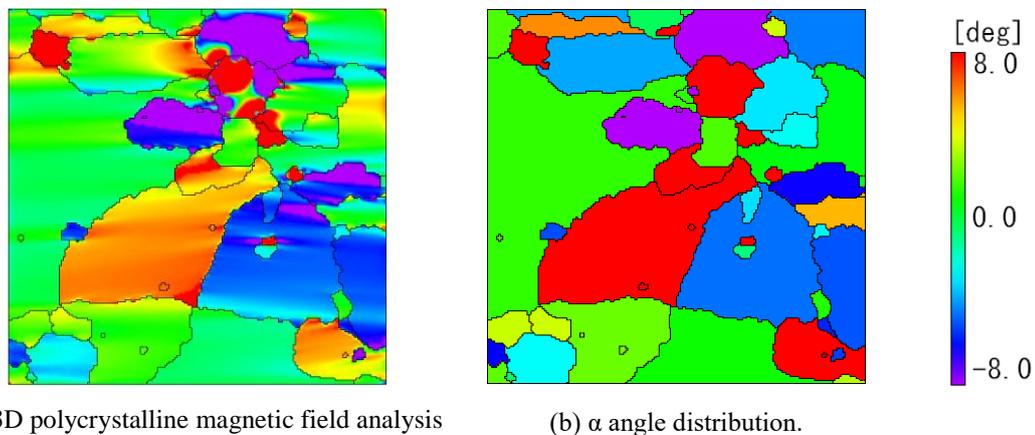


Fig.3. Comparison of inclination angle of magnetic flux density vector \vec{B} between 3D polycrystalline magnetic field analysis and distributed magnetic measurement in 56 crystal grains GO specimen.

Reference

- 1) K. Fujisaki, S. Satoh, "Numerical calculations of electromagnetic fields in silicon steel under mechanical stress," IEEE Trans. on Magn., Vol. 40, No.4, pp.1820–1825, (2004).
- 2) K. Fujisaki, M. Fujikura, J. Mino, S. Satou, "3-dimensional Magnetic Field Analysis by Homogenization Method for Thin Steel Plate," Trans. D, IEEJ, Vol.128, No.3, pp.303-309, (2008).
- 3) K. Fujisaki, T. Tamaki, "Three-dimensional Polycrystal Magnetic Field Analysis of Thin Steel", IEEE Transactions on Magnetics s, Volume 45, No.2, pp.687-693, February, (2009).
- 4) Keisuke Fujisaki, Teruyuki Tamaki, Shouichi Yasuhiro, "Comparison of 3D Polycrystal Magnetic Field Analysis and Distributed Magnetic Measurement," Trans. A, IEEJ, vol.129, no.11. pp. 821-826, 2009.

Harmonic Iron Loss Analysis of Rotating Machines: Practical Macro Modeling for Stress and Hysteresis

Katumi Yamazaki
(Chiba Institute of Technology)

In this symposium, I present harmonic iron loss analysis of rotating machines that considers effects of multi-axial mechanical stress and hysteresis phenomenon by introducing practical macro modeling.

First, the effect of the multi-axial stress on the loss is investigated by material experiments. An approximated modeling, which requires only the measured loss with uniaxial stress, is also introduced. Fig. 1 shows the experimental system¹⁾, in which arbitrary 2-axial stress can be imposed on the specimen of an electrical steel sheet by the actuators noted 1 and 2. The magnetic field is applied along the direction of the force produced by actuator 1. The specimen is an electrical steel sheet with 3% silicon.

The hysteresis loss and the eddy current loss including the excess loss are separated from the measured total core losses at 50 Hz and 200 Hz. Fig. 2 shows the results. It is revealed that both the eddy current and hysteresis losses are affected by multi-axial stress. These losses become maximum when the compressive (minus) σ_1 and tensile (plus) σ_2 are imposed.

This experiment cannot be always carried out for practical design procedure of rotating machines. Approximated modeling is strongly desired. To obtain the approximated multi-axial stress effects, the single axial equivalent stress σ_{eq} has been proposed.

Following expression was derived under the assumption that a same magneto-elastic energy leads to a same characteristics of the magnetic materials²⁾:

$$\sigma_{eq} = \frac{3}{2} \vec{h} \cdot \vec{s} \cdot \vec{h} \quad (1)$$

where \vec{h} is the unit vector along the magnetic field direction, \vec{s} is the deviatoric part of the stress tensor expressed by σ_1 and σ_2 . It is assumed that the variation in core loss with single σ_{eq} along the magnetic field direction is identical to that with multi-axial σ_1 and σ_2 . Therefore, the effect of the multi-axial stress can be estimated only by (1) and the experiment, in which a uniaxial stress is simply imposed along the flux direction.

Fig. 3 shows the calculated variation in the losses only from the measured loss $W(\sigma_1, 0)$ by single axial σ_1 and the equivalent stresses. It is confirmed that the calculated result well express the measured eddy current and hysteresis losses in Fig. 2.

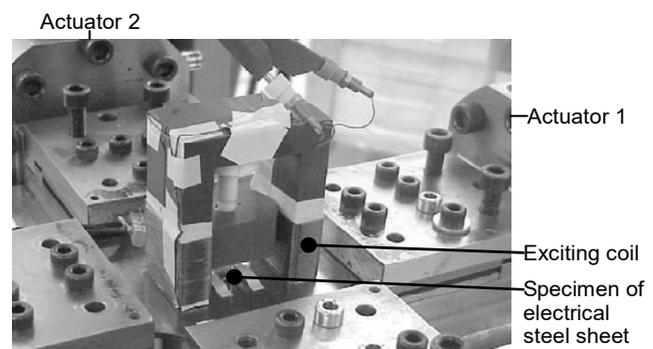


Fig. 1. Experimental system for effect of multi-axial stress¹⁾.

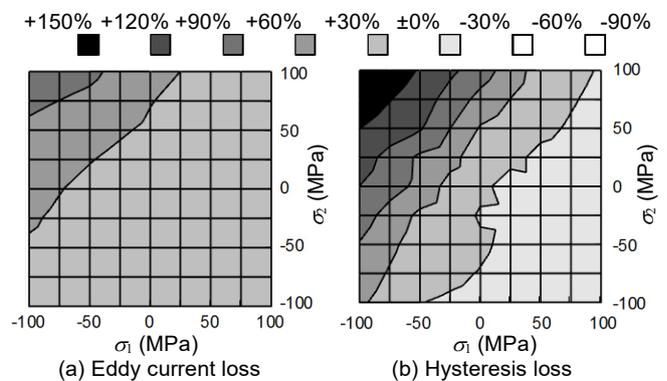


Fig. 2. Measured variation in losses with multi-axial stress.

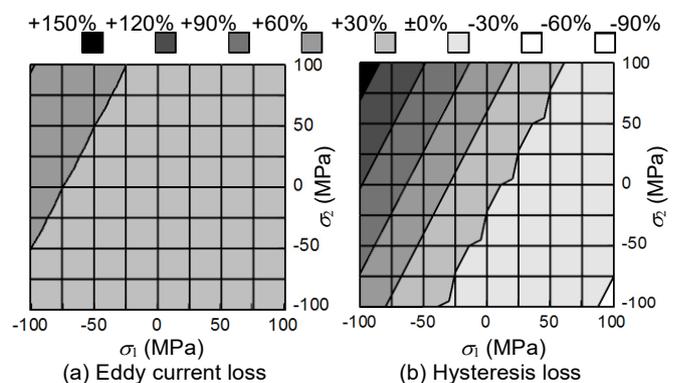


Fig. 3. Calculated losses by $W(\sigma_1, 0)$ and σ_{eq} by (1)

Next, a practical hysteresis modeling including minor loops is proposed³⁾. Fig. 4 shows the concept of this model. The minor loops are approximately determined from the several curves of major loops. Fig. 5 shows the experimental verification of this model by a single sheet test of an electrical steel sheet. The accuracy of the model is confirmed.

Finally, the proposed material modeling is applied to the loss calculation of a 100 kW class interior permanent magnet synchronous motor driven by a PWM inverter (5 kHz carrier). The 2D finite element analysis is carried out due to following equation.

$$\nabla \times \left(\frac{1}{\mu} \nabla \times \mathbf{A} \right) = \nabla \times \mathbf{H}_{eddy,ave} + \nabla \times \mathbf{H}_{hys,ave} \quad (2)$$

where μ is the permeability, \mathbf{A} is the magnetic vector potential, $\mathbf{H}_{eddy,ave}$ and $\mathbf{H}_{hys,ave}$ are the reaction field caused by the eddy currents and hysteresis phenomenon in the core, which are averaged along the thickness of electrical steel sheets. $\mathbf{H}_{eddy,ave}$ is determined by coupling 1D nonlinear time stepping analysis along the thickness of the electrical steel sheet in the core. $\mathbf{H}_{hys,ave}$ is determined by the presented hysteresis model by considering the effect of the stress due to (1).

Fig. 6 shows the calculated flux density waveform at the top of a stator tooth of the motor. The waveform includes high-frequency carrier harmonics. Fig. 7 shows the calculated hysteresis loops, which includes a considerable number of minor loops. It is observed that the differential permeability of the minor loops is considerably smaller than that of the B-H curve used in the conventional analysis. Fig. 8 shows the experimental and calculated iron losses. The accuracy is improved by the proposed method due to the correct estimation of skin effect.

Reference

- 1) M. Rekik, O. Hubert, and L. Daniel, "Influence of a multiaxial stress on the reversible and irreversible magnetic behavior of a 3% Si-Fe alloy", *Int. J. Applied Electromagnetics and Mechanics*, vol. 44, no. 3, 4, pp. 301-315, 2014.
- 2) L. Daniel and O. Hubert, "An equivalent stress for the influence of multiaxial stress on the magnetic behavior," *J. Applied Physics*, vol. 105, 07A313, 2009.
- 3) K. Yamazaki and Y. Sakamoto, "Electromagnetic field analysis considering reaction field caused by eddy currents and hysteresis phenomenon in laminated cores," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 59, no. 3, 1300294, 2018.

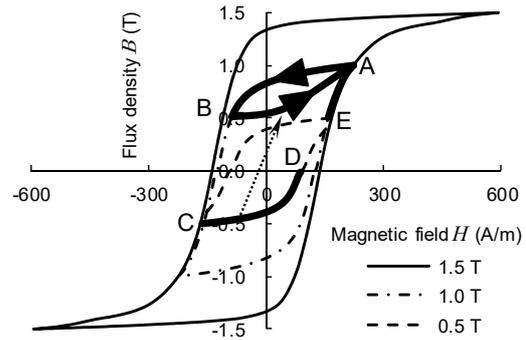


Fig. 4. Minor hysteresis loop modeling.

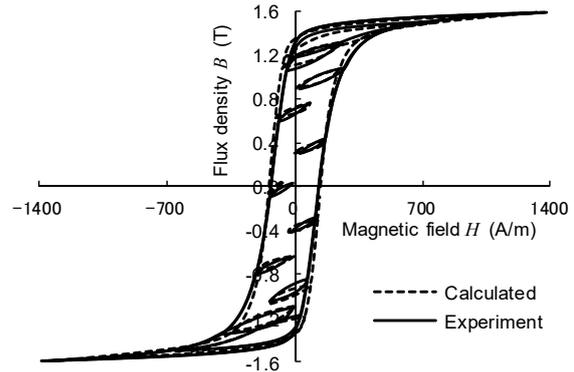


Fig. 5. Experimental verification of hysteresis modeling.

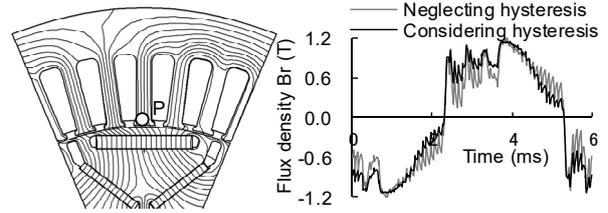


Fig. 6. Calculated flux density waveform (2500 r/min, 88A)

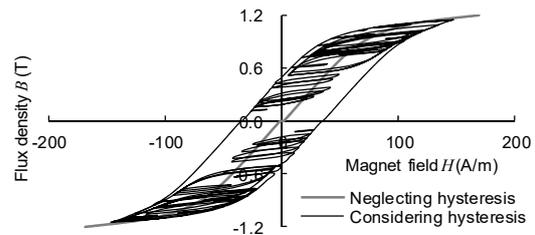


Fig. 7. Calculated hysteresis loop (2500 r/min, 88A).

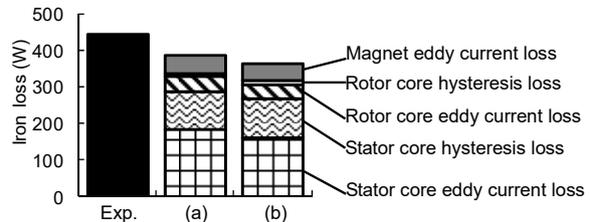


Fig. 8. Experimental and calculated iron losses (2500 r/min, 88A). (a):Considering hysteresis, (b):Neglecting hysteresis

Homogenization Techniques for Laminated Core and Soft Magnetic Composites in Magnetic Field Analysis

Kazuhiro Muramatsu

Department of Electrical and Electronic Engineering, Saga University, Saga 840-8502, Japan

1. Introduction

In electrical machines, laminated cores and soft magnetic composites (SMCs) are often used in order to reduce the eddy current losses. In the magnetic field analysis of such machines, the cores are usually modeled by solid ones in order to save computation cost. To take account of the nonlinearity and the eddy currents in steel plates or particles, and the gaps between them in the solid core model, homogenization techniques ^{1), 2)} are applied. In this paper, the homogenization techniques for laminated core and SMCs are described.

2. Homogenization Technique

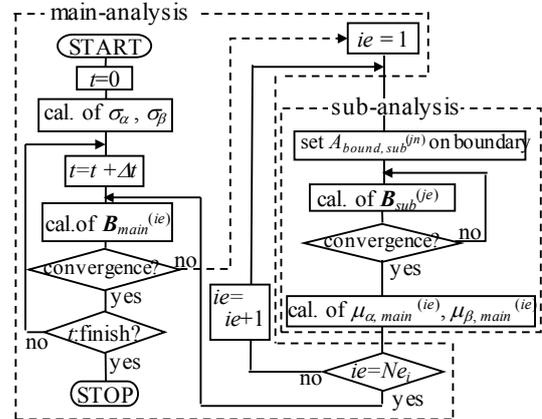
The flowchart of the homogenization technique for laminated core or SMCs is shown in Fig. 1. The sub-analysis with the cell model of a steel plate or particle is carried out for each element ie in the core at each nonlinear iteration in the 3D nonlinear eddy current analysis with the solid core model (“main-analysis”). In the sub-analysis, the flux densities obtained from the main analysis are given and the effective permeability used in the main analysis is calculated taking account of the nonlinearity, the eddy currents, and the gaps.

3. Laminated Core

In the sub-analysis of the homogenization technique for the laminated core, one sheet of steel plate with the gap is chosen as the cell model, shown in Fig. 2, and the 1D nonlinear eddy current analysis is carried out.

The homogenization technique is applied to a simple reactor model ³⁾ shown in Fig. 3. The cores with gaps are constructed by laminated steel plates (35A270) in the z -direction, and the space factor F is 0.95.

The flux distributions in the leg in the y - z plane obtained from the ordinary method, neglecting the eddy currents in the steel plates and gaps between the steel plates, and the proposed method mentioned above are shown in Fig. 4. The flux distribution obtained from the ordinary method is almost uniform in the core, whereas the flux densities in the upper layers of the core are larger than those in the other lower layers in the proposed method. This is because the flux concentrates at the corners of cores due to the gaps between cores and the larger flux in the upper layers remains due to the gaps between the steel plates. Therefore, the proposed method should be used for the accurate



N_{e_i} : number of elements in core in main-analysis

Fig. 1 Flowchart of homogenization technique.

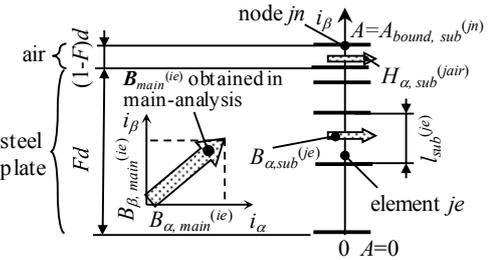


Fig. 2 1D cell model of a steel plate in laminated core.

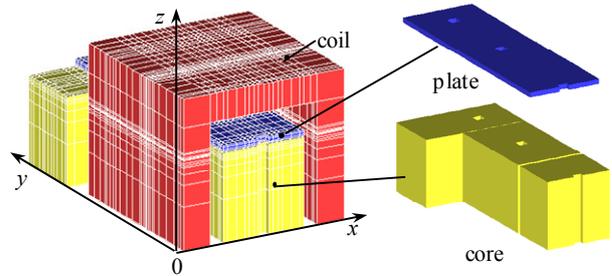


Fig. 3 Analyzed single phase model of reactor.

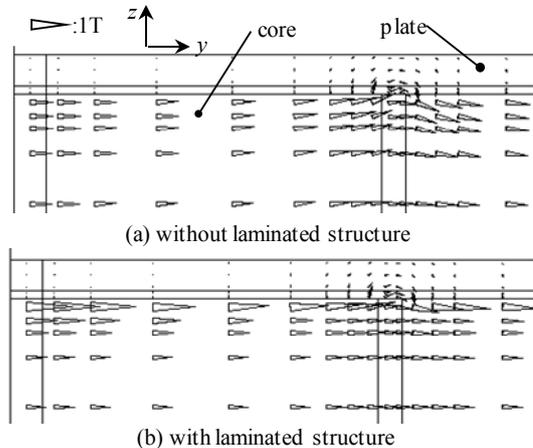


Fig. 4 Flux distributions in the leg

analysis of the laminated core.

4. Soft Magnetic Composites (SMCs)

To establish the homogenization technique for SMC, the accurate cell model of a particle with gap is investigated⁴⁾. Fig. 5 shows a 3D cell model for an actual SMC (MBS-R3, DIAMET CORPORATION). In this model, the particles are assumed to be square shape and be formed regularly and infinitely. Two configurations of particles with uniform and un-uniform gaps are examined as shown in Fig. 5 (a) and (b), respectively. In the model with the uniform gap, two gap lengths G_0 s are selected. One is $G_0 = 1.37 \mu\text{m}$ determined by volume filling rate. The other is set to be $G_0 = 0.35 \mu\text{m}$ so that the calculated magnetic field H_z coincides with measured one at $B_z = 1\text{T}$. In the non-uniform gap model, G_1 , G_2 , and L in Fig 1 (b) are optimized to be 0.15, 1.0, and 35 μm so that the calculated BH curve coincides with the measured one as possible.

Fig. 6 shows the calculated and measured effective initial BH curves in the low frequency in which the eddy current can be neglected. In the model with uniform gap $G_0 = 1.37 \mu\text{m}$, the calculated effective permeability is much smaller than the measured one because the gap length determined by the filling ratio is larger than most of those in the actual SMC due to its complex shape of particles. The model with the smaller uniform gap $G_0 = 0.35 \mu\text{m}$ cannot represent the measured BH curve completely, too. The BH curve obtained by the optimized model with non-uniform gap is good agreement with the measured one. It can be concluded that the cell model with non-uniform gap should be used for the homogenization technique of SMC.

Fig. 7 shows the comparison of the calculated iron losses obtained by using the cell model shown in Fig. 5 (a) with the measured ones. The calculated hysteresis losses are in good agreement with the measured ones because the applied flux density coincides with each other. However, the eddy current losses are different from measured ones because the insulation between particles are not completed in an actual SMCs. This problem will be investigated in future.

References

- 1) K. Muramatsu, et al., *IEEE Trans. Magn.*, vol. 40, no. 2, pp. 896-899, 2004.
- 2) Y. Sato, et al., *IEEE Trans. Magn.*, vol. 53, no. 6, Art. no. 7402204, 2017.
- 3) Y. Gao, et al., *IEEE Trans. Magn.*, vol. 45, no. 3, pp. 1044-1047, 2009.
- 4) Y. Gao, et al., *IEEE Trans. Magn.*, vol. 54, no. 3, Art. no. 7401504, 2018.

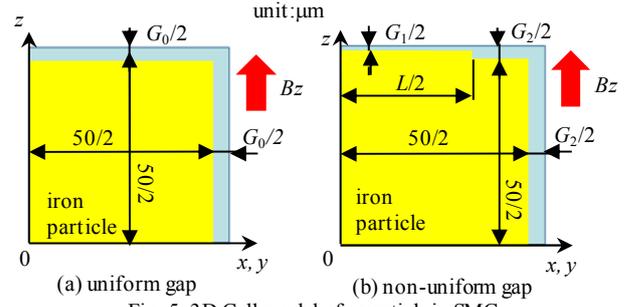


Fig. 5 3D Cell model of a particle in SMC.

