

## Large perpendicular magnetic anisotropy in Fe/MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> heterostructures

Qingyi Xiang<sup>1,2</sup>, Ruma Mandal<sup>2</sup>, Hiroaki Sukegawa<sup>2</sup>, Yukiko K. Takahashi<sup>2</sup> and Seiji Mitani<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>Graduate School of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba, Tsukuba 305-8577, Japan

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

MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> is considered a promising alternative barrier material to MgO for magnetic tunnel junctions (MTJs) due to its tunable lattice constant<sup>1</sup>. The interface-induced perpendicular magnetic anisotropy (PMA) at an MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> interface is a crucial property for applications of perpendicularly magnetized MTJs (p-MTJs). Based on a recent theoretical calculation,<sup>2</sup> the areal PMA energy density of  $\sim 1.3$  mJ/m<sup>2</sup> was predicted at an Fe/MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>(001) interface, which is nearly comparable to that at an Fe/MgO(001) interface ( $\sim 1.5$ – $1.7$  mJ/m<sup>2</sup>). However, a much smaller PMA energy density  $\sim 0.4$  MJ/m<sup>3</sup>,<sup>3</sup> comparing with  $\sim 1.4$  MJ/m<sup>3</sup> in Fe/MgO,<sup>4</sup> has been experimentally reported in Fe/MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>(001) where the MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> layers were prepared by post-oxidization of an Mg-Al metallic layer. Therefore, further improvement in the PMA energy of ultrathin-Fe/MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>(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/MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> by introducing electron-beam deposition of MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>.<sup>5</sup>

Stacks of Cr buffer(30)/Fe(0.7)/MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>( $t_{\text{MAO}} = 2$  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 MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 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)/MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>( $t_{\text{MAO}} = 2$  or 3 nm) interface with a large PMA energy up to  $\sim 1.0$  MJ/m<sup>3</sup>, comparable to the reported value for an Fe (0.7 nm)/MgO<sup>4</sup> ( $\sim 1.4$  MJ/m<sup>3</sup>). 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  $\sim 2.0$  mJ/m<sup>2</sup> to  $\sim 1.7$  mJ/m<sup>2</sup>. The effective damping constant was also evaluated to be  $\sim 0.02$  by TR-MOKE under high magnetic fields. This study demonstrated robust interface PMA in ultrathin-Fe/MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, 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)

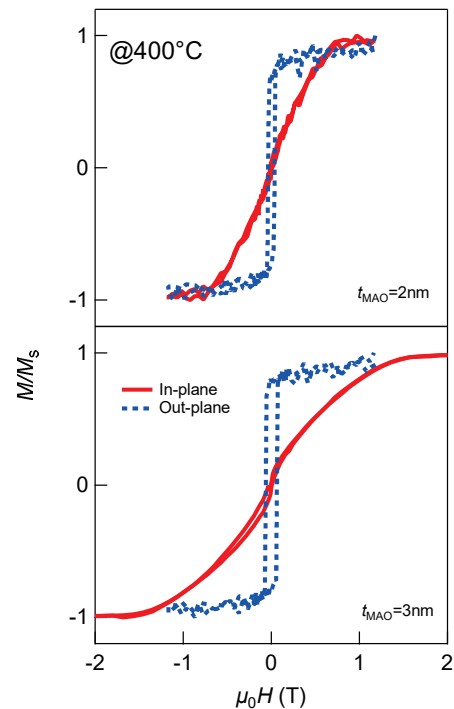


Figure 1 M-H curves for samples annealed at 400°C with  $t_{\text{MAO}} = 2$  and 3 nm.