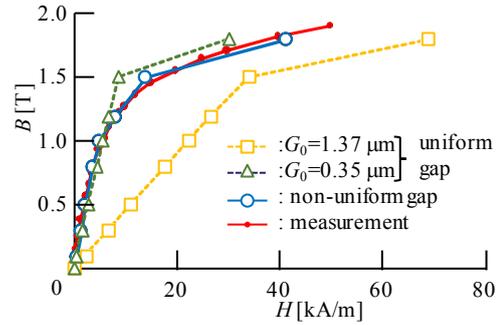
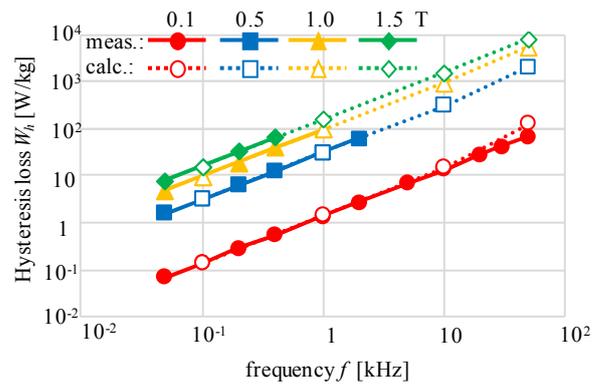
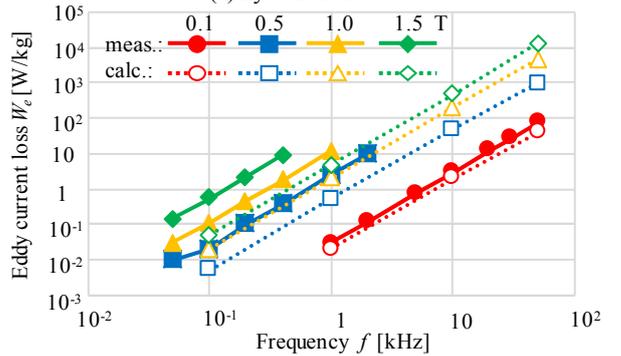


Fig. 6 Calculated and measured initial BH curves.



(a) hysteresis loss



(b) eddy current loss

Fig. 7 Iron losses.

Magnetic Material Modeling and Simulation Technology for Loss Calculation

A. Furuya, Y. Uehara, K. Shimizu, J. Fujisaki, T. Ataka, T. Tanaka, H. Kawano* and H. Oshima*
(Fujitsu Ltd., *Fujitsu Laboratories Ltd.)

Soft magnetic materials such as an electrical steel, ferrite core, and dust core are widely used in an inductor and transformer. To achieve high efficiency and downsizing, a simulation technology for accurate core loss is highly demanded in the industry. However, core loss is strongly related to complex magnetization dynamics, and magnetic material modeling is one of the recent fields in which progress is being made. In this presentation, we introduce a magnetic material modeling technique based on micromagnetics for electrical steel, and microstructure for ferrite core.

For electrical steel, hysteresis loss accounts for a large portion of core loss of motors. In addition, vector property due to grain structure is observed in B-H loop measurement. To model this property, we adopted a grain magnetics (GM) model⁽¹⁾. Fig. 1 shows the conceptual diagram of the GM model. The magnetization of one grain is approximated by one magnetization vector. This formulation cannot treat a domain-wall and its related dynamics, and therefore, artificial magnetization change such as magnetization flip is introduced. Fig. 2 shows the simulation results for grain-oriented electrical steel. Anisotropic B-H loops are well-reproduced by considering the effect of domain-wall motion and crystal anisotropy.

For high frequency applications, soft ferrite cores are an important material, but these core losses are strongly related to eddy-current, dimensional resonance, and excess loss due to the magnetization dynamics. To evaluate core loss of Mn-Zn ferrite, we studied the magnetic field simulation with the effective permittivity that comes from the microstructure of Mn-Zn ferrite⁽²⁾. Fig. 3 shows the simulation result of core-size dependence of complex permeability. The core sample with diameter size 12.7 mm has a clear peak in its real part due to the dimensional resonance. In this presentation, we will discuss the comparison of core loss with experimental measurement and loss mechanism.

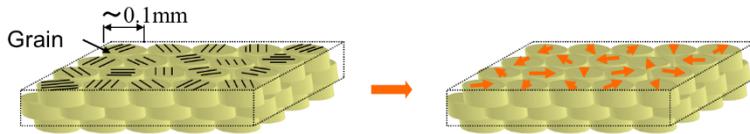


Fig. 1: Grain magnetics model for electrical steel

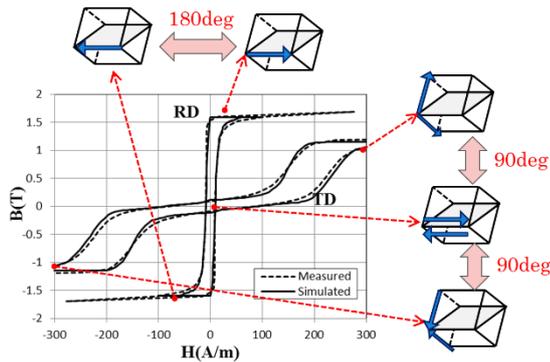


Fig. 2: B-H loops of grain-oriented electrical steel

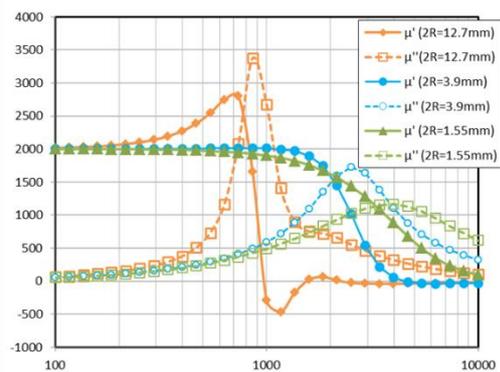


Fig. 3: Complex permeability of Mn-Zn ferrite

Reference

- 1) A. Furuya, J. Fujisaki, Y. Uehara, K. Shimizu, H. Oshima, and T. Matsuo, IEEE Trans. on Magn., vol. 50, (2014), 7300604
- 2) A. Furuya, Y. Uehara, K. Shimizu, J. Fujisaki, T. Ataka, T. Tanaka and H. Oshima, IEEE Trans. on Magn., vol. 53, (2017), 7301004

Magnetic properties and variational calculus

Fumiaki Ikeda

Photon Co., Ltd.

The finite element method is currently the mainstream method in the field of low frequency electromagnetic field analysis. In this method, Maxwell's equation, which is a fundamental equation, is formulated using a weighted residual method such as the Galerkin method. This is because the magnetization characteristics of magnetic materials are generally not linear with constant magnetic permeability, but have a nonlinear dependence on magnetic flux density.

In the case of a linear magnetic material, the fundamental equation can be expressed as follows using the variational calculus.

$$\delta \int_V \left[\frac{1}{2\mu} (\text{rot } \mathbf{A})^2 - \mathbf{J} \cdot \mathbf{A} \right] dV = 0 \quad (1)$$

Here μ is permeability and has a constant value. \mathbf{A} is vector potential, and \mathbf{J} is current density. Taking variations, the left-hand side becomes as follows.

$$\begin{aligned} & \int_V \left[\frac{1}{\mu} \text{rot } \delta \mathbf{A} \cdot \text{rot } \mathbf{A} - \delta \mathbf{A} \cdot \mathbf{J} \right] dV \\ &= \int_V \delta \mathbf{A} \cdot \left[\text{rot } \frac{1}{\mu} \text{rot } \mathbf{A} - \mathbf{J} \right] dV + (\text{Surface integral}) \end{aligned} \quad (2)$$

However, since the transformation of the last formula was performed using Gauss' theorem, a surface integral has appeared. Since this surface integral normally disappears through boundary conditions, it is required that the integral of the first term be zero, and it is possible to solve the electromagnetic field equation by the variational calculus.

However, in general magnetic materials, the magnetic permeability is not constant, and so such variational calculus cannot be used. Therefore, when dealing with these kinds of magnetic materials using the finite element method, we utilize the vector weighting function \mathbf{W} to produce the following equation.

$$\int_V \mathbf{W} \cdot \left[\text{rot } \frac{1}{\mu} \text{rot } \mathbf{A} - \mathbf{J} \right] dV = 0 \quad (3)$$

If the left-hand side can be transformed using Gauss' theorem and the surface integral eliminated through boundary conditions, the formula becomes as follows.

$$\int_V \left[\frac{1}{\mu} \text{rot } \mathbf{W} \cdot \text{rot } \mathbf{A} - \mathbf{W} \cdot \mathbf{J} \right] dV = 0 \quad (4)$$

In this study, we show that the variational calculus can be used even for general magnetic materials by considering the thermodynamics of the magnetic material, and demonstrate that, in electromagnetic field analysis also, the finite element method can be formulated naturally.

Considering the free energy F of the magnetic material as a function of temperature T and magnetic flux density \mathbf{B} , this differential can be expressed as follows.

$$dF(T, \mathbf{B}) = -SdT + \mathbf{H} \cdot d\mathbf{B} \quad (5)$$

Here, S is the entropy of the magnetic material per unit volume, T is temperature, and \mathbf{H} is magnetic field. From this, the thermodynamic variables can be expressed as follows.

$$\begin{aligned} S &= -\frac{\partial}{\partial T} F(T, \mathbf{B}) \\ \mathbf{H} &= \frac{\partial}{\partial \mathbf{B}} F(T, \mathbf{B}) \end{aligned} \quad (6)$$

Here we introduce the following thermodynamic potential by transforming variables.

$$G(T, \mathbf{H}) = F(T, \mathbf{B}) - \mathbf{H} \cdot \mathbf{B} \quad (7)$$

Calculating this derivative, the following is obtained from Eq. (5).

$$dG(T, \mathbf{H}) = -SdT - \mathbf{B} \cdot d\mathbf{H} \quad (8)$$

In electromagnetic field analysis, the magnetic field is often obtained by inputting a current, which corresponds to the problem of finding the magnetic flux density for a magnetic field \mathbf{H} generated by an electric current. According to thermodynamics, for fixed temperature and magnetic field, this temperature thermodynamic potential is at its minimum at equilibrium. Therefore, the variation of the following integral must be zero if temperature is constant.

$$\delta \int_V G(T, \mathbf{H}) dV = 0 \quad (9)$$

Since temperature and magnetic field are here assumed to be fixed, this variation is taken on magnetic flux density, which is the other state quantity. The variation on the left-hand side of this equation is calculated as follows.

$$\begin{aligned} & \int_V \left[\frac{\partial}{\partial \mathbf{B}} F(T, \mathbf{B}) \cdot \delta \mathbf{B} - \mathbf{H} \cdot \delta \mathbf{B} \right] dV \\ &= \int_V dV \delta \mathbf{B} \cdot \left[\frac{\partial}{\partial \mathbf{B}} F(T, \mathbf{B}) - \mathbf{H} \right] dV \end{aligned} \quad (10)$$

When the variations are represented by vector potentials,

$$\delta \mathbf{B} = \delta \text{rot} \mathbf{A} = \text{rot} \delta \mathbf{A} \quad (11)$$

The above left-hand side can be further transformed as follows through partial integration using Gauss' integral theorem.

$$\begin{aligned} & \int_V dV \text{rot} \delta \mathbf{A} \cdot \left[\frac{\partial}{\partial \mathbf{B}} F(T, \mathbf{B}) - \mathbf{H} \right] dV \\ &= \int_V dV \delta \mathbf{A} \cdot \text{rot} \left[\frac{\partial}{\partial \mathbf{B}} F(T, \mathbf{B}) - \mathbf{H} \right] dV + (\text{Surface integral}) \end{aligned} \quad (12)$$

Since the terms of the surface integral can be eliminated by appropriate boundary conditions, the above equation becomes as follows.

$$\int_V dV \delta \mathbf{A} \cdot \left[\text{rot} \frac{\partial}{\partial \mathbf{B}} F(T, \mathbf{B}) - \text{rot} \mathbf{H} \right] dV \quad (13)$$

Although the distribution of the magnetic field cannot be determined, the magnetic field within this integral is subject to a rotation operator, and can be converted into current density as follows.

$$\text{rot} \mathbf{H} = \mathbf{J} \quad (14)$$

Therefore, the equation obtained from the variational calculus for the thermodynamic potential, which is required from thermodynamics, is as follows.

$$\int_V dV \delta \mathbf{A} \cdot \left[\text{rot} \frac{\partial}{\partial \mathbf{B}} F(T, \mathbf{B}) - \mathbf{J} \right] dV = 0 \quad (15)$$

From equation (6), we can see that this formula is equivalent to the electromagnetic field analysis equation.

Here, by examining the magnetic material thermodynamically, we have shown that magnetization characteristics can be expressed by thermodynamic potentials such as free energy, and that the variational calculus can be used in the finite element method for the electromagnetic field.

Issues of Material Modeling in Electromechanical Simulations

Takashi Yamada¹, Katsuyuki Narita¹, Hiroyuki Sano¹
(¹JMAG division, JSOL Corp.)

Many electrical devices are re-designed today in the electrification. Since the electrification is mainly for energy saving or the global warming countermeasures, high energy efficiency is primary requirement of the re-design. A typical example is electric motors of electric vehicles which have to have high energy efficiency as well as high power density with which the conventional internal combustion engines must be able to be replaced.

On the other hand, the further improvement is challenging since such electric machines have long history of over 100 years and countless efforts have been already made in the history. In order to make a breakthrough, advanced simulation technologies such as finite element analysis (FEA) has been introduced and recognized as an indispensable tool in the machine developments. Major advantages of FEA are, firstly, virtual prototyping where any design ideas can be concretely implemented and evaluated and, secondly, detail phenomena in a machine are visualized and investigated. Those advantages give us deep insights in a complex system and substantial improvements which are difficult with conventional design approaches consisting of empirical equations and real prototyping.

However, to enjoy the advantages, the simulation has to have enough accuracy. Since main error source of today's FEA is material data, accuracy of the material modeling determines performance of the simulation. Hereafter, we focus on losses of lamination steel which is used for core of the electric machines and its property largely affects the performance of the machines. More importantly, the property of the lamination steel is complex and difficult to be modeled so that we have many remaining issues there.

The losses of the lamination steel consist of hysteresis loss, eddy current loss and excess loss. The hysteresis loss is a loss defined by loops of static BH characteristic, i.g. it is frequency independent. The eddy current loss is caused by the classical eddy current circulating in a cross section which is perpendicular to main linkage flux direction. The excess loss is defined as a difference between total losses and summation of the hysteresis loss and eddy current loss.

Most common modeling approaches for loss evaluation today employ an empirical formula such as Steinmetz's equation in which coefficients and parameters are determined with measurements. The measurements are usually done with a pure sinusoidal waveform of magnetic flux density. Advantages of the conventional approach are, firstly, it is accurate if the actual operating condition is the same as the condition of measurements determining the coefficients of the formula and, secondly, it is simple to use since the total loss is calculated with a single formula which includes all losses in the above.

Disadvantage of the conventional approach is the fact that accuracy is never be guaranteed if the measurement condition does not match to the actual operating condition. Those undesirable situations are not rare in actual machines, especially, in advanced machines such as a traction motor of EVs. Those advanced machines are fed with higher current than of the conventional machines to achieve high power density so that the lamination steel is magnetically highly saturated and this does not satisfy the measurement condition. Also, those advanced machines are controlled with inverter(s) employing Pulse Width Modulation (PWM) technique which generates high frequency minor loops on a fundamental major loop. The measurement condition does not include the minor loops and the resulting losses cannot represent the minor loop losses. The minor loops are generated not only by PWM but also by slot harmonics in a Permanent Magnet Synchronous Machine (PMSM) which is the main stream in EVs. Moreover, the measurement has limitation in frequency which actual frequency in a machine goes above the limitation. The disadvantage was not a significant problem because classical machines are designed to be operated with the low frequency sinusoidal waveforms of magnetic flux density.

To overcome the disadvantage, new models have been introduced for the hysteresis loss and the eddy current loss. The hysteresis loss is represented with Play-Hysteron model¹⁾ which is a semi-physical model and can reproduce a minor loop at an arbitrary operation point employing multiple static major loops. The eddy current loss is modeled by 1D-FEM¹⁾ in which eddy current distribution in thickness direction is solved with a conductivity of the steel sheet by one-dimensional FEM at each element of the main 2D/3D FEM. Note that since only conductivity is required, this method is valid for any frequency without limitation. Those two models give us significant improvements in accuracy for the advanced machines³⁾. A significant difference from the conventional approach is the fact that the new approach does not depend on measured losses and has wider applicability than the conventional approach.

However, the new approach misses the excess loss is inaccurate in case the excess loss is not ignorable. Although the best way to incorporate the excess loss is having a physical model, the phenomena are too complex to capture the mechanism. Currently, we are developing an expandable empirical based model as a second best. The new model shows reasonable performance for wide range even outside of the measurements. The detail will be explained in the presentation.

Reference

- 1) T. Matsuo, D. Shimode, , Y. Terada, M. Shimasaki , "Application of stop and play models to the representation of magnetic characteristics of silicon steel sheet", IEEE Transactions on Magnetics, vol.39, no.3, pp. 1361-1364, 2003
- 2) O. Bottauscio, "Advanced Model of Laminated Magnetic Cores for Two-Dimensional Field Analysis", IEEE Transactions on Magnetics, vol.36, no.3, pp561-573, 2000
- 3) K. Narita, H. Sano, T. Yamada, K. Aiso, K. Akatsu, "An Accurate Iron Loss Evaluation Method Based on Finite Element Analysis for Switched Reluctance Motors", ECCE 2015

Equivalent circuit for Eddy Current Field in Cauer Form

Y. Shindo¹ and T. Matsuo²

¹Kawasaki Heavy Industries, Akashi 673-8666, Japan

²Kyoto University, Kyoto 615-8520, Japan

Recently, an exact and efficient modeling method for the eddy current field is found.¹⁾ This method expands the eddy current field to an equivalent circuit called Cauer Ladder Network (CLN). The procedure for obtaining this network and the benefits of this method are introduced here.

Consider a magnetic sheet shown in Fig. 1, where d denotes the width of the sheet, μ and σ denote the magnetic permeability and electric conductivity of the material respectively. It is supposed that exciting field \dot{H}_0 is applied externally. The equation for the eddy current field is given by (1) as an one-dimensional problem.

$$\frac{\partial^2 \dot{H}(x)}{\partial x^2} - j\omega\sigma\mu\dot{H}(x) = 0 \quad (1)$$

Solving this equation under the boundary condition $\dot{H}(d/2) = \dot{H}_0$ gives the magnetic field (2) and the equivalent magnetic permeability as (3).

$$\dot{H}(x) = \frac{\cos(kx)}{\cos(kd/2)} \dot{H}_0 \quad (2)$$

$$\dot{\mu} = \frac{\dot{\Phi}}{d\dot{H}_0} = \mu \frac{2}{kd} \tan\left(\frac{kd}{2}\right), \quad \dot{\Phi} = \int_{-d/2}^{d/2} \mu\dot{H}(x) dx = \frac{2\mu}{k} \tan\left(\frac{kd}{2}\right) \dot{H}_0. \quad (3)$$

Here the complex variable k is defined by $k = \sqrt{-j\omega\sigma\mu}$ and $\dot{\Phi}$ denotes the total flux in the magnetic sheet. The trigonometric function divided by its argument can be expanded by the following two forms, a partial fraction expansion (4) and a continued fraction (5).

$$\frac{1}{z} \tan z = -2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{z^2 - [(2n-1)\pi/2]^2} \quad (4)$$

$$\frac{1}{z} \tan z = \frac{1}{1 - \frac{z^2}{3} - \frac{z^2}{5} - \frac{z^2}{7} - \frac{z^2}{9} - \dots} \quad (5)$$

By setting $R_c = 8/\sigma d^2$, $L_c = \mu$ and $L_{cn} = 2L_c / (n-1/2)^2 \pi^2$, the effective complex permeability can be respectively expanded as

$$j\omega\dot{\mu} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{j\omega L_{cn} R_c}{R_c + j\omega L_{cn}} \quad (6)$$

$$j\omega\dot{\mu} = \frac{1}{1/j\omega L_c + 3(R_c/2) + 5/j\omega L_c + 7(R_c/2) + \dots} \quad (7)$$

The former corresponds to the Fourier I expansion and the latter corresponds to the Cauer I expansion. The equivalent circuits for these expansions can be realized by the equivalent circuits shown in Fig. 2, Foster realization and Cauer realization respectively. These equivalent circuits can be employed for modeling of actual electric machines such as a reactor as shown in Fig. 3. In fact, the reactance of this reactor is expressed by $j\omega L = j\omega\dot{\mu}SN/l$, where S , N and l

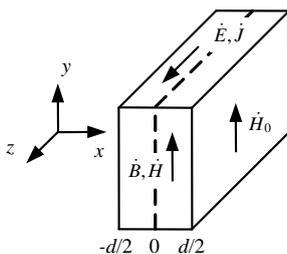


Fig. 1. Magnetic sheet

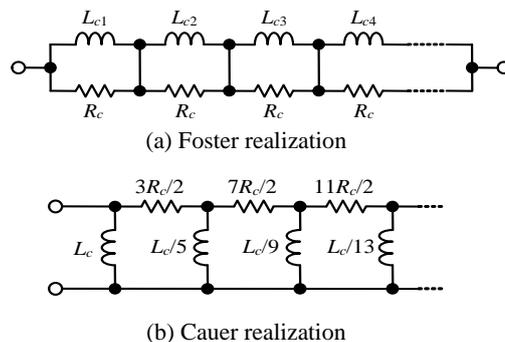


Fig. 2. Equivalent circuits

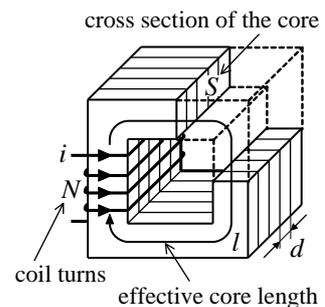


Fig. 3. Reactor

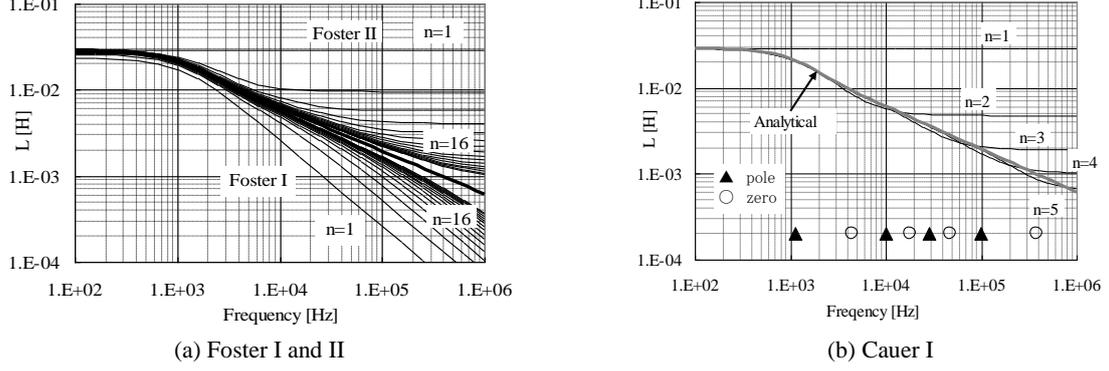


Fig. 4. Bode plots of Foster and Cauer expansions. ($L = \dot{\mu}$)

denote the cross section of the laminated core, the coil turns and the effective core length respectively. The examples of Bode plots with finite truncations of these networks are shown in Fig 4, where n denotes the number of the inductors. It is obvious that Cauer expansion is much effective than Foster expansion.

Recently, it was found that this Cauer realization can be expanded to arbitrary three-dimensional eddy current field as illustrated in Fig. 5.²⁾ For preparation, define

$$\mathbf{E} = \sum_{n=0}^{\infty} e_{2n} \bar{\mathbf{E}}_{2n}, \quad \mathbf{H} = \sum_{n=0}^{\infty} h_{2n+1} \bar{\mathbf{H}}_{2n+1}, \quad (8)$$

$$1/R_{2n} = \int_{\Omega} \sigma \bar{\mathbf{E}}_{2n} \cdot \bar{\mathbf{E}}_{2n} dV, \quad L_{2n+1} = \int_{\Omega} \mu \bar{\mathbf{H}}_{2n+1} \cdot \bar{\mathbf{H}}_{2n+1} dV. \quad (9)$$

Then the method is presented by the following steps.

Step 0: Assume that the voltage v is applied externally. Solve $\nabla \times \mathbf{E}_0 = 0$ under given voltage boundary condition. Set $\bar{\mathbf{E}}_0 = \mathbf{E}_0 / v$ and calculate R_0 using (9). Set $\bar{\mathbf{H}}_{-1} = 0$ and $n = 1$.

Step 1: Solve $\nabla \times \tilde{\mathbf{H}}_{2n-1} = R_{2n-1} \sigma \bar{\mathbf{E}}_{2n-2}$ under magnetic boundary conditions. Set $\bar{\mathbf{H}}_{2n-1} = \tilde{\mathbf{H}}_{2n-1} + \bar{\mathbf{H}}_{2n-3}$ and calculate L_{2n-1} by using (9).

Step 2: Solve $\nabla \times \tilde{\mathbf{E}}_{2n} = -(1/L_{2n-1}) \mu \bar{\mathbf{H}}_{2n-1}$. Set $\bar{\mathbf{E}}_{2n} = \tilde{\mathbf{E}}_{2n} + \bar{\mathbf{E}}_{2n-2}$ and calculate R_{2n} by using (9).

Step 3: If the finite sum of (8) converge sufficiently, then stop the calculation. Otherwise set $n = n+1$ and go to **Step 1**.

This method provides the network constants in Fig. 6, and simultaneously provides the spatial distribution functions $\bar{\mathbf{E}}_{2n}$ and $\bar{\mathbf{H}}_{2n+1}$. The circuit variables e_{2n} and h_{2n+1} can be obtained by real-time simulation of the ladder network. The magnetic field and the current distribution can be synthesized using (8). Furthermore, the total magnetic energy W_m and the power consumption W_R in the entire domain Ω are presented in lumped forms as

$$W_m = \frac{1}{2} \sum_{n=0}^{\infty} L_{2n+1} h_{2n+1}^2, \quad W_R = \sum_{n=0}^{\infty} R_{2n} \left(\sum_{m=n}^{\infty} h_{2m+1} \right)^2. \quad (10)$$

In the actual electric machine designs, the nonlinearity and hysteresis property, as well as the anomaly eddy current loss, frequently become important issues.³⁾ The authors hope that the proposed method can be applied to estimate the anomaly eddy current loss. However, it may not be so easy because of the moving of domain walls due to the fluctuation of the magnetic field.

Reference

- 1) Y. Shindo *et al.*, Simple Circuit Simulation Models for Eddy Current in Magnetic Sheets and Wires, IEEJ Trans. FMS, Vol. 134, Issue 4, pp.173-181 (2014)
- 2) A. Kameari *et al.*, Cauer Ladder Network Representation of Eddy-Current Fields for Model Order Reduction Using Finite-Element Method, IEEE Tran MAG, Vol. 52, Issue 3, #7201804 (2018)
- 3) G. Bertotti, Hysteresis in Magnetism, Academic Press (1998).

Large perpendicular magnetic anisotropy in Fe/MgAl₂O₄ heterostructures

Qingyi Xiang^{1,2}, Ruma Mandal², Hiroaki Sukegawa², Yukiko K. Takahashi² and Seiji Mitani^{1,2}

¹Graduate School of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba, Tsukuba 305-8577, Japan

²National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan

MgAl₂O₄ is considered a promising alternative barrier material to MgO for magnetic tunnel junctions (MTJs) due to its tunable lattice constant¹. The interface-induced perpendicular magnetic anisotropy (PMA) at an MgAl₂O₄ interface is a crucial property for applications of perpendicularly magnetized MTJs (p-MTJs). Based on a recent theoretical calculation,² the areal PMA energy density of ~ 1.3 mJ/m² was predicted at an Fe/MgAl₂O₄(001) interface, which is nearly comparable to that at an Fe/MgO(001) interface (~ 1.5 – 1.7 mJ/m²). However, a much smaller PMA energy density ~ 0.4 MJ/m³,³ comparing with ~ 1.4 MJ/m³ in Fe/MgO,⁴ has been experimentally reported in Fe/MgAl₂O₄(001) where the MgAl₂O₄ layers were prepared by post-oxidization of an Mg-Al metallic layer. Therefore, further improvement in the PMA energy of ultrathin-Fe/MgAl₂O₄(001) interfaces is expected if a sharp interface is obtained by suppressing atomic intermixing and over-oxidation through process optimization. In this study, we report achievement of large PMA at an Fe/MgAl₂O₄ by introducing electron-beam deposition of MgAl₂O₄.⁵

Stacks of Cr buffer(30)/Fe(0.7)/MgAl₂O₄($t_{\text{MAO}} = 2$ or 3 nm) (unit in nm) multilayers were epitaxially grown on an monocrystalline MgO(001) substrate by electron-beam evaporation. The Cr and Fe were post-annealed at 800°C and 250°C, respectively. The MgAl₂O₄ were post-annealed at various temperatures between 350°C and 500°C to modify the interface conditions. Magnetic properties were investigated using a vibrating sample magnetometer(VSM) and VSM incorporated with superconducting quantum interference device (SQUID). The ultrafast magnetization dynamics property was measured by the time-resolved magneto-optical Kerr effect (TR-MOKE) method.

Figure 1 shows the M - H curve of an optimized Fe (0.7 nm)/MgAl₂O₄($t_{\text{MAO}} = 2$ or 3 nm) interface with a large PMA energy up to ~ 1.0 MJ/m³, comparable to the reported value for an Fe (0.7 nm)/MgO⁴ (~ 1.4 MJ/m³). We also found that the PMA energy and saturation magnetization (M_s) were not very sensitive to measurement temperature, where from 100K to 300K, K_i drops from ~ 2.0 mJ/m² to ~ 1.7 mJ/m². The effective damping constant was also evaluated to be ~ 0.02 by TR-MOKE under high magnetic fields. This study demonstrated robust interface PMA in ultrathin-Fe/MgAl₂O₄, which is useful for p-MTJ applications.

This study was partly supported by the ImPACT program of the Council for Science, Technology and Innovation (Cabinet Office, Government of Japan) and JSPS KAKENHI Grant Number 16H06332.

Reference

- 1) H.Sukegawa, H. Xiu, T. Ohkubo, T. Furubayashi, T. Niizeki, W. Wang, S. Kasai, S. Mitani, K. Inomata, and K. Hono: *Appl. Phys. Lett.* **96**, 212505(2010)
- 2) K. Masuda and Y. Miura, *ArXiv*:1803.10428 (2018).
- 3) J. Koo, H. Sukegawa, and S. Mitani, *Phys. Status Solidi RRL* **8**, 841 (2014).
- 4) J.W. Koo, S. Mitani, T.T. Sasaki, H. Sukegawa, Z.C. Wen, T. Ohkubo, T. Niizeki, K. Inomata, and K. Hono, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 192401 (2013).
- 5) Q.Xiang, R. Mandal, H. Sukegawa, Y.K. Takahashi and S.Mitani, *Appl. Phys. Express.* **11**, 063008. (2018)

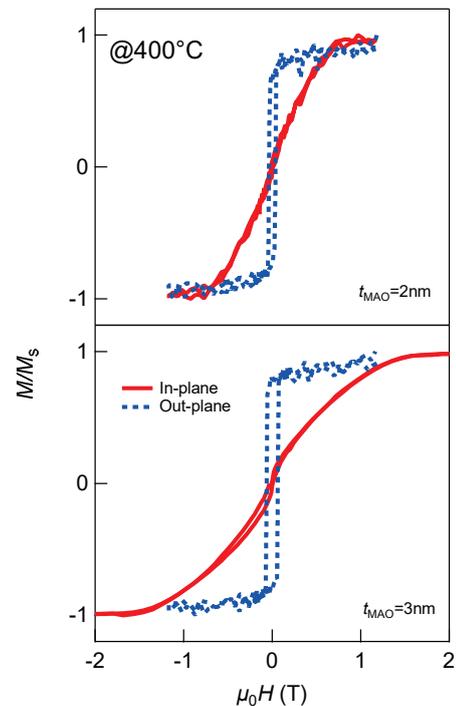


Figure 1 M-H curves for samples annealed at 400°C with $t_{\text{MAO}} = 2$ and 3 nm.

Fe/MgAl₂O₄ 界面の垂直磁気異方性(PMA)と W 挿入による PMA 増大に関する理論研究

増田啓介, 三浦良雄
(物材機構)

Theoretical study on perpendicular magnetic anisotropy at Fe/MgAl₂O₄ interface

Keisuke Masuda and Yoshio Miura

(NIMS)

磁気トンネル接合 (MTJ) を磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) に応用する際, 高い磁気抵抗比 (MR 比) に加え, 微細化に伴う熱安定性の確保が重要となるため, 薄膜の膜面垂直方向に磁化する垂直磁気材料が必要不可欠となっている. これまでにバルクとして大きな結晶垂直磁気異方性を有する強磁性体 ($D0_{22}$ Mn₃Ga, $D0_{22}$ Mn₃Ge, $L1_0$ MnGa, $L1_0$ FePt 等) が MTJ の電極材料として検討されてきたが, 現時点では CoFeB や bcc Fe を超える高い MR 比が得られていない. 一方, CoFeB/MgO [1] や Fe/MgO [2] では, 界面状態の寄与により 1.5~2.0 mJ/m² 程度の比較的大きな界面垂直磁気異方性が得られている. このような経緯から強磁性体と酸化物の界面における界面垂直磁気異方性が注目を集めてきた.

スピネルバリア MgAl₂O₄ を用いた Fe/MgAl₂O₄/Fe MTJ [3] は界面での格子整合性が大変良いという大きな利点を有し, 既に室温で 300% 程度の大きな MR 比 [4] も得られている. Fe/MgO の場合と同様, Fe/MgAl₂O₄ の界面磁気異方性について複数の実験が行われており [5,6], Fe/MgO よりも若干小さいものの垂直磁気異方性が得られることが報告されている. Fe/MgO の垂直磁気異方性については複数の理論研究が行われ, その理論的な理解が進んでいる一方, Fe/MgAl₂O₄ に対しては本研究以前に理論研究が行われておらず, 垂直磁気異方性の起源, および Fe/MgO との差についての理解が不十分であると考えられる.

本研究では, 第一原理計算を用い Fe/MgAl₂O₄ の界面磁気異方性について理論的な解析を行い, Fe/MgO の結果と比較検討をした. 我々は構造を最適化した Fe/MgAl₂O₄ および Fe/MgO の超格子に対して密度汎関数法と force theorem を適用することで界面磁気異方性係数 K_i を算出した. Fe/MgO については面内格子定数 a に比較的大きな不整合があるために, Fe に合わせた値 ($a=a_{Fe}$) と MgO に合わせた値 ($a=a_{MgO}/\sqrt{2}$) の 2 通りで計算を行った. これらの計算の結果, Fe/MgAl₂O₄ の K_i ($K_i \approx 1.2$ mJ/m²) は 2 種の Fe/MgO の K_i ($K_i \approx 1.4 \sim 1.7$ mJ/m²) よりも若干小さいことがわかった. この結果は先述の実験結果と符合するものである. 磁気異方性エネルギーの 2 次摂動解析, および界面の局所状態密度 (LDOS) 解析を行った結果, このような Fe/MgAl₂O₄ の K_i は良く知られた Bruno 則で説明可能であることがわかった [7]. また Fe/MgO に比べ小さな K_i が得られた理由については, Fermi 準位付近でのスピン反転散乱の寄与が小さいことが原因であると考えられる. 我々はさらに Fe/MgAl₂O₄ の垂直磁気異方性を向上させる方法として界面への W 原子層挿入を検討した. 計算の結果, 3~5 層の W 挿入によって K_i の値が 2~3 倍に増大することを見出した [7].

本研究の一部は科研費基盤 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. Ikeda *et al.*, Nat. Mater. **9**, 721 (2010).
- 2) J. W. Koo *et al.*, Appl. Phys. Lett. **103**, 192401 (2013).
- 3) H. Sukegawa *et al.*, Appl. Phys. Lett. **96**, 212505 (2010).
- 4) M. Belmoubarik *et al.*, Appl. Phys. Lett. **108**, 132404 (2016).
- 5) J. Koo, H. Sukegawa, and S. Mitani, Phys. Status Solidi RRL **8**, 841 (2014).
- 6) Q. Xiang *et al.*, Appl. Phys. Express **11**, 063008 (2018).
- 7) K. Masuda and Y. Miura, arXiv: 1803.10428.

Fe/CuIn_{1-x}Ga_xSe₂における界面垂直磁気異方性の理論予測

増田啓介, 葛西伸哉, 三浦良雄
(物材機構)

Theoretical prediction of perpendicular magnetic anisotropy at Fe/CuIn_{1-x}Ga_xSe₂ interface
Keisuke Masuda, Shinya Kasai, and Yoshio Miura
(NIMS)

磁気トンネル接合 (MTJ) を超高密度ハードディスクドライブの読み取りヘッドや磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) へ応用する際, 高い磁気抵抗比 (MR 比) に加え, $1 \Omega\mu\text{m}^2$ 程度の低い面積抵抗 (RA) が必要である. このような目的のもと, 近年葛西ら [1] は中間バリア層に化合物半導体 CuIn_{1-x}Ga_xSe₂ (CIGS) を使用した MTJ を開発し, 高い MR 比と低い RA が同時に得られることを示した. また, この CIGS MTJ における高い MR 比は, Δ_1 波動関数のスピン依存トンネル伝導によるものであることが明らかにされた [2,3].

特に CIGS MTJ の MRAM への応用を考える際, さらなる鍵を握るのは強磁性電極の磁気異方性である. MTJ デバイスの微細化に伴う熱安定性の確保の観点から, 強磁性電極は垂直磁気異方性を持っていることが望ましい. また特に, スピン注入磁化反転 MRAM (STT-MRAM) に関しては磁化反転の臨界電流を低減させるため [4], 電圧トルク MRAM (Voltage-torque MRAM) に関しては書き込みエラー率を下げる [5] 目的で, 大きな垂直磁気異方性を有する材料が必要とされている. しかしながら CIGS MTJ の垂直磁気異方性に関する実験的, 理論的検討は本研究以前には行われてこなかった.

本研究では第一原理計算を用い, Fe と様々な半導体バリアの界面での磁気異方性について解析を行った. 半導体バリアとしては, 上記 CIGS をはじめ, その他のカルコパイライト型半導体, また閃亜鉛構造を持つ ZnSe, GaAs などの半導体も考慮に入れた. 各系について密度汎関数法と force theorem を用いて界面磁気異方性係数 K_i を算出することで界面磁気異方性を評価した. 計算の結果, 今回調べたほぼ全ての系で正の K_i が得られ, これらの系が界面垂直磁気異方性を持つことがわかった. また K_i の値と界面軌道磁気モーメントの異方性を比較した結果, これらの垂直磁気異方性が良く知られた Bruno 則で説明可能であることがわかった [6]. 特に Fe/CuInSe₂(001) においては今回考慮した系の中で最も大きな K_i ($K_i=2.3 \text{ mJ/m}^2$) が得られた. この値は, 同条件で計算した Fe/MgO での値 ($K_i=1.4 \text{ mJ/m}^2$) の約 1.6 倍に相当する. このような Fe/CuInSe₂ の大きな垂直磁気異方性の起源を明らかにするため, 我々は界面付近での局所状態密度 (LDOS) の解析を行った. その結果, この系の界面原子配置が垂直磁気異方性の鍵を握っていることが明らかになった. Fe/CuInSe₂(001) においては Fe の斜め上方に Se が位置する界面構造がエネルギー的に安定となる. この構造は Fe の真上に O が位置する Fe/MgO(001) の界面構造とは異なるものであり, これにより Se の p_z 軌道と Fe の d 軌道の特徴的な混成が生じ大きな垂直磁気異方性が得られたと考えられる [6].

本研究の一部は科研費基盤 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. Kasai *et al.*, Appl. Phys. Lett. **109**, 032409 (2016).
- 2) K. Masuda and Y. Miura, Jpn. J. Appl. Phys. **56**, 020306 (2017).
- 3) K. Masuda and Y. Miura, J. Magn. Soc. Jpn. **42**, 37 (2018).
- 4) B. Dieny, R. B. Goldfarb, and K. J. Lee, *Introduction to Magnetic Random-access Memory* (Wiley, Hoboken, NJ, 2016).
- 5) Y. Shiota *et al.*, Appl. Phys. Express **9**, 013001 (2016).
- 6) K. Masuda, S. Kasai, Y. Miura, and K. Hono, Phys. Rev. B **96**, 174401 (2017).