## Fe/MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 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/MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 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 ( $D0_{22}$  Mn<sub>3</sub>Ga,  $D0_{22}$  Mn<sub>3</sub>Ge,  $L1_0$  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/m<sup>2</sup> 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 MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> を用いた Fe/MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/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/MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 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関し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/MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 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/MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 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/MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 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 ( $a=a_{\text{Fe}}$ ) と MgO に合わせた値 ( $a=a_{\text{MgO}}/\sqrt{2}$ ) の 2 通りで計算を行った. これらの計算の結果, Fe/MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の  $K_i$  ( $K_i \approx 1.2$  mJ/m<sup>2</sup>) は 2 種の Fe/MgO の  $K_i$  ( $K_i \approx 1.4 \sim 1.7$  mJ/m<sup>2</sup>) 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/MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 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/MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 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<sub>1-x</sub>Ga<sub>x</sub>Se<sub>2</sub>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<sub>1-x</sub>Ga<sub>x</sub>Se<sub>2</sub> 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<sub>1-x</sub>Ga<sub>x</sub>Se<sub>2</sub> (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,  $\Delta_1$  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/CuInSe<sub>2</sub>(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/CuInSe<sub>2</sub> 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/CuInSe<sub>2</sub>(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).

# Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/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 Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/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。Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>は大きなスピン分極率を持つ材料であり<sup>1)</sup>、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Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>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

[Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> (*t* nm) / Cr (2 nm)]<sub>*N*</sub>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Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>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Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>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Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>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、Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>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)

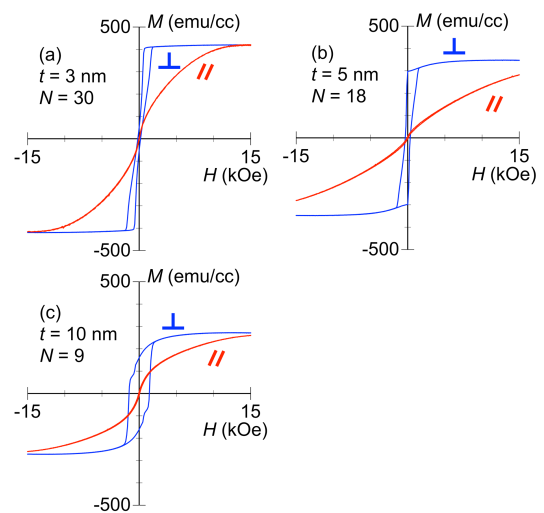


Fig. 1 Out-of-plane and in-plane *M-H* curves of [Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> (*t*) / Cr (2)]<sub>*N*</sub>: (a) *t* = 3, *N* = 30, (b) *t* = 5, *N* = 18, and (c) *t* = 10, *N* = 9.

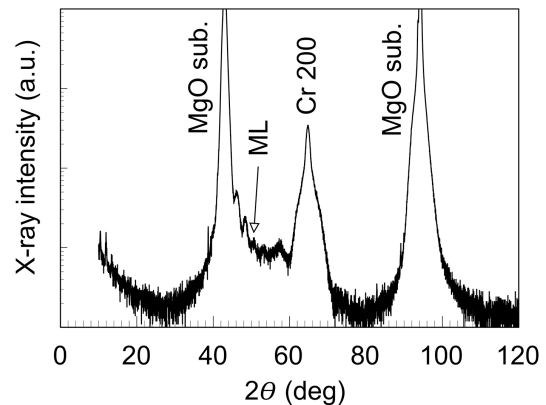


Fig. 2 Out-of-plane profile of [Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> (3) / Cr (2)]<sub>30</sub>.



## Pt/Co/Au/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/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<sup>1</sup>, 渡邊俊介<sup>1</sup>, 米村祥吾<sup>2</sup>, 中谷亮一<sup>1</sup>

<sup>1</sup>大阪大学大学院工学研究科, <sup>2</sup>TDK 株式会社

Reversal process of perpendicular exchange bias by magnetoelectric field cooling for Pt/Co/Au/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Pt stacked film

Yu Shiratsuchi<sup>1</sup>, Shunsuke Watanabe<sup>1</sup>, Shogo Yonemura<sup>2</sup>, Ryoichi Nakatani<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Graduate School of Engineering, Osaka University, <sup>2</sup>TDK 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、Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>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／Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>層積層膜は、0.4 mJ/m<sup>2</sup>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)/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(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。