Fe₃O₄/Cr 多層膜における垂直磁気異方性

大島大輝, 加藤剛志, 岩田聡
(名古屋大)

Large perpendicular magnetic anisotropy in Fe₃O₄/Cr multilayer films

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

はじめに

フェライトは化学的に安定で、安価であるため、永久磁石材料やコア材料として広く使用されているが、近年では磁気記録媒体、スピントロニクス材料、生体磁気材料としての応用も視野に研究が行われている。Fe₃O₄は大きなスピン分極率を持つ材料であり¹⁾、スピントロニクス材料としても有望であるが、磁気記録媒体やメモリへの応用を考えると垂直磁気異方性を有することが望ましい。今回、MgO単結晶基板上に形成したFe₃O₄とCrの多層膜構造において垂直磁気異方性が得られたので報告する。

実験方法

[Fe₃O₄ (*t* nm) / Cr (2 nm)]_{*N*}はDCおよびRFマグネトロンスパッタ法により室温で作製し、基板にはMgO (100)単結晶基板を用いた。Arガス雰囲気中でFe₃O₄ターゲットを用いて成膜した。成膜後、350 °Cで30 minアニールを行った。サンプルの磁化曲線測定には交番磁界勾配型磁力計を、結晶構造解析にはX線回折を用いた。

実験結果

Fig. 1 に作製したサンプルの膜法線および面内方向の磁化曲線を示す。磁化の値はFe₃O₄膜厚で規格化している。成膜後の多層膜の飽和磁化は50 emu/cc以下であった(ここでは示していない)が、アニールによって200 emu/cc以上の飽和磁化が得られ、垂直磁気異方性を示すことがわかった。飽和磁化、垂直磁気異方性はFe₃O₄層の厚さ*t*が厚くなるにつれ減少している様子も見られた。このことから、Fe₃O₄層はアニールにより結晶化して磁性を示すようになり、その結晶性はCr層に近いところとそうでないところで異なっていると予想される。また、Cr層との界面が垂直磁気異方性の誘導に寄与していると考えられる。Fig. 2 に*t*=3, *N*=30のサンプルにおける膜法線方向のX線回折プロファイルを示す。MgO基板とCr 200ピークの間が多層膜由来と考えられるメインピークが見られる。その隣にはサテライトピークが見られ、そこから見積もられる多層膜周期は設計値とおおよそ一致していることから、350 °Cのアニール後も多層構造を保っていると考えられる。

参考文献

1) H. T. Jeng *et al.*, Phys. Rev. B, vol. 65, 094429 (2002)

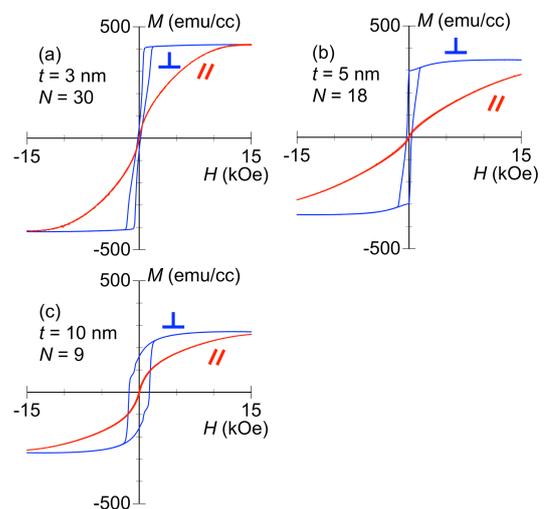


Fig. 1 Out-of-plane and in-plane *M-H* curves of [Fe₃O₄ (*t*) / Cr (2)]_{*N*}: (a) *t* = 3, *N* = 30, (b) *t* = 5, *N* = 18, and (c) *t* = 10, *N* = 9.

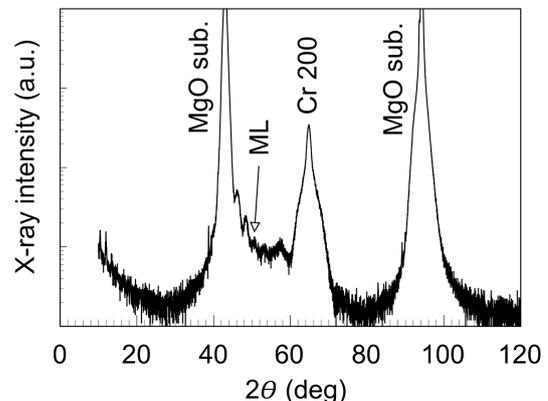


Fig. 2 Out-of-plane profile of [Fe₃O₄ (3) / Cr (2)]₃₀.

Pt/Co/Au/Cr₂O₃/Pt 積層膜における電気磁気冷却による 垂直交換バイアス反転過程

白土 優¹, 渡邊俊介¹, 米村祥吾², 中谷亮一¹

¹大阪大学大学院工学研究科, ²TDK 株式会社

Reversal process of perpendicular exchange bias by magnetoelectric field cooling for Pt/Co/Au/Cr₂O₃/Pt stacked film

Yu Shiratsuchi¹, Shunsuke Watanabe¹, Shogo Yonemura², Ryoichi Nakatani¹

¹Graduate School of Engineering, Osaka University, ²TDK cooperation

緒言 交換バイアスは、反強磁性層/強磁性層界面での交換結合による効果であり、スピバルブ薄膜や磁気トンネル接合における参照層の磁化固定に用いられている。従来の交換バイアスは、磁場中冷却によって向きを決定された後、デバイス中で反転させることが困難とされ、このためスタティックな利用に限られてきた。この一因は、反強磁性スピンをデバイス中で可逆的に制御することが困難であることにある。近年の薄膜作製技術、スピン制御技術の発達により、Cr₂O₃をはじめとする電気磁気効果材料薄膜の作製が可能になり、電場や強磁場を用いた反強磁性スピンの可逆的な制御が可能になっている。強磁性層/Cr₂O₃層積層膜は、0.4 mJ/m²以上の垂直交換バイアス、電気磁気効果に基づく交換バイアス反転が可能な系である。この系における交換バイアスの方位制御は機能実証に注力されてきたが、本現象の詳細な理解には、交換バイアスの方位反転エネルギー、反転過程などを明らかにすることが必要である。本研究では、磁区構造観察に基づいて、電気磁気冷却 (Magnetoelectric field cooling: MEFC) 過程における交換バイアス反転過程について検討した。

実験方法 試料には、c面サファイア基板上に作製した Pt(3.0)/Co(0.7)/Au(1.0)/Cr₂O₃(150)/Pt(20)積層膜を用いた。各層の括弧内の数値は、nm 単位での膜厚を表す。試料作製には、DC マグネトロンスパッタリング装置を用いた。試料作製方法、各層の結晶配向性については、過去の報告を参照されたい。作製した薄膜を、フォトリソグラフィ、Ar イオンミリング、リフトオフ法を用いて、電場印加可能なマイクロドット (直径 200 μm) に微細加工した。作製したマイクロドットに対して、磁気光学 Kerr 効果顕微鏡によって磁区構造を観察した。作製したデバイスの光学顕微鏡像と等価回路を図 1 に示す。磁区構造観察は、試料を 297 K から 280 K まで MEFC 法によって冷却した後、±1 kOe の磁場範囲で行った。交換バイアス反転のための MEFC 条件は、冷却時の印加磁場を +15 kOe で固定し、印加電界を 0 kV/cm から 600 kV/cm の範囲で変化させることとした。

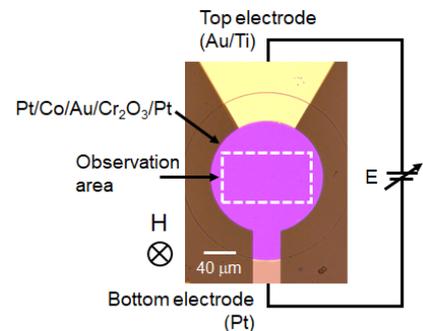


図 1 作製したマイクロドットの光学顕微鏡像と測定系の模式図。

実験結果と考察 MEFC 時の電場が 413 kV/cm 以下では交換バイアスの極性は負となり、通常の磁場中冷却と一致する。MEFC 時の電場が 420 kV/cm となると、正の交換バイアスが観測される。これは、定性的には反強磁性秩序生成時における界面交換結合と電気磁気効果によるエネルギーの競合によって説明できる。従来用いられてきたモデル²⁾は、正負の交換バイアスを発現する磁区の占有比が、両磁区のエネルギー差に対応するボルツマン分布に比例することを仮定しており、このことは正負の交換バイアスを発現している磁区の内部構造の変化がないことを仮定している。しかしながら、MEFC 後の磁区構造観察をもとに、各磁区上で測定した局所磁化曲線においては、局所的な保磁力の上昇、多段階の磁化反転が観測される。このことは、従来モデルとは異なり、MEFC 過程で生成される磁区構造が反強磁性層の界面と内部で異なることを示唆している。

参考文献 1) Y. Shiratsuchi *et al.*, J. Appl. Phys. 121, 073902 (2017). 2) M. Al-Mahwadi *et al.*, Phys. Rev. B 95, 144423, (2017).

非磁性金属 TiN 上に作製した垂直磁化コバルトフェライト膜の トンネル伝導特性

田中雅章¹, 野村幸佑¹, 奥野堯也², 本多周太³, 小野輝男², 壬生攻¹
(¹名工大工, ²京大化研, ³関西大システム理工)

Tunneling conductivity in perpendicularly magnetized cobalt ferrite films prepared on metallic TiN layers
Masaaki Tanaka¹, Kousuke Nomura¹, Takaya Okuno², Syuta Honda³, Teruo Ono², and Ko Mibu¹
(¹Nagoya Inst. Tech., ²ICR, Kyoto Univ., ³Kansai Univ.)

はじめに

強磁性絶縁体薄膜を用いたトンネル接合では、トンネルバリアの高さが電子のスピンにより異なるため、トンネル電子のスピンに依存した透過率の差が生じ、スピン偏極した電流を生成することができる。この現象はトンネル型スピフィルター効果と呼ばれ、強磁性金属を用いない新しいスピン注入源として期待できる。一方、強磁性絶縁体のコバルトフェライト CoFe_2O_4 の(001)配向薄膜は、面内に結晶格子が引き伸ばされると、大きな垂直磁気異方性を示すことが知られている²⁾。キュリー温度が高いコバルトフェライトの垂直磁化薄膜を伝導性のある下地層の上に成長させることができれば、実用的な垂直磁化型のトンネル型スピフィルター膜として期待できる。コバルトフェライトは、Co と Fe の比率を変えることでその磁気特性を変化させることができる³⁾。本研究では非磁性金属 TiN 上に Co と Fe の比率を変えたコバルトフェライト垂直磁化膜の作製を行った。また、垂直磁化を持つコバルトフェライト膜のスピフィルター効率の評価を行った。

実験方法

YAG 2 倍波レーザーを用いたパルスレーザー堆積(PLD)法で、MgO(001)基板上に非磁性金属 TiN(約 15 nm)層を製膜し、その上に Co と Fe の比率を変えた $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$ ($0 < x < 1$) 薄膜(20 nm)を 6 Pa の酸素雰囲気、300°C の基板温度で作製した。X 線回折装置で結晶構造と格子歪みの評価を行い、SQUID 磁束計を用いて磁化測定および垂直磁気異方性の評価を行った。さらにメスバウアー分光測定により局所的な磁性の評価を行った。フォトリソグラフィと Ar イオンミリングを用いて直径が数 μm の $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4/\text{MgO}/\text{CoFe}$ 構造の磁気トンネル接合(MTJ)素子を作製し、トンネルバリア特性およびスピフィルター効率の評価を試みた。

実験結果

TiN(001)層上では $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$ 薄膜は(001)方向にエピタキシャル成長しており、Co の割合が減少すると垂直方向の格子定数が小さくなることがわかった。磁化測定から TiN 層上の $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$ 薄膜は垂直磁気異方性を持っており、磁化曲線から見積もった $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$ 薄膜の垂直磁気異方性エネルギーは $0.3 < x < 0.9$ の組成では $4 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ 程度であることがわかった。メスバウアースペクトルから、Co の割合が減少した $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$ 薄膜では Co^{2+} イオンが Fe^{2+} イオンに置換せずに Fe^{3+} イオンと格子の空乏に置き換わっていることがわかった。このことから $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$ 薄膜は Co の割合が減少すると強磁性伝導体のマグネタイト Fe_3O_4 ではなく強磁性絶縁体のマグヘマイト $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ に近づいていることがわかった。

MTJ 素子の電流電圧測定ではトンネル伝導を示す三次曲線が得られ、 $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$ 薄膜は良好なトンネル特性を示すことがわかった。

発表では格子ひずみと垂直磁気異方性との関係及び MTJ 素子のスピン分極率についても議論する。

参考文献

- 1) J. S. Moodera *et al.*, Phys. Rev. Lett. **61**, 637 (1988).
- 2) H. Yanagihara *et al.*, J. Appl. Phys. **109**, 07D122 (2011).
- 3) T. Niizeki *et al.*, Appl. Phys. Lett. **103**, 162407 (2013).

FeNiN 薄膜からの脱窒素による $L1_0$ -FeNi 薄膜の形成

伊藤啓太¹、林田誠弘¹、水口将輝¹、末益崇²、柳原英人²、高梨弘毅¹
 (¹東北大学 金属材料研究所, ²筑波大学 物理工学域)

Formation of $L1_0$ -ordered FeNi films by nitrogen extraction from FeNiN films

K. Ito¹, M. Hayashida¹, M. Mizuguchi¹, T. Suemasu², H. Yanagihara², K. Takahashi¹
 (¹IMR, Tohoku Univ. ²Inst. of Appl. Phys., Univ. of Tsukuba)

背景

希土類や貴金属を含まない資源が豊富な元素で構成される、高い軸磁気異方性エネルギー(K_u)を有する強磁性体材料が求められている。我々は $L1_0$ -FeNi 規則合金に注目して単結晶薄膜の作製と、規則度および K_u の向上に取り組んできた。一方でごく最近、正方晶 FeNiN の多結晶粉末に対する、水素ガス雰囲気下熱処理による脱窒素法により、比較的高い規則度(0.71)を持つ多結晶 $L1_0$ -FeNi 粉末の合成が実現された²⁾。本研究では、脱窒素法により高規則度単結晶 $L1_0$ -FeNi 薄膜を作製し、より正確に K_u 等の磁気物性値を評価するために、分子線エピタキシー(MBE)法による単結晶 FeNiN 薄膜の作製と、それらに対する脱窒素処理を行った。

実験

Fe、Ni、高周波(RF) N_2 の同時供給による MBE 法により³⁾、SrTiO₃(STO)(001)、MgAl₂O₄(MAO)(001)、MgO(001) 基板上に FeNiN 薄膜(20 nm)のエピタキシャル成長を試みた。成膜温度を 300 °C、 N_2 流量を 1.0 sccm、RF 入力を 240 W、Fe と Ni の蒸着レートはそれぞれ 0.040 Å/s および 0.038 Å/s で固定した。作製した試料に対し、温度 300 °C、時間 4 h、 H_2 流量 1 L/min での脱窒素熱処理を行った。試料の構造を Out-of-plane(ω -2 θ)および In-plane(ϕ -2 θ)X 線回折(XRD)で評価し、室温での磁化曲線を振動試料磁力計で測定した。

結果

XRD 測定の結果から、いずれの試料も a 軸配向 FeNiN 薄膜のエピタキシャル成長に成功し、膜面内に倒れた c 軸の方向が互いに 90°異なる、2 種類のバリエーションが形成された {FeNiN[001](100) || 基板[100](001)および FeNiN[010](100) || 基板[100](001)}。脱窒素後の XRD パターンは、上記のエピ関係を保ったまま窒素が抜けて FeNi が形成された場合のパターンと矛盾しなかった。Fig. 1(a)および 1(b)に、脱窒素後の試料の膜面内および面外に外部磁場を印加した際の磁化曲線を示す。参照として、単結晶 A1-FeNi 薄膜の磁化曲線も示した。Fig. 1(a)では脱窒素法で作製した FeNi 薄膜の方が A1-FeNi 薄膜よりも保磁力が大きく、残留磁化が小さい。Fig. 1(b)では、脱窒素法で作製した FeNi 薄膜の方が飽和磁場が大きい。これらの結果から、一軸磁気異方性が膜面内の 2 つの c 軸方向に付与された a 軸配向 $L1_0$ -FeNi 薄膜の形成が示唆された。Fig. 1(b)の磁化曲線から脱窒素後の試料の K_u は 9.9×10^5 erg/cm³ 程度と見積もられ、規則度は 0.1 程度と推測される⁴⁾。今後は、FeNiN 薄膜の作製条件や脱窒素処理条件を最適化し、規則度と K_u の向上を目指す。

謝辞

本研究は JSPS 科研費(No. 17K14651)、文部科学省推進プロジェクト元素戦略磁性材料研究拠点(ESICMM)の支援を受けた。

参考文献

- 1)K. Takahashi *et al.*, J. Phys. D: Appl. Phys. **50**, 483002 (2017). 2)S. Goto *et al.*, Scientific Reports **7**, 13216 (2017).
- 3)F. Takata *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **57**, 058004 (2018). 4)T. Kojima *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **51**, 010204 (2012).

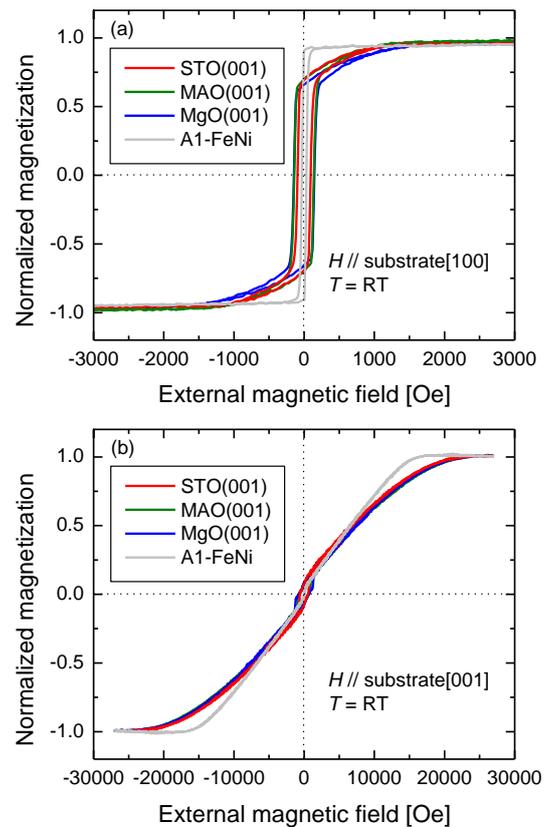


Fig. 1 Magnetization curves of FeNi films.
 $M_s = 1100$ emu/cm³.

MgO を配向制御下地膜に用いた FePd 薄膜の垂直磁気異方性

宮島 遼、神島 謙二、柿崎 浩一
(埼玉大学 大学院 理工学研究科)

Perpendicular magnetic anisotropy of the FePd thin films on MgO seed layers

H. Miyajima, K. Kamishima, and K. Kakizaki

(Graduate School of Science and Engineering, Saitama University)

はじめに

L1₀ 規則合金に変態することで高い結晶磁気異方性を示す FePd 合金が高密度磁気記録媒体として研究されている。しかし FePd 合金の L1₀ 規則化には通常 500°C 以上に加熱した基板への薄膜堆積が必要であり、L1₀ 規則相が生成したとしてもその c 軸は膜面内および膜面直方向に混在する傾向がある¹⁾。本研究では下地膜として(200)配向 MgO 薄膜を用い、FePd 薄膜に対してエピタキシャル成長時の格子歪を加えることにより、L1₀ 規則化の促進を図るとともに、磁化容易軸である c 軸を膜面直方向に配向させることを目的とした。

実験方法

成膜には rf マグネトロンスパッタ装置を用いた。ターゲットには MgO 焼結体円板および Fe 円板上に Pd チップを貼り付けたものを使用した。チャンバー内を 8.5×10^{-7} Torr 以下に排気後、Ar ガスを導入し 12.5 mTorr とした。投入電力は 2.2 W/cm² とし、石英ガラス基板上に膜厚が約 130 nm となるように MgO 下地膜を成膜し、大気中 800°C で 5 時間熱処理した。この下地膜上に FePd 膜を膜厚が 70 nm となるように積層した。積層後、減圧下水素雰囲気中、800°C で 1 時間熱処理した後、急冷した。作製した試料の組成はエネルギー分散型 X 線分析装置(EDX)により定量し、結晶構造は X 線回折法(XRD)により解析し、磁気特性は振動試料型磁力計(VSM)により測定した。

結果および検討

図 1 は石英ガラス基板上、MgO 下地膜上および熱処理後の MgO 下地膜上にそれぞれ成膜し 800°C で熱処理した FePd 薄膜の X 線回折図を示す。石英ガラス基板上に直接成膜した FePd 薄膜は fcc の不規則相であり、その最密充填面である(111)面が膜面内に優先配向する。対して MgO 下地膜上に積層した FePd 薄膜では L1₀ 規則相に由来する(001)面からの回折線が確認できることから、MgO 下地膜の効果によって規則化が促進されたといえる。また、熱処理後の MgO 下地膜を用いた試料では、L1₀-FePd 規則相の結晶性が向上するが、その c 軸は膜面直方向に完全に配向はしていない。

図 2 はこれらの膜の磁化値および保磁力を示す。全ての試料において磁化値に大きな違いは見られない。一方、MgO 下地膜上に積層した FePd 膜の膜面内(H_{C||})および膜面直(H_{C⊥})方向に測定した保磁力は FePd 単層膜に比べて小さく、規則化による保磁力の向上は確認できない。これは、MgO 下地膜上に積層した FePd 膜の結晶性が低く規則化が十分でないこと、連続膜であるために磁壁が生じたことなどが原因と考えられる。

参考文献

- 1) M. Futamoto *et al.* ; AIP ADVANCES, 6 (2016) 085302.

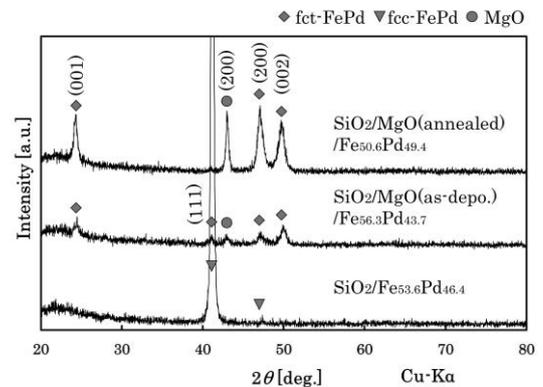


図 1 石英ガラス基板および MgO 下地膜上に成膜した FePd 薄膜の X 線回折図

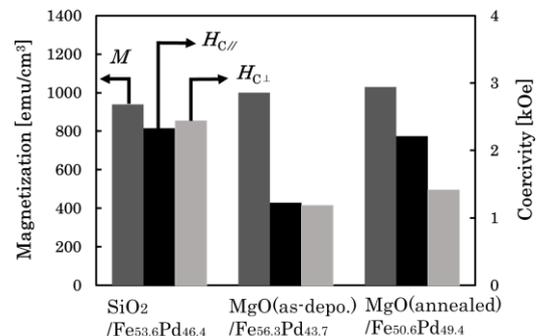


図 2 石英ガラス基板および MgO 下地膜上に成膜した FePd 薄膜の磁気特性

Mn_{3-x}Fe_xGa 組成変調薄膜の作製と磁気特性

佐藤啓、片山靖和、嶋敏之、土井正晶
(東北学院大学)

Preparation of composition modulated Mn_{3-x}Fe_xGa thin films and their magnetic properties

K. Sato, S. Katayama, T. Shima and M. Doi
(Tohoku Gakuin University)

はじめに

MnGa 合金薄膜は飽和磁化(~ 200-600 emu/cm³)¹⁾、高結晶磁気異方性(~ 10-20 Merg/cm³)¹⁾、高スピン分極率(~ 88%)²⁾を示し、貴金属や希土類元素を含まない新規永久磁石材料やスピンエレクトロニクスデバイスの次世代材料として魅力的な特性を持っている。また、MnGa 薄膜は組成の変化により強磁性からフェリ磁性を示し、チューナブルな飽和磁化と高結晶磁気異方性を有することが報告されている。MnGa 合金薄膜は現在盛んに研究が行われているが、蒸着法を用いた MnGa 合金薄膜の報告はわずかしかない^{3,4)}。また、MnGa に Fe を添加した MnFeGa 薄膜においても知見を得ることが求められている。そのため本研究では、超高真空電子ビーム蒸着装置を用いて Mn_{3-x}Fe_xGa 組成変調薄膜を作製し、磁気異方性および諸磁気特性の関係を明らかにすることを目的とした。

実験方法

ターゲット材料にはアーク溶解炉で作製した Mn_{1.0}Ga_{1.0} 合金を使用し、薄膜試料の作製は 8.9×10⁻⁷ Pa 以下の超高真空電子ビーム蒸着装置(UHV-EB)で行った。また、膜構成は MgO(100)単結晶基板にバッファ層として Cr を 5 nm、磁性層として Mn_{3-x}Fe_xGa を 20 nm、キャップ層として Cr を 10 nm とした。結晶構造は X 線回折装置(XRD)、結晶成長評価を反射高速電子線回折装置(RHEED)、磁気特性は超伝導量子干渉磁束系(SQUID)、表面形態は原子間力顕微鏡(AFM)、組成分析はエネルギー分散型 X 線分析(EDX)を用いて評価した。

実験結果

Fig. 1 に Mn_{2.5}Fe_{0.5}Ga 薄膜の磁化曲線を示す。(a) は熱処理をしていない試料、(b)は 400°C で 1 時間熱処理をした試料である。(b)の試料では、(a)の試料と比較し角型性と磁気異方性が向上し、K_u = 6.4 Merg/cm³ が得られた。しかしながら、飽和磁化は熱処理によって低下し、M_s = 168 emu/cm³ であった。XRD の測定結果からは、熱処理による結晶構造の変化は見られなかったものの、c 軸の減少が確認された。講演では、Mn_{3-x}Fe_xGa 組成変調薄膜における磁気異方性および諸磁気特性と結晶構造の関係について報告する。

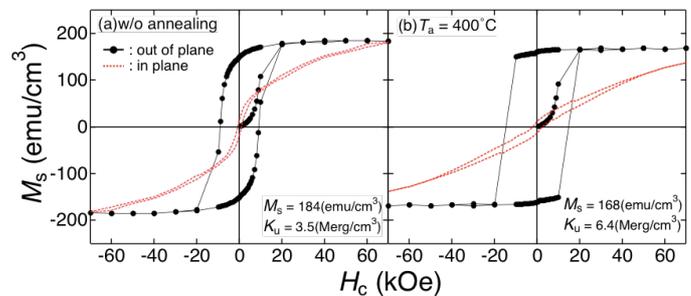


Fig. 1 Magnetization curves of Mn_{3-x}Fe_xGa thin films.

参考文献

- 1) S. Mizukami, T. Kubota, F. Wu, X. Zhang, T. Miyazaki, H. Naganuma, M. Oogane, A. Sakuma, and Y. Ando, *Phys. Rev. B* **85**, 014416 (2012).
- 2) B. Balke, G. H. Fecher, J. Winterlik, and C. Felser, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 152504 (2007).
- 3) Y. Takahashi, H. Makuta, T. Shima and M. Doi, *T. Magn. Soc. Jan.* **1**, 30-33 (2017)
- 4) K. Sato, Y. Takahashi, H. Makuta, T. Shima and M. Doi, *JMSJ*, submitted.

$L1_0$ -MnGa/ Cr/ $D0_{22}$ -MnGa 3層膜の微細加工と磁気特性

菊地優祐、幕田裕和、嶋敏之、土井正晶

(東北学院大学)

Microfabrication and magnetic properties of $L1_0$ -MnGa/ Cr/ $D0_{22}$ -MnGa tri-layer thin films

Y.Kikuchi, H.Makuta, T.Shima, M.Doï

(Tohoku Gakuin Univ.)

はじめに

情報化が進み日々生成される情報量は増加し記録媒体の高密度が望まれている。近年 HDD は微細化によりその容量を急激に増加させているが、それに伴う問題点として熱ゆらぎが挙げられ、更なる微細化に対して求められる一軸磁気異方性定数 K_u は 10 Merg/cm^3 であると報告されている。また、磁性層を磁氣的に分断することで多値の情報を記録することができる多値記録媒体が現在の記録密度の限界を大きく引き上げる可能性を秘めているとして期待されている。我々の研究室では $L1_0$ -FePt を用いた FePt/MgO/ FePt 多層円形ドットを作製した。その磁気特性を観察したが下層と上層の保磁力差はドットサイズ(D)を小さくするにつれて減少し、 $D=0.3 \mu\text{m}$ の時、保磁力差の消失が確認された。飽和磁化が高いことによる磁気双極子相互作用の影響や磁気異方性が同値であることから加工後の保磁力が近似してしまうことが原因と考えられる。MnGa 合金は、組成変調により $L1_0$ 構造及び $D0_{22}$ 構造を示し、それぞれ異なる一軸磁気異方性定数、また FePt に比べ低い飽和磁化を有する。そこで本研究では多値記録媒体への応用に向けた、MnGa 多層薄膜及びドット試料の磁気特性の解明を目的とした。

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。酸化マグネシウム単結晶基板上にバッファ層として Cr を 5 nm 成膜した。400 °C で 30 分間アニールした後、基板温度 300 °C で $L1_0$ -MnGa 層を交互積層法により積層した、ポストアニリングは 400 °C で 60 分間行った。試料を室温に冷まし、キャップ層またはスペーサー層として Cr($t_{\text{Cr}}=0 \sim 40 \text{ nm}$)を成膜した。多層薄膜の場合、再び試料温度を 300 °C まで加熱し $D0_{22}$ -MnGa 層を交互積層法により積層しポストアニリングを行った。その後室温に戻しキャップ層には Cr を用いた。円形ドット試料は $D = 2.0 \mu\text{m}$ 以下で作製した。レジストとして TGMR3.6cp(Negative type)を塗布し、EB リソグラフィーにより露光した。その後 Ar イオンミリングにより微細加工を行った。結晶構造は XRD、ドット形状は AFM、磁気特性は SQUID または MOKE で測定した。

実験結果

作製した多層薄膜の XRD 測定結果より、 $t_{\text{Cr}}=1 \sim 40 \text{ nm}$ の時 $L1_0$ -MnGa または $D0_{22}$ -MnGa 層のピークがそれぞれ観察された。また SQUID 測定結果より $t_{\text{Cr}}=5 \sim 40 \text{ nm}$ の時保磁力差によるステップが確認された。微細加工後の円形ドット試料の MOKE 測定結果より、 D の減少に伴い保磁力差の減少が確認された。 $t_{\text{Cr}}=5 \text{ nm}$ では $D=0.2 \mu\text{m}$ で保磁力差の消失が確認された。しかしながら更なる微細化により磁気異方性の差異から再び保磁力差が現れることが期待される。

α -(Fe, Co)OOH を出発原料とした還元窒化プロセスによる セミハード α'' -(Fe, Co)₁₆N₂ ナノ粒子作製の試み

飛世 正博, 斉藤 伸 (東北大学)

Challenge to the synthesis of semi-hard α'' -(Fe, Co)₁₆N₂ nanoparticles obtained
by hydrogen reduction and subsequent nitrogenation starting from α -(Fe, Co)OOH

Masahiro Tobise, Shin Saito (Tohoku University)

はじめに 窒素侵入型化合物 α'' -Fe₁₆N₂ は 226 emu/g の飽和磁化と 9.6×10^6 erg/cm³ の一軸結晶磁気異方性エネルギーを有することからセミハード磁性材料としての応用が期待されている¹⁾。講演者らは水酸化鉄および酸化鉄を還元して得た Fe 粒子を窒化し α'' -Fe₁₆N₂ 粒子を合成するプロセスにおいて、出発原料やプロセス条件と α'' -Fe₁₆N₂ 粒子形態との相関および粒子形態が磁気特性に及ぼす影響について一連の研究を行っている²⁾。今回は第一原理計算によって結晶磁気異方性の増大が予測されているものの薄膜では形成が難しい α'' -(Fe, Co)₁₆N₂ 相³⁾ について粒子での実現を目指すべく、Fe を Co で置換した出発原料からの還元窒化合成法を検討した。

実験方法 まず第一鉄塩水溶液の中和-湿式酸化法により、出発原料となる α -(Fe, Co)OOH ナノ粒子を合成した。原料として FeSO₄ と CoSO₄ を用い、目標とする合成物質を α -(Fe_{1-x}Co_x)OOH と表した場合の x が 0.02 および 0.05 となるよう配合した。中和するためのアルカリには Na₂CO₃ を用いた。次に出発原料を 300~500 °C で 4 時間 水素中還元し、引き続き 150~170 °C で 5 時間アンモニア中窒化を行った。粒子形態は TEM, 生成相は X 線回折, 磁気特性は VSM で評価した。

実験結果 Fig. 1 に合成した出発原料ナノ粒子の TEM 像を示す。 $x = 0$ および 0.02 の場合はスピンドル形状の粒子が形成されるが、0.05 では球形粒子が支配的に形成された。生成相は $x = 0$ および 0.02 の場合は α -(Fe, Co)OOH 単相であったが、0.05 では α -(Fe, Co)OOH と α -(Fe, Co)₂O₃ の混相であった。したがって今回の合成条件ではスピンドル形状粒子が (Fe, Co)OOH, 球状粒子が α -(Fe, Co)₂O₃ であり Co 含有量の増大により α -(Fe, Co)₂O₃ 相が形成されやすくなることが示唆される。続いて実施した還元プロセスの検討では、いずれの Co 濃度の試料も 340 °C 以上で還元され、 α -(Fe, Co) 単相粒子が生成されることを確認した。Fig. 2 に還元された α -(Fe, Co) ナノ粒子の結晶子径 D の Co 量依存性を示す。Co 含有量の増加にともない D は減少した。さらに得られた還元粒子に対して種々の条件で窒化処理を行ったところ、Co 含有試料では α'' -(Fe, Co)₁₆N₂ の単相試料は得られず、未窒化の α 相が残存した。Fig. 3 に種々の条件で還元窒化したナノ粒子集合体の H_c の Co 量依存性を示す。一例として還元温度 340 °C, 窒化温度 155 °C の場合に注目すると (●), $x = 0$ では α'' -Fe₁₆N₂ 粒子が形成され集合体の H_c は 1050 Oe を示したが、 x の増加にともない H_c は低下している。これは異方性の小さい未窒化 α -(Fe, Co)相が残存していることと対応している。講演では還元後の α 相からの α'' -(Fe, Co)₁₆N₂ 相の生成率を向上させるための窒化条件について詳細に報告する。

参考文献 1) R. Skomski, J. M. D. Coey, *Scripta Materialia.*, **112**, 3 (2016). 2) M. Tobise, T. Ogawa, and S. Saito, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **41**, 58 (2017). 3) X. Zhao, C. Wang, Y. Yao, and K. Ho, *Phys. Rev.*, **B94**, 224424 (2016).

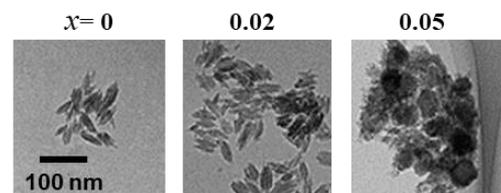


Fig. 1 TEM images of nanoparticles as starting materials synthesized by neutralizing and oxidation

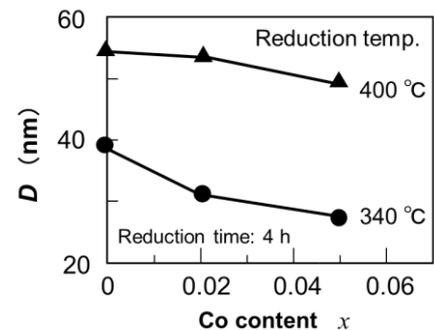


Fig. 2 The change of crystallite diameter D of reduced α -(Fe, Co) as a function of Co content for starting materials.

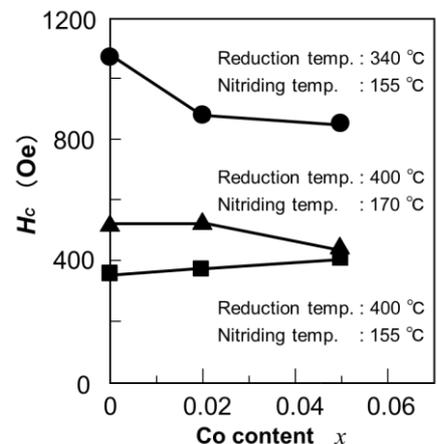


Fig. 3 H_c of nanoparticles obtained by hydrogen reduced α -(Fe, Co) nanoparticles and subsequent nitrogenation.

強磁性窒化鉄系複合材料の作製とその磁気特性

○小川智之^{1,2,3}、小林齊也^{1,3,4}、ルワン ガラゲ⁵

(¹東北大院工、²東北大 RaMGI、³株式会社 Future Materialz、⁴京都大学 iCeMS、⁵Univ. Ruhuna)

Fabrication of ferromagnetic iron-nitride nanocomposite and its magnetic properties

○T. Ogawa^{1,2,3}, N. Kobayashi^{1,3,4}, and R. Gallage⁵

(¹Eng., Tohoku Univ., ²RaMGI, Tohoku Univ., ³Future Materialz Co. Ltd., ⁴iCeMS, Kyoto Univ. ⁵Univ. Ruhuna)

強磁性窒化鉄(α' -Fe₁₆N₂)は大きな飽和磁化(234emu/g)と結晶磁気異方性(1×10^7 erg/cm³)を有し¹⁾、サブミクロンサイズ～ナノサイズの粒子粉末およびそれらのバルク体は将来の低消費電力・高効率モータや高周波デバイス、電磁波吸収用部材などに資する新たな高機能磁性材料²⁾のひとつとして注目されている。しかしながら、磁気異方性が既存の希土類系永久磁石材料に比べ小さいことから、応用展開を図る上で特性の改善が必要となる場合がある。

本講演では、 α' -Fe₁₆N₂粉末の高飽和磁化の特徴を活かしつつ Fe₁₆N₂相の高異方性化を実現することを意図し、既存の希土類系材料の一例として Sm-Fe-N 相に着目し、それら粉末の複合化を行うことで、残留磁化(M_r)や保磁力(H_c)等の磁気特性の制御性に関する基礎検討を行った。

高磁気異方性を有する Sm-Fe-N 磁石粉末(日亜化学工業社製)と α' -Fe₁₆N₂粉末を所望の比率で混合し、無磁場中で樹脂をバインダーとして簡易成型しミリメートルサイズのバルク状試料を作製した。結果の一例として、作製した試料の磁化曲線を Fig.1 に示す。非常に興味深いのは、窒化鉄粉末単体(同図中点線)あるいは Sm-Fe-N 粉末単体(同図中実線)とは異なる磁化曲線となり、両者の中間的特性が得られている点にある。特に、Fe₁₆N₂と Sm-Fe-N の磁化が一緒になって外部磁場に追従し、保磁力近傍で一斉に磁化反転する挙動が観測されている。これは Fe₁₆N₂粉末と Sm-Fe-N 粉末間で強い磁氣的相互作用(交換相互作用など)が存在していることを示唆している。また、Fig.2 に示すように、 M_r および H_c の磁気特性の絶対値には改良の余地が残されるものの、組成比率に対し系統的に磁気特性が変化していることが分かり、 α' -Fe₁₆N₂-Sm-Fe-N 複合材料において再現性良く磁気特性を制御できることが示唆された。

本研究の推進にあたり、Sm-Fe-N 磁粉をご提供いただきました日亜化学工業株式会社様、ならびに、理論的側面から議論いただきました大阪大学川村光教授に感謝申し上げます。本研究の一部は、科学研究費補助金 基盤研究(B)(一般) (18H01466)、公益財団法人三菱 UFJ 技術育成財団 平成 29 年度第 2 回研究開発助成金の支援を受けて行われたものである。

参考文献

- 1) T. Ogawa *et al.*, *Appl. Phys. Exp.* **6** (7), 073007 (2013).
- 2) 小川智之、まぐね **12**, No. 3, 115 (2017).

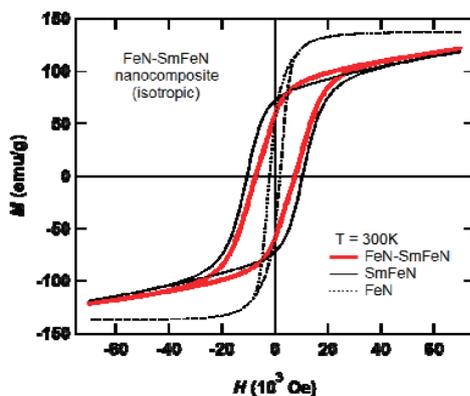


Fig.1 Magnetization curves for bulk α' , α' -Fe₁₆N₂, Sm-Fe-N and Fe₁₆N₂-Sm-Fe-N nanocomposite.