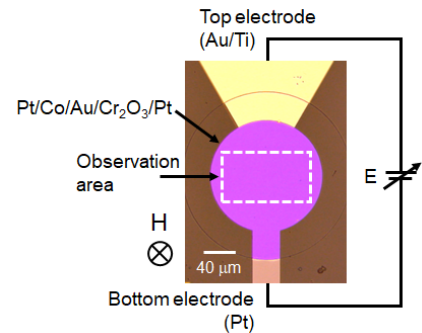


図 1 作製したマイクロドットの光学顕微鏡像と測定系の模式図。

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

Tunneling conductivity in perpendicularly magnetized cobalt ferrite films prepared on metallic TiN layers  
Masaaki Tanaka<sup>1</sup>, Kousuke Nomura<sup>1</sup>, Takaya Okuno<sup>2</sup>, Syuta Honda<sup>3</sup>, Teruo Ono<sup>2</sup>, and Ko Mibu<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>Nagoya Inst. Tech., <sup>2</sup>ICR, Kyoto Univ., <sup>3</sup>Kansai 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  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  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<sup>2)</sup>。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<sup>3)</sup>。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  $\mu\text{m}$  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  $\text{Co}^{2+}$  イオンが  $\text{Fe}^{2+}$  イオンに置換せずに  $\text{Fe}^{3+}$  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  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  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<sup>1</sup>、林田誠弘<sup>1</sup>、水口将輝<sup>1</sup>、末益崇<sup>2</sup>、柳原英人<sup>2</sup>、高梨弘毅<sup>1</sup>  
 (<sup>1</sup>東北大学 金属材料研究所, <sup>2</sup>筑波大学 物理工学域)

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

K. Ito<sup>1</sup>, M. Hayashida<sup>1</sup>, M. Mizuguchi<sup>1</sup>, T. Suemasu<sup>2</sup>, H. Yanagihara<sup>2</sup>, K. Takahashi<sup>1</sup>  
 (<sup>1</sup>IMR, Tohoku Univ. <sup>2</sup>Inst. 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<sup>2)</sup>。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<sup>3)</sup>、SrTiO<sub>3</sub>(STO)(001)、MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>(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( $\omega$ -2 $\theta$ )および In-plane( $\phi$ -2 $\theta$ )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、上記のエピタキシャル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  $9.9 \times 10^5$  erg/cm<sup>3</sup> 程度と見積もられ、規則度は 0.1 程度と推測される<sup>4)</sup>。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).

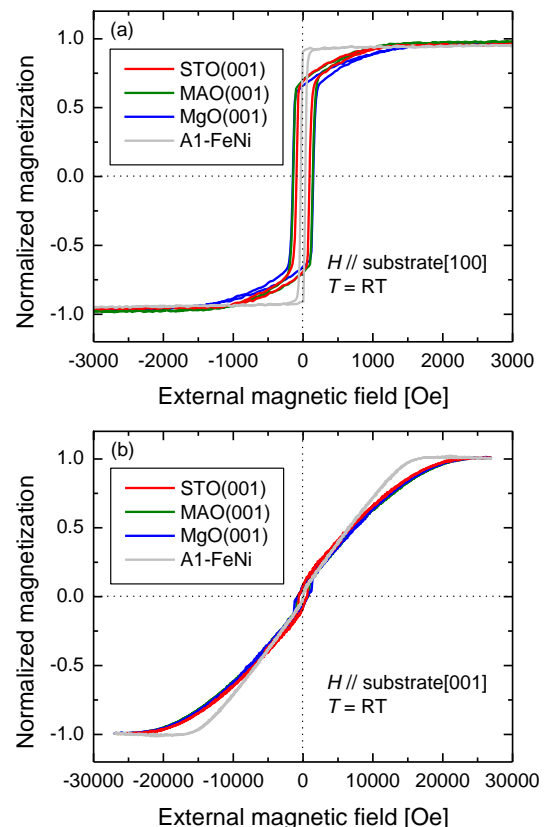


Fig. 1 Magnetization curves of FeNi films.  
 $M_s = 1100$  emu/cm<sup>3</sup>.

# 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

L1<sub>0</sub> 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 L1<sub>0</sub> 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、L1<sub>0</sub> 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<sup>1)</sup>。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、L1<sub>0</sub> 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  $8.5 \times 10^{-7}$  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/cm<sup>2</sup> 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 L1<sub>0</sub> 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、L1<sub>0</sub>-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<sub>C//</sub>)および膜面直(H<sub>C⊥</sub>)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.