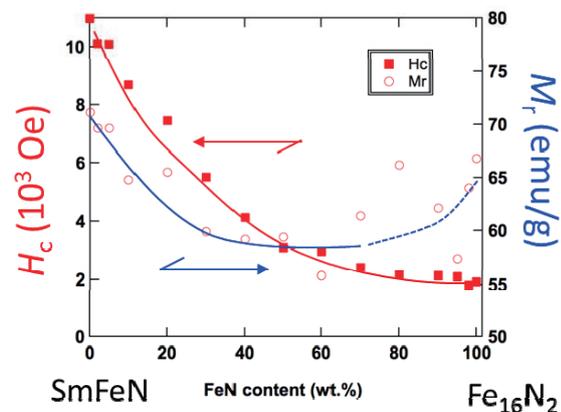


Fig.2 M_r and H_c v.s. Fe₁₆N₂ content for bulk Fe₁₆N₂-Sm-Fe-N nanocomposite.

Fe-Ni-epoxy 複合膜の LbL 法アシスト複合めっきによる作製

竹内 誠, 武藤 浩行*, 渡邊 佳孝, 藤田 直幸 (奈良高専, *豊橋技科大)

Fabrication of Magnetic Fe-Ni-epoxy Composite Film by the LbL Assisted Composite Plating Method

M. Takeuchi, H. Muto*, Y. Watanabe, N. Fujita

(National Institute of technology, Nara College, *Toyohashi University of Technology)

はじめに

本研究室ではウェットプロセスによる電磁波吸収材料の作製を目指している。本研究では、LbL (Layer by Layer) 法で電荷を増加させた磁性金属微粒子 (Fe-Ni 微粒子) を電気泳動力により陰極に引き付け絶縁膜 (epoxy) と共析させることで膜中に取り込む方法を考案し、これを「LbL 法アシスト複合めっき法」と名付けた。LbL 法とは粒子をポリカチオン系溶液とポリアニオン系溶液に交互浸漬させ、粒子表面に電荷を付与する技術であり、これを磁性金属微粒子に適用すれば表面電荷量を増加させることができ、成膜した際に膜中の金属微粒子量の増加が期待できる。

実験方法

Fe-Ni 微粒子(ニラコ社製, 平均粒径 60nm)をポリアニオン系溶液 (PSS : 1wt.%, NaCl:0.5mM) に浸漬後、ポリカチオン系溶液 (PDDA : 1wt.%, NaCl:0.5mM) に浸漬させ表面電荷の調節を行った。0.25~3.0g/L の Fe-Ni 微粒子と 40ml/L の水溶性エポキシ(日本ペイント製 N12)をイオン交換水に添加したものを反応液とした。1cm² の Cu 板を陰極, Ti/Pt 板を陽極にして電流密度 -4mA/cm² で 5min の条件で電析を行った。膜中の Fe-Ni 含有率は、飽和磁化の大きさと膜重量から算出した。

実験結果

LbL 処理を施すことにより溶液中の Fe-Ni の分散性が向上することが観察された。図 1 より、溶液中の Fe-Ni 濃度が高濃度になるほど膜中の微粒子含有率が高くなるが、LbL 処理有りの場合の方が、表面電荷が増加するため、高い膜中微粒子含有率が得られることが明らかになった。図 2 の LbL 処理無しの場合の膜の断面写真では、粒子が膜中に凝集して存在しているため、観察試料作製時の研磨で凝集粒子が脱離したことが原因による断面の凹凸が観察された。一方、図 3 の LbL 処理有りの場合は、反応液中に微粒子が均一に存在しているため、膜中でも凝集が起らず均一な複合膜が得られた。また、LbL 処理無しの場合は約 35 μ m であった膜厚が、LbL 処理有りの場合は約 80 μ m と 2 倍以上になっていた。LbL 処理無しの場合は、Fe-Ni 凝集体がエポキシの成長を阻害するため、膜厚が小さくなったと考えている。以上のことから、LbL 法アシスト複合めっきを適用することで、均一でより厚い Fe-Ni-epoxy 複合膜が得られることが分かった。

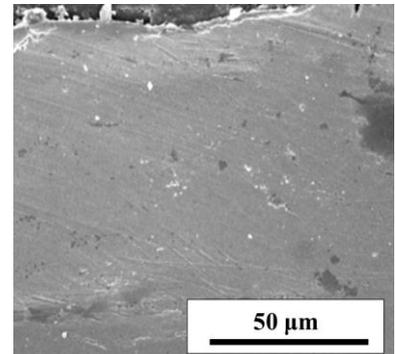
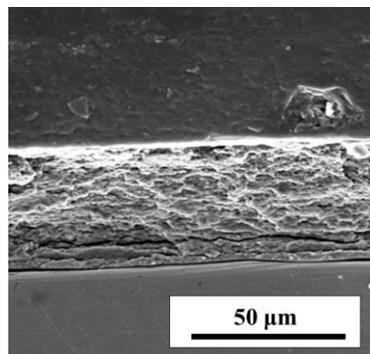
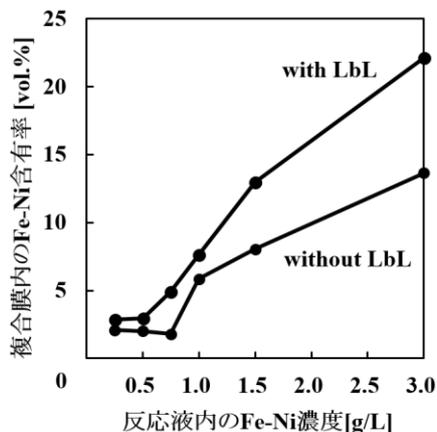


図 1 溶液中 Fe-Ni 濃度と Fe-Ni 含有率

図 2 LbL 処理無しの膜断面像

図 3 LbL 処理有りの膜断面像

磁性ナノ粒子の規則配列制御のためのメソポーラスシリカ細孔壁構造

木村貴俊 榮岩哲二

信州大学 工学部

Structure of mesoporous silica thin films for ordered magnetic nanoparticles

Takatoshi Kimura, Tetsuji Haeiwa

(Faculty of Engineering, Shinshu University)

はじめに

界面活性剤の自己組織化を利用したメソポーラスシリカは、直径約 10nm の細孔を持つことから、細孔の細孔壁を利用した磁性ナノワイヤ及びナノ粒子の配列制御の可能性を検討している。一昨年、我々は蒸発誘起型自己組織化(EISA)法で作製した界面活性剤 F127 を使用したメソポーラスシリカ薄膜上にスパッタ法で FePt ナノ粒子形成を行ったところ FePt ナノ粒子は細孔壁に配列することがわかった¹⁾。本研究では、EISA 法によるメソポーラスシリカ薄膜の合成過程(MPT)における表面構造の変化を調べ、ナノ粒子配列に適した表面構造の可能性を検討したので報告する。

実験方法

低抵抗シリコンウェーハ基板上に界面活性剤 PluronicF127 を使用し、膜厚 100~200nm のメソポーラスシリカ薄膜を作成する²⁾。湿度・温度の制御を行い、乾燥時間 6 時間から 12 時間の範囲で薄膜を作製し、その表面構造変化を調べた。メソポーラスシリカ薄膜上に、DC マグネトロンスパッタリング法により、基板温度 300°C での FePt ナノ粒子形成を試みた。表面構造は、SEM により観察した。

実験結果

Fig.1 に高湿度環境下で合成時間(a)6 時間、(b)12 時間のメソポーラスシリカ薄膜の表面 SEM 画像を示す。合成初期の(a)では、右上から左下方向に直線的な壁が形成され、その壁が平行に配列している。壁厚は約 5nm、間隔 14nm であった。合成の進んだ(b)では、メソ孔周囲の壁が形成され(a)で観察された壁の平行配列は明確でなくなった。(a)、(b)細孔壁間に薄層が存在し、ともに明確なメソ孔形成は観察されなかった。

Fig.2 に合成時間(a)6 時間、(b)12 時間 MPT 上に形成した FePt ナノ粒子の SEM 画像を示す。どちらも粒子径約 2nm の FePt ナノ粒子が観察された。

FePt ナノ粒子は細孔壁上だけでなく、壁間の薄膜上にも形成されている。これは、細孔壁とその間の薄膜と高低差がなく、両者に粒子形成されたものだと考えられる。今後、メソポーラスシリカ薄膜では規則配列化・高低差の改善を行い、粒径 5nm 程度の FePt 粒子形成と L10 規則構造化を検討し、当日報告する予定である。

参考文献

1) N.Isoda, T.Haeiwa, *Magnetics Jpn*, 6pE-4,(2016)

2) G.N.A. Hussen, H.SHIRAKAWA, W.D.Nix, and B.M.Clemens, *J.Appl.Phys*100,114322,(2006)

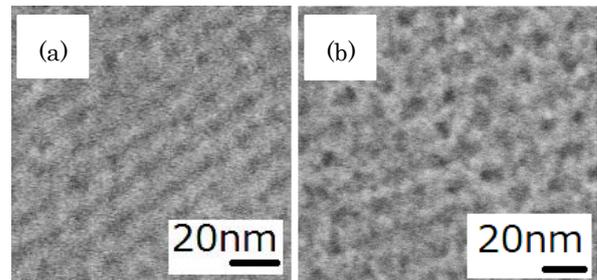


Fig.1 SEM image of mesoporous silica film, (a)Dry for 6 hour, (b)Dry for 12 hour

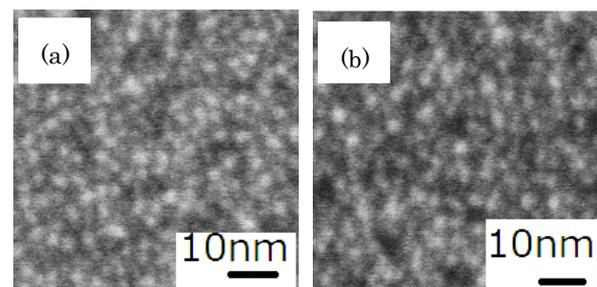


Fig.2 SEM image of FePt(300°C) on mesoporous silica film,(a)Dry for 6 hour, (b)Dry for 12 hour

Co 充填に適した六方晶メソポーラス薄膜垂直配向化の検討

佐藤健裕、榮岩哲二
(信州大学 工学部)

Structure of hexagonal mesoporous silica thin films with Co nano-particles

T.Satou, T.Haeiwa

(Faculty of Engineering, Shinshu University)

はじめに

界面活性剤の自己組織化する性質を利用した、メソポーラスシリカ薄膜(MP 薄膜)は規則配列した数 nm のメソ孔と酸化壁をもち、メソ孔内に磁性金属を充填することで形成された磁性ナノワイヤアレイは高感度磁気センサの材料となると期待される。MP 薄膜成膜法である蒸発誘起自己組織化法(EISA 法)¹⁾では、メソ孔は基板に平行方向に配列する傾向があり、基板に垂直配向した MP 薄膜合成が大きなテーマである。本研究は、垂直配向 MP 薄膜成膜を目的として、界面活性剤を Pluronic P104 とする MP 薄膜を EISA 法で製膜し、蒸発速度に関わる湿度による表面構造変化を検討したのでその報告をする。

実験方法

基板には低抵抗シリコンウェハを用いた。溶液①: EtOH(エタノール)、1MHCl、TEOS、H₂O と、溶液②: Pluronic P104、EtOH を混合し、EtOH を加えコーティング液とする。この溶液を基板にディップコートし、高湿度環境下で 6 時間エイジングする。その後、真空乾燥し、メソポーラスシリカ薄膜を形成した。メソ孔内への Co 充填は、電解パルスメッキにより行った。薄膜内の P104 は、紫外線 30 分照射で除去し、Co 充填は電流値、カウント数を変えて行った。試料評価は、SEM で行った。

実験結果

Fig 1 にエイジング時の湿度が(a)92%の時、(b) 87%の MP 薄膜の表面の SEM 画像を示す。湿度が 92%の時、メソ孔はランダム配列であった。湿度 87%の時、六角型に規則配列したメソ孔が観察された。P104 は広い濃度範囲でヘキサゴナル構造となることから表面の六角配列は、メソ孔がヘキサゴナル構造を持ち、基板に垂直配向していると考えられる。湿度 87%での蒸発速度が垂直配向に適していると考えられる。

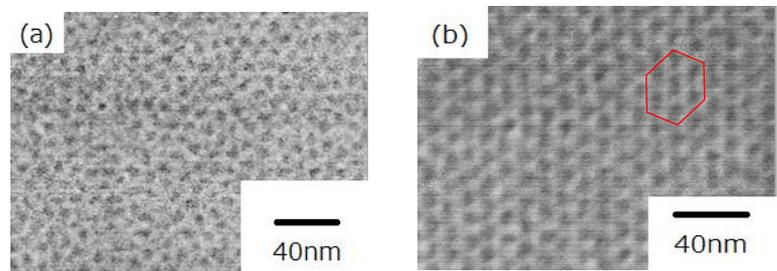


Fig 1 SEM image of mesoporous silica film,
(a) The humidity is 92%, (b) The humidity is 87%

垂直配向の可能性を調べるためにメソ孔内への Co 充填を試みた。Fig 2 に電流値 1mA でメッキを行った場合の表面 SEM 画像を示す。薄膜表面に大きな Co 粒子が観察された。この Co 粒子は、電流値 1mA 以上の場合いずれも観察されるが、1mA より低電流では観察されないため、高電流では MP 薄膜構造の局所破壊が生じると考えられる。今後メソ孔の垂直配向の確認を進め、1mA 以下の電流値で最適メッキ条件を検討し、詳細を当日報告する予定である。

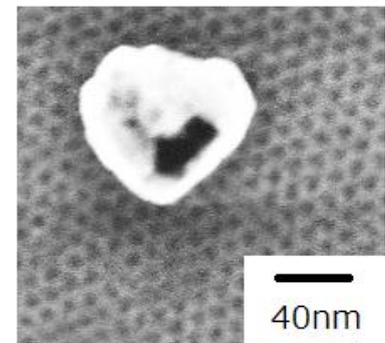


Fig 2 Surface of mesoporous silica thin film at 1 mA

参考文献

- 1) Synthesis of Surfactant-Templated Silica Films with Orthogonally Hexagonal Mesophase (J.phys. Chem. B 2005,109,3279-3283)

銀/ビスマス界面を伴うパーマロイ薄膜の磁化ダイナミクス

富田知志, 妹尾駿一, 加藤剛志*, 大島大輝*, 岩田聡*, 細糸信好, 柳久雄
(奈良先端大, *名古屋大)

Magnetization dynamics of permalloy thin films with silver/bismuth interfaces
S. Tomita, S. Seno, T. Kato*, D. Oshima*, S. Iwata*, N. Hosoito, and H. Yanagi
(NAIST, *Nagoya Univ.)

1 はじめに

前回我々は銀 (Ag) /ビスマス (Bi) 二層膜上に形成されたパーマロイ (Py) 薄膜の縦 Kerr 効果が、近赤外領域で増強されることを報告した¹⁾。Ag/Bi 界面では大きな Rashba 型スピン軌道相互作用 (SOI) が期待される。そして Py 膜でのスピンポンピングによって生成されたスピン流が、Ag/Bi 界面での Rashba 型 SOI によって電荷流に変換される逆 Edelstein 効果も報告されている²⁾。このような Rashba 型 SOI が存在する系での Py の磁化ダイナミクスは興味深い³⁾が、実験的にはあまり調べられていない。そこで今回我々は時間分解磁気光学 Kerr 効果 (TRMOKE) 法を用いて、Py/Ag/Bi 三層膜での磁化のダイナミクスを調べる。特にギルバートダンピング (α) の Bi 膜厚依存性に着目する。

2 実験方法

多元パタリング法を用いて Si(100) 基板上に多層膜を作製する。Bi を x nm 成膜したのち、Ag を 5 nm、Py を 30 nm の順に成膜する。 x は 0-40nm の範囲で変化させる。最後に保護膜として窒化シリコンを 40 nm 堆積する。比較のために、Ag を抜いた Py/Bi 二層膜も作製する。ポンプ・プローブ法による TRMOKE 測定には、中心波長 1064 nm、繰り返し周波数 100 kHz、パルス幅 500 fs のファイバレーザをポンプ光源に用いる。プローブパルスには第二高調波を利用する。外部直流磁場は試料面直から 40° 傾けて、最大で 14 kOe を印加する。

TRMOKE 測定ではポンパルスによる消磁から、磁化が歳差運動とともに復元していく過程を時間領域で観測できる。時間波形を減衰振動 $\exp(-t/\tau)\sin 2\pi ft$ でフィッティングして、歳差運動の周波数 f と減衰時間 τ を得る。印加磁場の強度 (H_{ext}) を変えて、異なる f での歳差運動を調べる。そして H_{ext} に対する f のプロットから g 値が得られる。さらに f に対する $1/\tau$ のプロットから、異方性分散と α を実験的に見積もることができる。

3 結果および考察

Fig. 1 に α の Bi 膜厚依存性を示す。赤四角が Py/Ag/Bi での結果を、青丸が対照試料の Py/Bi での結果を表す。Py/Bi では、Bi 膜を 0nm から 40nm まで厚くすると、 α が徐々に増加する。これは元々 Bi 原子は SOI が大きく、Bi 膜がスピンシンクとして働く⁴⁾と考えると妥当である。すなわちポンプ光によって Py に誘起された磁化の歳差運動により、スピン流が生成され、それが Bi 膜に吸い込まれると考えれば良い。一方、赤四角で示すように Ag 層を挿入すると、 α は Bi 膜厚 20nm で極大を持ち、その後は減少に転ずる。Ag 層が無い場合に比べて、Py30nm/Ag5nm/Bi30nm では約半分の α しかない。これは通常のスピンポンピングのみでは説明できない。なお g 値と異方性分散は、Ag の有り/無しに関わらず同じような振る舞いをするのがわかっている。当日は Ag が挿入された Py/Ag/Bi 三層膜での α の変化のメカニズムについて議論する。本研究の一部は科研費 (16K04881) 及び名古屋大学微細加工 PF の支援を受けて行われた。

References

- 1) P. Riego, S. Tomita, K. Murakami, T. Kodama, N. Hosoito, H. Yanagi and A. Berger, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **50**, 19LT01 (2017).
- 2) J. C. Rojas Sánchez, L. Vila, G. Desfonds, S. Gambarelli, J. P. Attané, J. M. De Teresa, C. Magén and A. Fert, *Nature Commun.* **4**, 2944 (2013).
- 3) M. B. Jungfleisch, W. Zhang, J. Sklenar, W. Jiang, J. E. Pearson, J. B. Ketterson and A. Hoffmann, *Phys. Rev. B.* **93**, 224419 (2016).
- 4) D. Hou, Z. Qiu, K. Harii, Y. Kajiwara, K. Uchida, Y. Fujikawa, H. Nakayama, T. Yoshino, T. An, K. Ando, X. Jin and E. Saitoh, *Appl. Phys. Lett.* **101** 042403 (2012).

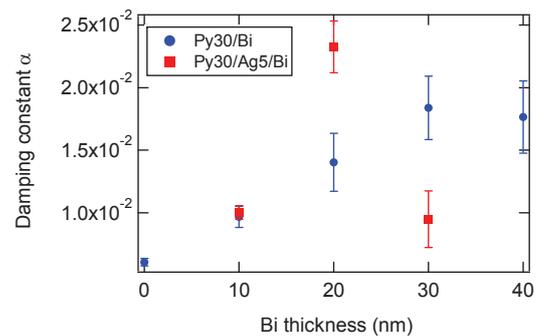


Fig. 1 Gilbert damping α is plotted as a function of Bi-layer thickness. Blue circles and red squares correspond to Py/Bi and Py/Ag/Bi samples, respectively.