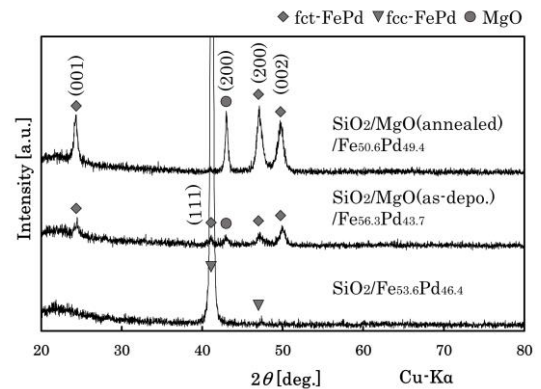


図 1 石英ガラス基板および MgO 下地膜上に成膜した FePd 薄膜の X 線回折図

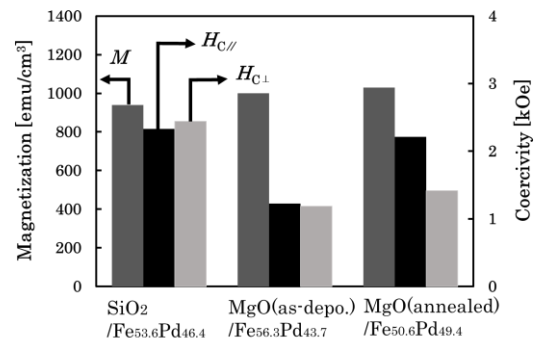


図 2 石英ガラス基板および MgO 下地膜上に成膜した FePd 薄膜の磁気特性



# Mn<sub>3-x</sub>Fe<sub>x</sub>Ga 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<sub>3-x</sub>Fe<sub>x</sub>Ga 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/cm<sup>3</sup>)<sup>1)</sup>、高結晶磁気異方性(~ 10-20 Merg/cm<sup>3</sup>)<sup>1)</sup>、高スピン分極率(~ 88%)<sup>2)</sup>を示し、貴金属や希土類元素を含まない新規永久磁石材料やスピン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<sup>3,4)</sup>。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<sub>3-x</sub>Fe<sub>x</sub>Ga 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<sub>1.0</sub>Ga<sub>1.0</sub> 合金を使用し、薄膜試料の作製は 8.9×10<sup>-7</sup> 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<sub>3-x</sub>Fe<sub>x</sub>Ga 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<sub>2.5</sub>Fe<sub>0.5</sub>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<sub>u</sub> = 6.4 Merg/cm<sup>3</sup> 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<sub>s</sub> = 168 emu/cm<sup>3</sup> 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<sub>3-x</sub>Fe<sub>x</sub>Ga 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。

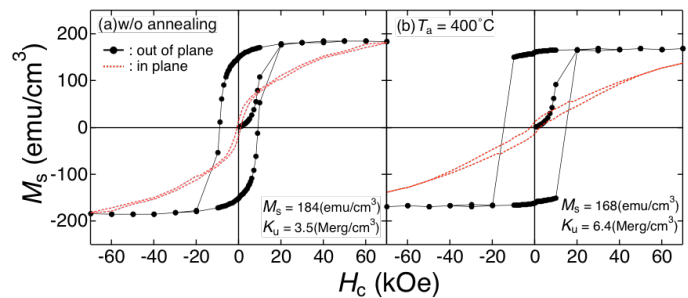


Fig. 1 Magnetization curves of Mn<sub>3-x</sub>Fe<sub>x</sub>Ga thin films.

## 参考文献

- 1) S. Mizukami, T. Kubota, F. Wu, X. Zhang, T. Miyazaki, H. Naganuma, M. Oogane, A. Sakuma, and Y. Ando, *Phys. Rev. B* **85**, 014416 (2012).
- 2) 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.Doi

(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  $10 \text{ Merg/cm}^3$  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、ポストアニーリングは 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ーリングを行った。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。

# $\alpha$ -(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 $\alpha''$ -(Fe, Co)<sub>16</sub>N<sub>2</sub> 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  $\alpha''$ -(Fe, Co)<sub>16</sub>N<sub>2</sub> nanoparticles obtained  
by hydrogen reduction and subsequent nitrogenation starting from  $\alpha$ -(Fe, Co)OOH  
Masahiro Tobise, Shin Saito (Tohoku University)

**はじめに** 窒素侵入型化合物  $\alpha''$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> は 226 emu/g の飽和磁化と  $9.6 \times 10^6$  erg/cm<sup>3</sup> 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<sup>1)</sup>。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  $\alpha''$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> 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  $\alpha''$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> 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<sup>2)</sup>。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  $\alpha''$ -(Fe, Co)<sub>16</sub>N<sub>2</sub> 相<sup>3)</sup> 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  $\alpha$ -(Fe, Co)OOH ナノ粒子を合成した。原料として FeSO<sub>4</sub> と CoSO<sub>4</sub> を用い、目標とする合成物質を  $\alpha$ -(Fe<sub>1-x</sub>Co<sub>x</sub>)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 Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 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  $\alpha$ -(Fe, Co)OOH 単相であったが、0.05 では  $\alpha$ -(Fe, Co)OOH と  $\alpha$ -(Fe, Co)<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 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  $\alpha$ -(Fe, Co)<sub>2</sub>O<sub>3</sub> であり Co 含有量の増大により  $\alpha$ -(Fe, Co)<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 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、 $\alpha$ -(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  $\alpha$ -(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  $\alpha''$ -(Fe, Co)<sub>16</sub>N<sub>2</sub> の単相試料は得られず、未窒化の  $\alpha$  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  $\alpha''$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> 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  $\alpha$ -(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  $\alpha$  相からの  $\alpha''$ -(Fe, Co)<sub>16</sub>N<sub>2</sub> 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).

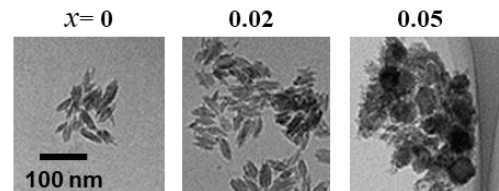


Fig. 1 TEM images of nanoparticles as starting materials synthesized by neutralizing and oxidation

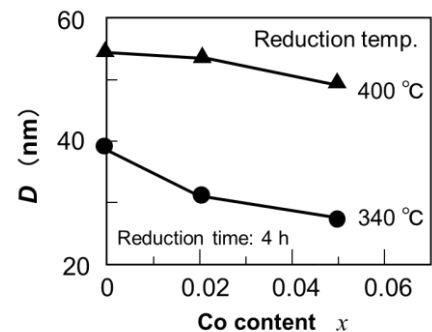


Fig. 2 The change of crystallite diameter  $D$  of reduced  $\alpha$ -(Fe, Co) as a function of Co content for starting materials.

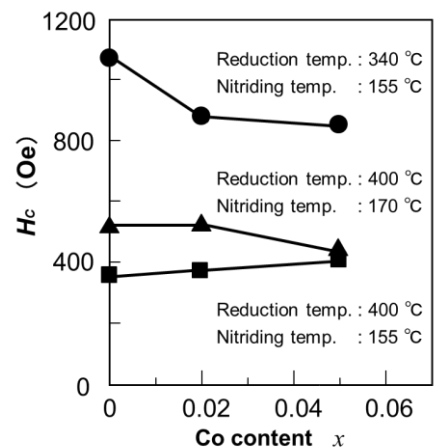


Fig. 3  $H_c$  of nanoparticles obtained by hydrogen reduced  $\alpha$ -(Fe, Co) nanoparticles and subsequent nitrogenation.

## 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<sup>1,2,3</sup>、小林斉也<sup>1,3,4</sup>、ルワン ガラゲ<sup>5</sup>

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

Fabrication of ferromagnetic iron-nitride nanocomposite and its magnetic properties

○T. Ogawa<sup>1,2,3</sup>, N. Kobayashi,<sup>1,3,4</sup> and R. Gallage<sup>5</sup>

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

強磁性窒化鉄( $\alpha'$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub>)は大きな飽和磁化(234emu/g)と結晶磁気異方性( $1 \times 10^7$  erg/cm<sup>3</sup>)を有し<sup>1)</sup>、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<sup>2)</sup>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、 $\alpha'$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub>粉末の高飽和磁化の特徴を活かしつつ Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub>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 $\alpha'$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub>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、Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub>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 Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub>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、 $\alpha'$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> - 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).