新規磁化ダイナミクス計測法による 磁性薄膜におけるダンピング定数と磁気ひずみの評価

遠藤 恭¹, 森 修², 藪上 信¹, 内海 良一², 島田 寛²
(¹ 東北大, ² (株)東栄科学産業)

Estimation of Damping Constant and Saturation Magnetostriction in Magnetic Thin Films
Using New Magnetization Dynamics Measurement Method

Yasushi Endo¹, Osamu Mori², Shin Yabukami¹, Ryoichi Utsumi², Yutaka Shimada²
(¹ Tohoku Univ., ² Toei Scientific Industrial Co.,Ltd)

はじめに

MRAMや磁気ヘッドなどの磁気デバイスを開発していく上で、デバイスを構成する磁性薄膜の磁化ダイナミクスを検討することが重要である。この磁化ダイナミクスは一般に磁化の歳差トルクと制動（ダンピング）トルクからなり、制動トルクを決めるダンピング定数 (α) は磁化ダイナミクスの主要なパラメータのひとつである。我々はこれまでに Ni-Fe 膜や Ni-Fe-M 膜 (M: 添加元素) における α と磁気ひずみとの相関関係を明確にしてきた¹⁾。さらに、これらのパラメータの相関関係を詳細に検討するために、 α と磁気ひずみを同時に計測できる新規磁化ダイナミクス計測法を開発した。本研究では、本計測法を用いて、Fe-M (M=Ni, Si, Ga) 薄膜の α と磁気ひずみを評価した。また、磁気ひずみに関しては従来の計測法と比較検討した。

実験方法

Fe-M (M=Ni, Si, Ga) 薄膜は、0.15 mm もしくは 0.5 mm 厚のガラス基板上に DC マグネトロンスパッタを用いて作製した。作製した薄膜試料の α と磁気ひずみを、新規磁化ダイナミクス計測法を用いて評価した。この新規計測法は以下の通りである。信号検出用プローブにはインピーダンス整合を考慮した 2 ポート型マイクロストリップ線路 (Microstrip Line: MSL) プローブを用いた。作製した薄膜試料を湾曲した試料台に配置して引っ張り応力を付与すると、薄膜試料内部の異方性が変化する。この応力負荷された薄膜試料表面に MSL プローブを近接配置して強磁性共鳴周波数 (f_{res}) を計測する。応力負荷時と無負荷時での薄膜試料の f_{res} の違いから、その飽和磁気ひずみを求める。また、無負荷時の f_{r0} とその半値幅を用いて α を評価する。

結果および考察

図 1 は応力負荷の有無での 10 nm 厚の Fe₈₀Si₂₀ 膜における強磁性共鳴周波数 (f_{res} , f_{r0}) の外部磁界 (H_{ex}) による変化である。曲率半径は約 0.088 m と算出した。応力負荷無負荷に関わらず、 f_{res} および f_{r0} は H_{ex} の増加とともに高い周波数帯へと移動した。また、応力負荷時の f_{res} はいずれの H_{ex} においても f_{r0} よりも低い周波数帯側へ移動し、その差は H_{ex} の増加とともに -115 MHz から -80 MHz となった。これらの変化は、薄膜容易軸方向へ応力負荷により発生する誘導磁気異方性によるものである。これらの値を用いて飽和磁気ひずみを算出すると、-4.46 ppm であり、光てこ法により評価した値 (-11.8 ppm)¹⁾ と若干低くなった。また、 α に関しては、応力無負荷時には 255 Oe 以上の外部磁界ではほぼ一定となった。その値は 0.022 である。当日、他の Fe 系薄膜の結果について報告する。

謝辞

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

参考文献

1) Y. Endo et al., J. Appl. Phys., 109, 07D336 (2011), IEEE Trans. Magn., 47, 3324 (2011), IEEE Trans. Magn., 48, 3390 (2012).

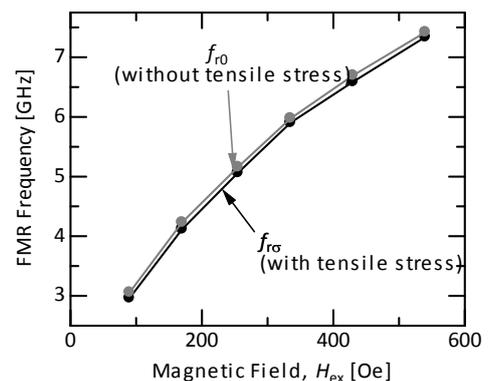


Fig. 1 Dependence of FMR frequencies on the magnetic field for 10-nm thick Fe₈₀Si₂₀ film with and without tensile stress.

反強磁性交換結合膜における共鳴特性の数値解析

福園舞桜, 牙暁瑞, 秋光果奈, 田中輝光, 松山公秀
(九州大学大学院システム情報科学府)

Numerical analysis on magnetic resonance property in a multilayer nanodot
with antiferromagnetic interlayer coupling

M. Fukuzono, X. Ya, R. Akimitsu, T. Tanaka, K. Matsuyama

(Graduate School of Information Science and Electrical Engineering, Kyushu University)

はじめに

近年, 反強磁性的な結合を有する多層膜について様々な研究が報告されている^[1-3]. 反強磁性結合膜について, 磁化のダイナミクスや共鳴特性を解明していくことは応用上重要である. そこで本研究では, 反強磁性的な層間交換結合を有する2層構造の垂直磁化ナノドットにおける, 磁化のダイナミクスや共鳴特性をマイクロマグネティックシミュレーションによって解析した.

計算方法

計算モデルとして, 反強磁性的に結合している10 nm角の垂直磁化2層構造ナノドットを想定した. 各層の膜厚 t が2, 3, 4 nmについて, 各層の異方性磁界 H_k と層間の交換定数 A_{int} を変化させて磁気ヒステリシス曲線と強磁性共鳴(FMR)の共鳴周波数 f_r を求めた. 計算はLLG方程式による数値計算によって行い, 直線偏波磁界を用いてFMRを励起した. 各層の材料パラメータは, 飽和磁化を 1000 emu/cm^3 , ダンピング定数を0.01とし, A_{int} を負値とすることで反強磁性的な結合をモデル化した.

計算結果

膜面に対して垂直方向にバイアス磁界 H_b を掃引した際の磁気ヒステリシス曲線の一例をFig. 1に示す. 材料パラメータは $t=3 \text{ nm}$, $H_k=32 \text{ kOe}$, $A_{\text{int}}=-0.15 \text{ } \mu\text{erg/cm}$ である. A_{int} と H_k , t の組み合わせによって, 零バイアス時に各層の磁化の向きが平行な状態と反平行な状態の2種類の状態が実現できる. H_b の印加履歴によって磁化の状態は異なり, 各磁性層の磁化が平行か反平行かによって f_r の差 Δf_r が生じるという結果をFig. 2に示している. 両層の磁化の向きによって交換等価磁界や反磁界が変化するため Δf_r が生じている.

Fig. 3は $t=2 \text{ nm}$, $H_k=30 \text{ kOe}$ の場合について, A_{int} を $-0.105 \sim -0.120 \text{ } \mu\text{erg/cm}$ の範囲で, また, 励起磁界の周波数を70~87 GHzまで変化させ, 磁化の歳差運動振幅を計算した結果である. 上下層で磁化が平行の場合には A_{int} の値に依存せず $f_r=72.6 \text{ GHz}$ となったが, 反平行の場合には A_{int} の大きさに依存した顕著な共鳴周波数の増大が確認された.

参考文献

- [1] K. Yakushiji et al., Appl. Phys. Express 6, 113006 (2013).
- [2] T. Vemulkar et al., Appl. Phys. Letters 107, 012403 (2105).
- [3] W. Alayo et al., J. Appl. Phys. 106, 113903 (2009).

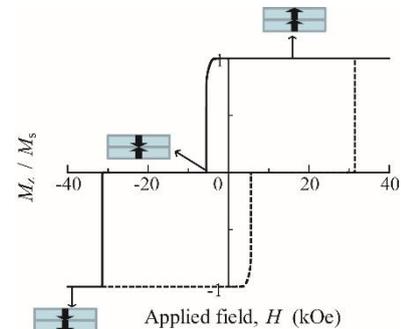


Fig.1. Magnetization configurations and normalized hysteresis curves for anti-ferromagnetic coupling layers.

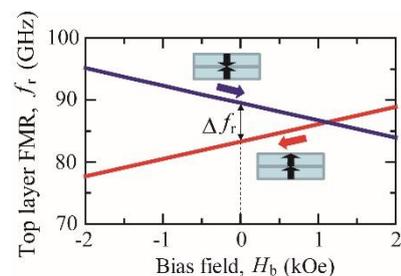


Fig.2. Bias field dependence of the resonance frequency for the top layer.

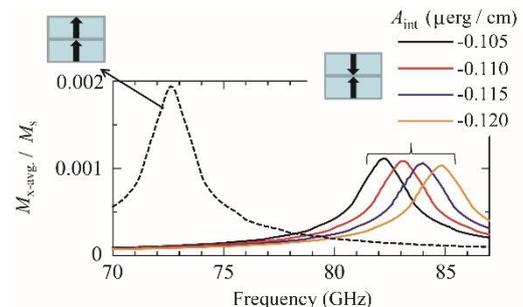


Fig.3. Magnetization precession amplitudes as a function of microwave frequency for bilayer with different magnetization configurations.

CoFeB 薄膜における 4 回対称磁気異方性とスピン波共鳴特性

秋光果奈, 牙暁瑞, 福園舞桜, 田中輝光, 松山公秀
(九州大学 大学院システム情報科学府)

Experimental study on four-fold anisotropy and spin wave resonance property of CoFeB thin films

R. Akimitsu, X. Ya, M. Fukuzono, T. Tanaka, and K. Matsuyama
(ISEE, Kyushu University)

はじめに

スピン波をより効率的に伝搬するためには、ダンピング定数が小さい強磁性材料が必要になる。また、面内 4 回対称磁気異方性の導入により面内 2 方向が磁化安定状態となるため、スピン波伝播の ON・OFF 機能や、素子設計の自由度向上が可能となる。本研究では、ダンピング定数の小さな $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ 薄膜に着目し、4 回対称磁気異方性の発現条件を調べると共に、同薄膜パターンを配したコプレーナ伝送線路によりスピン波共鳴特性を評価した。さらにマイクロマグネティクスシミュレーションにより測定結果の数値解析を行った。

実験方法

RF マグネトロンスパッタリングにより、MgO(100)基板上に 200°C 、 300°C 、 400°C の成膜温度 (T_s) で CoFeB 薄膜 (膜厚 40 nm) を作製した。成膜条件は、Ar ガス圧: 5 mTorr, 投入電力: 85 W, 成膜レート: $0.17 \text{ \AA}/\text{sec}$ とした。光学露光、及びイオンミリングにより CoFeB 薄膜を細線状 (幅 $L_x = 18 \text{ \mu m}$, 細線長 $L_y = 1 \text{ mm}$) に微細加工し、80 nm の SiO_2 スペーサ層を介してコプレーナ伝送線路を形成した。シグナルジェネレータからのマイクロ波を入力とし、スペクトルアナライザにより通過特性を評価した (Fig. 2(a))。マイクロマグネティクスシミュレーションは、磁性細線幅方向に計算要素分割し、LLG 方程式を有限差分法で数値的に解くことにより行った。

実験結果

Fig. 1 は VSM により測定した残留磁化比の磁界印加角依存性を示している。同図で 0° 方向は、MgO 基板の [100] 方向を示している。Fig. 1 より、 $T_s \geq 300^\circ\text{C}$ では、MgO <100> (100) 方向を容易方向とする面内 4 回対称磁気異方性が誘導されていることが分かる。XRD 解析結果からは、 300°C 以上の成膜において、微結晶化した CoFe の形成が示唆されており、これが 4 回対称磁気異方性の発現要因と考えられる。 $T_s = 200^\circ\text{C}$ の場合、MgO [100] 方向を容易方向とする一軸磁気異方性が生じている。これは、 $T_s \geq 300^\circ\text{C}$ での成膜に比べ、より微細な結晶粒が形成されており、十分な結晶磁気異方性が誘導されていないためと推察している。

Fig. 2(b) はマイクロ波通過出力の吸収ディップから評価した共鳴周波数のバイアス磁界依存性を示している。実験と同一の素子設計及び CoFeB 薄膜の材料磁気定数を仮定して行ったシミュレーション結果の一例を Fig. 3 に示す。同図は細線幅方向に沿った磁化の歳差運動振幅の変化を表しており、励起周波数に応じて 1 次モードと 3 次モードの定在スピン波が励起されることが分かる。Fig. 2(b) には、各モードの定在スピン波共鳴周波数を実験結果と比較して示している。シミュレーションにおける 1 次モードと 3 次モードの共鳴周波数差が小さいため ($f_{\text{res,3rd}}/f_{\text{res,1st}} = 1.03 \sim 1.13$)、実験結果における励起モードの特定は困難であるが、共鳴周波数及びそのバイアス磁界依存性についてはシミュレーション結果と実験値とは概ね一致している。

参考文献

- 1) X. Ya, et al, *IEEE Trans. Magn.*, **51** (2015)

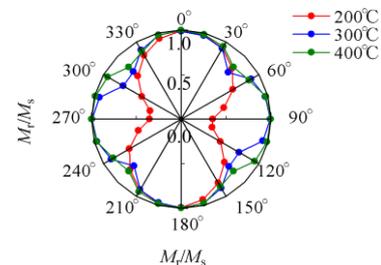


Fig. 1. Angular dependence of remanent magnetization ratio measured for CoFeB films fabricated with different sputtering temperature.

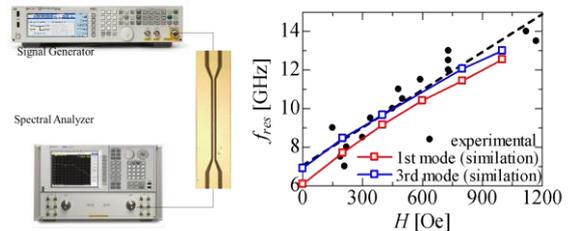


Fig. 2. (a) The schematic of designed measurement system. (b) The dependence of resonance frequency f_{res} on bias field H .

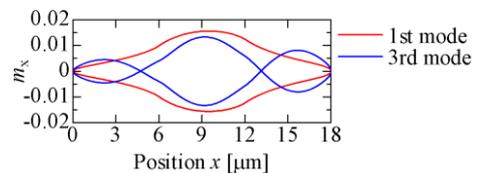


Fig. 3. The magnetization configuration of 1st and 3rd standing spin wave modes

垂直磁化細線における電圧励起スピン波の共鳴特性

牙暁瑞, 福園舞桜, 秋光果奈, 田中輝光, 松山公秀
(九州大学 大学院システム情報科学府)

Voltage-induced SW resonance properties in perpendicular nanowires

X. Ya, M. Fukuzono, R. Akimitsu, T. Tanaka, and K. Matsuyama
(ISEE, Kyushu University)

はじめに

近年, CoFeB 等の強磁性超薄膜に高周波電圧を印加し, 磁性薄膜の界面磁気異方性を変調することでスピン波を励起する研究報告がなされている^{1,2)}. 電圧による異方性制御 (VCMA) では, ナノサイズの局所領域におけるスピン波の励起が可能であり, 低消費電力でスピン波デバイスの小型化にも適している. 本研究では, 垂直磁気異方性を有するナノワイヤを対象とし, VCMA によるスピン波の局所励起と, そのスピン波共鳴特性について数値解析を行った. また, ナノワイヤのサイズ効果や, 異方性磁界の変調振幅とスピン波の励起強度との関係について調べた.

計算方法

CoFeB/MgO 界面における垂直磁気異方性と, 電圧印加による異方性変調を想定し, マイクロマグネティクスシミュレーションを行った. 材料定数と素子構造は以下のように設定した: 飽和磁化 $M_s = 1600 \text{ emu/cm}^3$, 垂直磁気異方性 $K_u = 1.58 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3$, ダンピング定数 $\alpha = 0.01$, ワイヤ長 $L_x = 400 \text{ nm}$, 幅 $L_y = 20 \text{ nm}$, 膜厚 $t = 0.8 \text{ nm}$. ナノワイヤの中央に VCMA 制御用として幅 $L_g = 20 \text{ nm}$ のゲート導体を仮定し, 導体下部における磁気異方性磁界の正弦波状変調により ($H_k = 2 K_u / M_s + \Delta H_k \sin(2\pi f_{\text{exc}} t)$), ワイヤ長軸方向に伝播するスピン波を励起した.

計算結果

Fig. 1(a) に歳差運動振幅の励起周波数 (f_{exc}) 依存性を示す. バイアス磁界 (H_b) を印加しない場合, $f_{\text{exc}} = 4.26 \text{ GHz}$ で歳差振幅が最大となる. このときのスピン波の様態は, 細線長軸方向の端部を節とする 1 次モード定在波であった. また, 歳差運動周波数は励起周波数の 1/2 (=2.13 GHz) であり, パラメトリック励起となっている. $H_b = 200 \text{ Oe}$ をワイヤ長軸方向に印加した場合には, $f_{\text{exc}} = 2.09 \text{ GHz}$, 2.60 GHz, 3.4 GHz の各周波数では, 励起周波数と歳差運動周波数は一致しており (線形励起), 各々 1 次, 3 次, 5 次の定在スピン波共鳴が確認された. 一方, $f_{\text{exc}} = 4.17 \text{ GHz}$ ではパラメトリック励起が生じており, 歳差運動周波数は 2.09 GHz であった.

Fig. 2 は, 磁気異方性磁界の変調振幅 (ΔH_k) と共鳴時の歳差運動振幅との関係を示す. 線形励起 ($H_b = 200 \text{ Oe}$ @ $f = 2.09 \text{ GHz}$) においては, ΔH_k の増加に伴い, 歳差振幅が連続的に増大するが, パラメトリック励起の場合 ($H_b = 0 \text{ Oe}$ @ $f = 4.26 \text{ GHz}$, $H_b = 200 \text{ Oe}$ @ 4.17 GHz) には, ΔH_k が閾値を超えると, 磁化振幅が急激に増大することが分かる.

Fig. 3 にスピン波共鳴特性の L_x 依存性を示す. L_x の縮小に従い, 分散関係を反映した共鳴周波数の上昇と, 励起領域の狭小化による歳差振幅の増大がみてとれる.

参考文献

- [1] Yoichi Shiota, Takayuki Nozaki, Frédéric Bonell, Shinichi Murakami, Teruya Shinjo and Yoshishige Suzuki, *Nat. Mater.*, **11**, 39-43 (2011).
- [2] Roman Verba, Vasil Tiberkevich, Ilya Krivorotov, and Andrei Slavin, *Phys. Rev. Applied*, **1**, 044006 (2014)

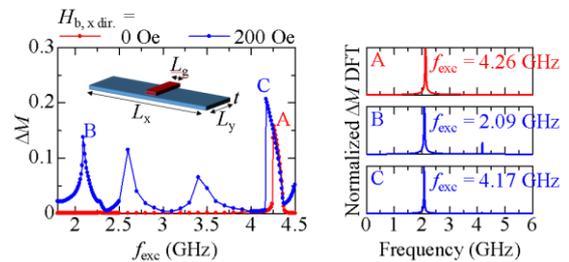


Fig. 1. (a) VCMA resonance property when $H_b = 0 \text{ Oe}$ and 200 Oe . (b) The resonance spectra of the micromagnetically calculated magnetization precession under the gate region.

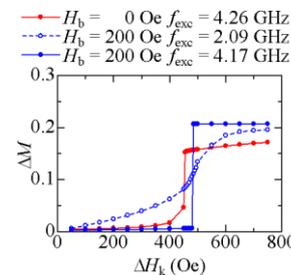


Fig. 2. The dependence of the precession amplitude on the excitation amplitude.

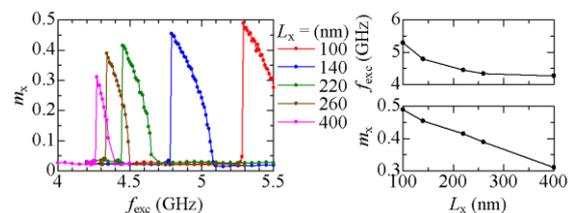


Fig. 3. The resonance properties of nanowires with various wire length L_x .

イットリウム鉄ガーネットの格子不整合が及ぼす スピン波伝搬特性への影響

吉本拓矢¹, 後藤太一^{1,2}, 岩本文吾¹, 中村雄一¹, 内田裕久¹,
ロス キャロライン³, 井上光輝¹

(¹豊橋技科大, ²JST さきがけ, ³マサチューセッツ工科大)

Effect of lattice mismatch of yttrium iron garnet films on spin wave propagation properties

Takuya Yoshimoto¹, Taichi Goto^{1,2}, Bungo Iwamoto¹, Yuichi Nakamura¹,

Hironaga Uchida¹, Caroline A. Ross³, Mitsuteru Inoue¹

(¹Toyohashi Univ. of Tech., ²JST PRESTO, ³MIT)

研究背景

磁化の歳差運動が位相差を持って伝搬するスピン波 (SW) は、低発熱な情報キャリアとして注目を集めている^[1]。近年、イットリウム鉄ガーネット (YIG) 中を伝搬する前進体積 (FV) SW の干渉を用いた論理素子が報告された^[2,3]。SW の分散関係は膜厚依存性を持ち、磁性体の膜厚が薄いほど波長の短い SW が効率的に伝搬できるため、SW 集積回路の実現に向けて、薄膜導波路を用いた素子の開発が望まれている。しかし、磁性体を薄膜化すると膜面直方向の反磁界が強くなり、FV SW の励起に必要な磁界が大きくなるため、素子全体の小型化が困難となる。本研究では、異なる格子定数を持つ3つのガーネット基板に、YIG 薄膜を形成し、格子不整合に起因する応力磁気異方性を利用して、FV SW 励起に必要な磁界の低減を試みた。

実験方法

パルスレーザ堆積法 (PLD) を用いて、ガドリニウムガリウムガーネット (GGG), 希土類置換型 GGG (SGGG), ネオジウムガリウムガーネット (NGG) 基板に、膜厚約 100 nm の YIG 薄膜を形成した。FV SW の伝搬特性を評価するため、作製した YIG 薄膜上に電子線描画を用いて、電極間距離 64 μm のコプレーナ導波路 (CPW) 対を形成し、マイクロプローブを用いてネットワークアナライザと接続して、透過利得を測定した。

実験結果

SW 伝搬スペクトルの測定結果を Fig. 1 に示す。印加磁界の変化に応じて、周波数がシフトする FV SW の信号が確認できた。FV SW の信号と横軸の交点が FV SW の励起に必要な最低の磁界を表しており、NGG/YIG, SGGG/YIG, GGG/YIG の順に値が大きくなった。各基板の格子定数は NGG/YIG, SGGG/YIG, GGG/YIG の順に小さく、YIG が負の磁歪定数を持つことから、NGG 上の YIG が最も大きく歪み、その結果導入された磁気異方性によって、面直方向に磁化しやすくなったと考えられる。また、Fig.1 中にオレンジ色の直線で示した、磁気異方性を考慮した FV SW の分散関係の計算結果は、GGG/YIG, SGGG/YIG のスピン波伝搬特性と良く一致していた。以上の結果より、応力磁気異方性の変化によって、FV SW の励起に必要な磁界を低減できた。

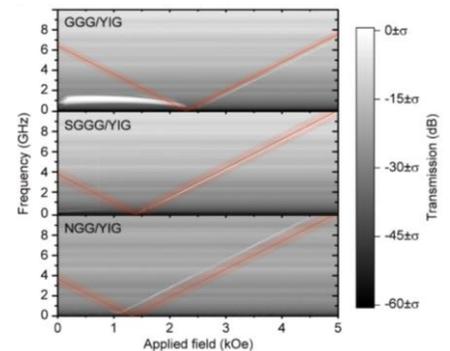


Fig.1 Spin wave propagation properties of YIG films on three garnet substrates.

謝辞

本研究の一部は、JSPS 科研費 26220902, 15H02240, 16H04329, 17K19029, JST さきがけ, 頭脳循環を加速する戦略的国際研究ネットワーク推進プログラム, 矢崎科学技術振興記念財団の助成を受けて行われた。

参考文献

- 1) A. V. Chumak *et al.*, Nat. Phys. **11**, 453-461 (2015).
- 2) N. Kanazawa *et al.*, Sci. Rep. **6**, 30268 (2016).
- 3) N. Kanazawa *et al.*, Sci. Rep. **7**, 7898 (2017).

有機金属分解法を用いて成膜したスピノ波伝搬用磁性ガーネット薄膜における有機物分解時間の結晶性への影響

弘中祐哉, 芦澤好人, 中川活二
(日本大学)

Effect of decomposition time on crystallization of garnet films for spin wave devices fabricated by metal organic decomposition method

Yuya Hironaka, Yoshito Ashizawa, and Katsuji Nakagawa
(Nihon University)

はじめに

電子デバイスの普及が急速に進む社会においてその省電力化は大きな課題であり、これを実現する材料研究が重要である。酸化物フェリ磁性体である磁性ガーネットは絶縁体であり、伝搬するスピノ波の減衰が小さいことから低消費電力デバイスへの応用が期待されている。我々は磁性ガーネットの高機能、高性能化を目指し、組成の変更が比較的容易な有機金属分解 (MOD) 法を用いてこれを成膜している。先行研究では、有機金属分解法を用いて $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ (GGG) 単結晶基板上に成膜した単相磁性ガーネット薄膜における磁気共鳴の観測に成功した¹⁾。さらに、磁気ひずみの異なる磁性ガーネット薄膜において、単相ガーネットの成膜に成功したことも報告している²⁾。さらに減衰の少ないスピノ波伝搬に向けて、より結晶性のよい磁性ガーネットを得るために有機金属分解法の有機物の分解時間を増加することにより結晶性の改善が出来たので報告する。

実験方法

試料には $\text{Y}_{1.5}\text{Bi}_1\text{R}_{0.5}\text{Fe}_4\text{Ga}_1\text{O}_{12}$ ($R = \text{Dy}, \text{Gd}, \text{Eu}$) を用いた。YIG をホストガーネットとし、Y の一部を磁気光学効果の大きい Bi で、さらに磁気ひずみ定数を変化するために、Dy, Gd, Eu でそれぞれ置換した。また、Fe の一部を磁化の大きさを制御するために Ga で置換した。基板には GGG (111) 単結晶基板を用いた。基板に MOD 溶液をスピノコートで塗布し、有機溶剤を蒸発するために 100 °C で 10 分間乾燥した。次に有機物を分解、揮発するために 450 °C で 10 分間あるいは 30 分間仮焼成を行って比較した。スピノコートから仮焼成までの工程を 1 回で約 40 nm の膜厚を得られ³⁾、これらを 4 回繰り返して、約 160 nm の試料を作製した。試料を結晶化する本焼成条件は 750 °C, 3 時間で一定とした。試料の結晶性の評価には X 線回折法を用いた。

結果および考察

Fig. 1 に磁性ガーネット相 (444) 面のロッキングカーブの半値全幅を仮焼成時間に対して示す。同一の結晶化条件の中で仮焼成時間を延ばすことにより、半値幅が小さくなり結晶性が良くなったことが分かる。また飽和磁化が増加する効果があることからガーネット結晶相の増加もあると推測される。これは仮焼成時間を延ばすことにより有機物の分解が十分に行われ、結晶化の障害となる有機物が減少したことが要因だと考えられる。

謝辞 本研究の一部は、平成 25~29 年度文部科学省私立大学戦略的研究基盤形成支援事業 (S1311020) の助成を受けて行われた

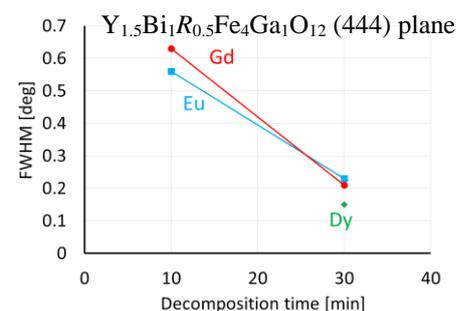


Fig. 1 Full width at half maximum (FWHM) of rocking curves of $(\text{YBiR})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ ($R = \text{Dy}, \text{Gd}, \text{and Eu}$) films

参考文献

- 1) T. Akazawa, H. Saito, Y. Hironaka, Y. Ashizawa, and K. Nakagawa: Absts. Int. Conf, Asian Uni. Magn. Soc. (IcAUMS) 2018, G4-1771 (2018).
- 2) Y. Hironaka, H. Saito, Y. Ashizawa, and K. Nakagawa: Absts. Int. Conf, Asian Uni. Magn. Soc. (IcAUMS) 2018, G5-1775(2018).
- 3) T. Ishibashi, A. Mizusawa, N. Togashi, T. Mogi, M. Houchido, and K. Sato: *J. Cryst. Growth*, **275**, e2427-e2431 (2005).

イットリウム鉄ガーネットの磁化ダイナミクス励起における 高周波伝送線路形状依存性の検討

神田哲典、室賀翔¹、遠藤恭²
(大島商船高専、¹秋田大、²東北大)

High frequency transmission line design dependence of magnetization dynamics in yttrium iron garnet

T. Koda, S. Muroga¹, Y. Endo²

(National Inst. of Technology, Oshima College, ¹Akita Univ., ²Tohoku Univ.)

はじめに

我々は室温で動作する高感度磁気センシングの基礎検討として、高周波伝送線路から高周波電力を入力することでイットリウム鉄ガーネット(YIG)の強磁性共鳴近傍の条件下で外部磁界変化に伴う非線形な磁化ダイナミクス変化を高周波電力の位相変化から高感度に捉えることを試みた[1]。その検討の中で、磁化ダイナミクスが高周波伝送線路の線路幅、および、間隔に大きく影響を受けることを見出した。そこで、系統的に高周波伝送線路形状を変化させた試料を新たに作製し、その高周波応答評価を検討したので報告する。

実験方法

試料には(111)ガドリウムガリウムガーネット (GGG) 単結晶基板上に液相エピタキシャル法で成長された膜厚 10 μm の Bi-YIG(111)単結晶膜を用いた。試料上に高周波伝送線路として、フォトリソグラフィ法で非対称型のコプレーナウェーブ伝送線路、および、スロット伝送線路を形成した。0 dBm の高周波電力をこの伝送線路により YIG 上に入力し、反射電力強度の外部磁界依存性をネットワークアナライザで評価した。

実験結果

図1には非対称型コプレーナウェーブ線路において、その信号線路幅を 100 μm 、グラウンド線路幅を 170 μm とし、線路幅間隔を変化させた場合の測定結果を示す。入力周波数は 6.5 GHz である。全ての試料において 1000 Oe および 1100 Oe 付近に吸収ピークが確認されるがその吸収強度は線路幅間隔によって大きく変化した。複数のピークが存在する可能性として、信号線路とグラウンド線路での形状差に起因する局所反磁界差によって強磁性共鳴条件が異なることが挙げられる。そこで、信号およびグラウンド線路幅の等しいスロット伝送線路を作製して同様の評価を行った。図2には測定結果の一例として、線路幅は 20 μm 、入力電力の周波数を 7.2 GHz とした場合の結果を示す。スロット伝送線路の場合にも明瞭な2つの吸収ピークが現れ、吸収ピークの磁界は線路幅間隔に対しても変化することがわかる。これらの検討結果から、電極線幅以外に、伝送線路間隔に起因する相互作用が Bi-YIG 膜の磁化ダイナミクスに影響を与えることを示唆している。講演では線路幅間隔の影響について考察した結果も報告する。

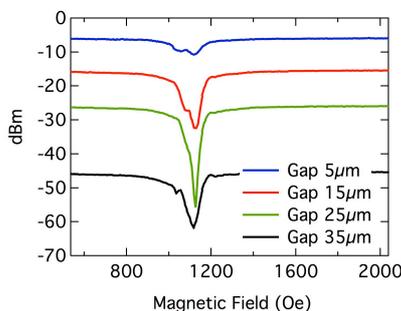


Fig. 1 Magnetic field dependence of reflected wave power with various gap length of asymmetrical-coplanar waveguides.

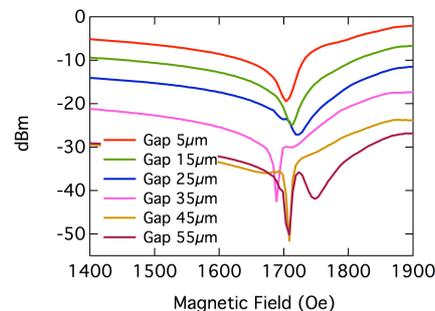


Fig.2 Magnetic field dependence of reflected wave power with various gap length of slot-waveguides.

謝辞 本研究にあたり、株式会社グラノプトから測定試料の御協力を頂きました。本研究の一部は、JSPS 科研費 No.18K14114 の助成を受けて行われた

参考文献 1) 第41回日本磁気学会学術講演概要集(2017)

金属-フッ化物系ナノグラニューラー膜の巨大ファラデー効果

小林伸聖, 池田賢司, Bo Gu*, 高橋三郎**, 増本博***, 前川禎通****
 (電磁研, *中国科学院大学, **東北大金研, ***東北大学学際研, ****理研)

Giant Faraday effect of metal-fluoride nanogranular films

N. Kobayashi, K. Ikeda, B. Gu*, H. Masumoto**, S. Takahashi***, and S. Maekawa****
 (DENJIKEN, *UCAS, **FRIS Tohoku Univ., ***IMR Tohoku Univ., ****RIKEN)

はじめに: ファラデー効果を有する材料は、光アイソレーターに用いられ、光通信などの磁気光学素子として高度情報化社会に欠かせないものとなっている。我々は、強磁性金属とフッ化物から成るナノグラニューラー膜に関し、光透過性を有し且つ強(フェロ)磁性を同時に有する薄膜材料を見出した。光に対して透明な磁性体であることから、そのファラデー効果に興味をわくが、非常に大きいファラデー回転角を示す事が明らかとなった²⁾。本報告では、FeCo-(Al,Y)-F ナノグラニューラー膜に関し、膜組成とファラデー効果の関係、および巨大ファラデー効果のメカニズムについて検討した結果を報告する。

実験方法: 薄膜試料は、高周波スパッタ装置を用い、タンデム法によって作製した。ターゲットはFeCo合金円板(75mmφ)と、AlF₃およびYF₃粉末焼結円板(75mmφ)を用いた。膜組成は、波長分散型分光分析法(WDS)を用いて分析し、構造解析は、高分解能透過電子顕微鏡(HRTEM)によって行った。膜の光透過率は、フーリエ変換赤外分光法(FTIR)を用いて測定した。また、磁化曲線は、振動試料磁力計(VSM)を用いて測定し、ファラデー回転角は、6波長光源ファラデー効果測定装置(NEOARK BH-600LD2M)を用いて評価した。尚、各測定は室温で行った。

結果: Fig.1には、Fe₂₁Co₁₄Y₂₄F₄₁、Fe₂₅Y₂₃F₅₂およびFe₁₃Co₁₀Al₂₂F₅₅ ナノグラニューラー膜のファラデー回転角の波長依存性を示す。これらの膜のファラデー回転角の値は、いずれもBi-YIGに比して非常に大きく、特にFe₂₁Co₁₄Y₂₄F₄₁膜の光通信帯域の波長(1550nm)でのファラデー回転角は、Bi-YIGの約40倍もの大きな値を示す。Table 1には、ナノグラニューラー構造におけるグラニューラーとマトリックスの界面を想定し、グラニューラーを構成する界面付近の磁性元素(Fe)の磁気モーメントを、第一原理計算によって求めた結果である。界面付近のFeの軌道モーメントが大きくなっており、このことがナノグラニューラー膜の巨大ファラデー効果の要因となっていると考えられる。

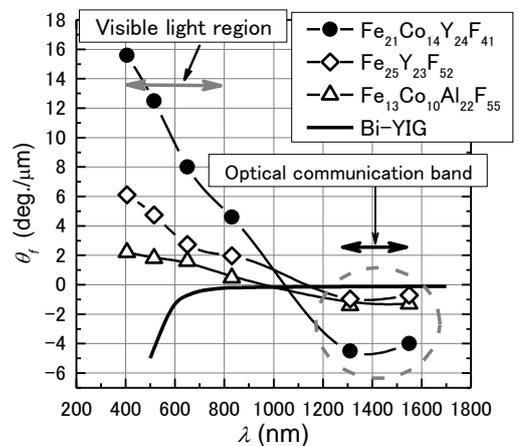


Fig.1 Relationship between the wavelength of incident light and the Faraday rotation angle of Fe₂₁Co₁₄Y₂₄F₄₁, Fe₂₅Y₂₃F₅₂ and Fe₁₃Co₁₀Al₂₂F₅₅ films. The films were deposited on substrates of 600°C, 550°C and 680°C. At these temperatures. The value of Bi-YIG, is also indicated.

参考文献

- 1) N. Kobayashi, K. Ikeda, Bo Gu, S. Takahashi, H. Masumoto, and S. Maekawa, 8, 4978 (2018)
- 2) N. Kobayashi, H. Masumoto, S. Takahashi, and S. Maekawa, Scientific Reports, 6, 34227, (2016)

Systems	Occupation n_d	Spin S^z (μ_B)	Orbit L^z (μ_B)
Fe-bcc bulk	5.96	2.27	0.041
Fe (001) surface	5.95	2.96	0.091
Fe-2ML (monolayer)	6.02	2.93	0.076
Fe/AlF ₃ interface	6.07	2.12	0.142
Fe/YF ₃ interface	5.53	3.22	0.065

Table 1. For 3d orbitals of the Fe atom, density functional theory calculation results of occupation number nd , spin moment S^z , and orbital moment L^z in Fe-bcc bulk, Fe(001) surface, Fe-2ML with ML being the monolayer, and Fe/insulator interfaces with insulators being AlF₃ and YF₃.

集積型 Q スイッチレーザーに向けた(Tb,Bi)₃(Fe,Ga)₅O₁₂ 膜の作製

森本凌平*, 後藤太一***, 中村雄一*, Pang Boey Lim*, 内田裕久*, 井上光輝*
(*豊橋技科大, **JST さきがけ)

Fabrication of (Tb,Bi)₃(Fe,Ga)₅O₁₂ films for integrated Q-switched laser
R. Morimoto*, Taichi Goto***, Y. Nakamura*, P. B. Lim*, H. Uchida*, M. Inoue*
(*Toyohashi Univ. of Tech., **JST PRESTO)

はじめに

磁気光学効果を用いた Q スイッチレーザー¹⁻⁴⁾は、従来の能動制御型 Q スイッチレーザーよりも 100 倍以上薄く、これにともなう短パルス化、高出力化が、可能であるため、加工用レーザー応用等に注目されている。これまでに、我々は、磁性ガーネット膜を利用し共振器長が 10 mm の小型な Q スイッチの動作を確認している¹⁻⁴⁾。しかし、磁性ガーネット膜とレーザー結晶間に、光学系の固定具や位置調整具によって数 mm の空隙が生じ、共振器長を大きくしていた。そこで、本報告では、共振器長を極限まで短くする膜構造を作製するために、レーザー結晶である Nd 置換 Y₃Al₅O₁₂ (Nd:YAG) 結晶基板上での、磁性ガーネット膜の作製条件を探索した。

実験方法

磁性ガーネット膜の形成にはパルスレーザー堆積法を用いた。(Tb, Bi) : (Fe, Ga) = 3 : 5 の酸化物焼結ターゲットを、波長 248 nm, パルス幅 25 ns, 繰り返し 10 Hz, エネルギー 360 mJ の KrF エキシマレーザーでアブレーションすることで、(Tb,Bi)₃(Fe,Ga)₅O₁₂ (BiGa:TIG) を成膜した。ターゲットの組成比は、文献[1-3]で使用した磁性ガーネット膜と同様のものを用いた。基板には 5 mm×5 mm×0.5 mm の 1at.%Nd:YAG を使い、成膜時圧力 2.6 Pa の酸素雰囲気中で、基板加熱温度は 650 から 950°C まで変化した。形成した BiGa:TIG 膜について、X 線回折による結晶性および磁気・光学・磁気光学特性の評価を行った。

実験結果・考察

ファラデー回転角の測定には回転検光子法を用いた。特に大きなファラデー回転角を示した、基板加熱温度 675, 700, 725°C で形成された BiGa:TIG について、波長 1064 nm における磁気光学特性を Fig. 1 に示す。基板加熱温度 700°C において、磁化飽和時のファラデー回転角は最大で 0.9 deg/μm を示した。この値は単結晶の無置換 TIG バルクに比べ約 2 倍大きい値を示している。この大きなファラデー回転角は、Bi 置換によるものであると考えられる。また、X 線回折の測定結果より、BiGa:TIG 膜が Nd:YAG 基板上にエピタキシャル成長していることが確認できた。この結果により、磁気光学 Q スイッチをレーザー結晶上に直接形成し、能動 Q スイッチを用いたマイクロチップレーザーを実現することが期待できる。

謝辞

本研究の一部は、JSPS 科研費 No. 26220902, 17J05958, 26706009, JST さきがけ No. JPMJPR1524, 矢崎科学技術振興記念財団の助成を受けて行われた。

参考文献

- 1) T. Goto, et al., *Opt. Express*, **24**, 17635 (2016).
- 2) R. Morimoto, et al., *Sci. Rep.*, **6**, 38679 (2016).
- 3) R. Morimoto, et al., *Sci. Rep.*, **7**, 15398 (2017).
- 4) R. Morimoto, et al., *Jpn. J. Appl. Phys.*, **57**, 061101 (2018).

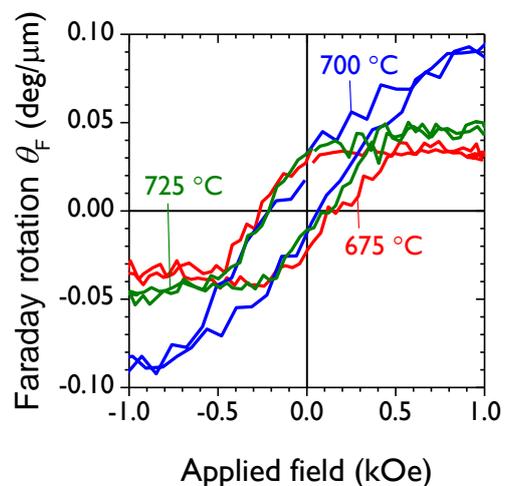


Fig. 1 Faraday rotation loops of BiGa:TIG films with different substrate temperature at the wavelength of 1064 nm..