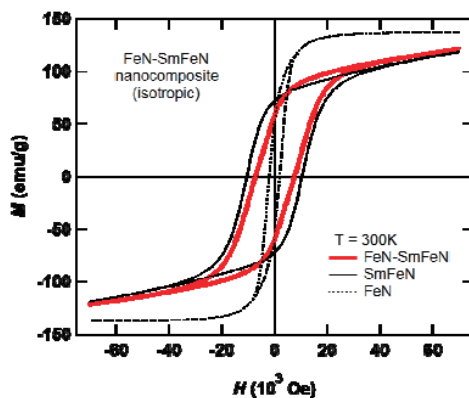


Fig.1 Magnetization curves for bulk  $\alpha'$ ,  $\alpha'$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub>, Sm-Fe-N and Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub>-Sm-Fe-N nanocomposite.

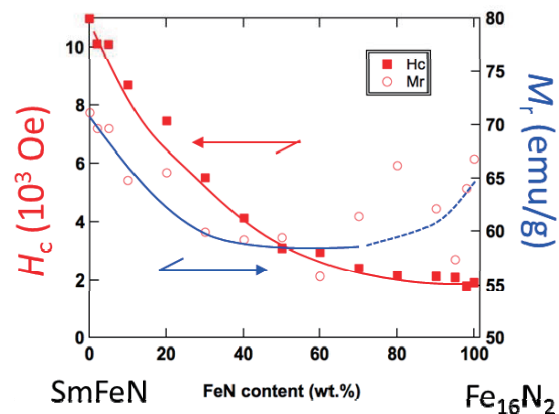


Fig.2  $M_r$  and  $H_c$  v.s. Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> content for bulk Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub>-Sm-Fe-N nanocomposite.



# 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。1cm<sup>2</sup> の Cu 板を陰極, Ti/Pt 板を陽極にして電流密度 -4mA/cm<sup>2</sup> 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 $\mu$ m であった膜厚が、LbL 処理有りの場合は約 80 $\mu$ 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。

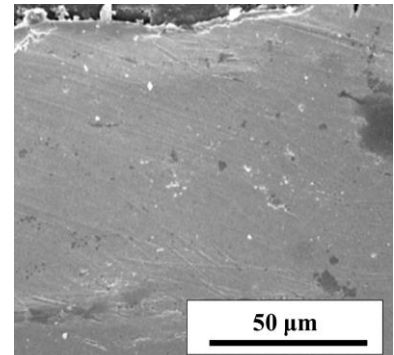
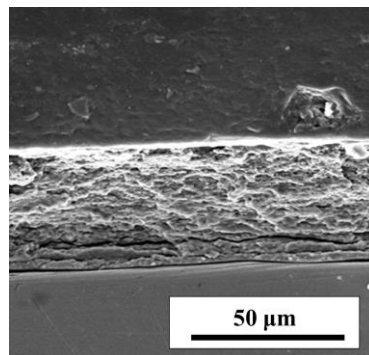
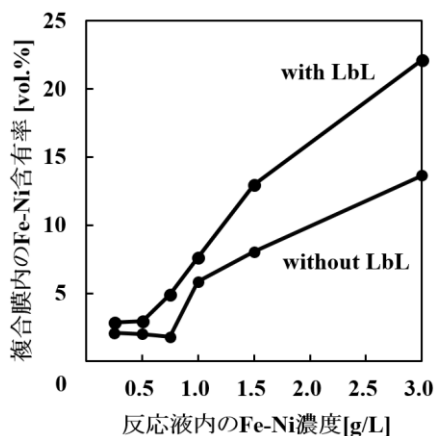


図 1 溶液中 Fe-Ni 濃度と Fe-Ni 含有率

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 ナノ粒子は細孔壁上に配列することがわかった<sup>1)</sup>。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<sup>2)</sup>。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)

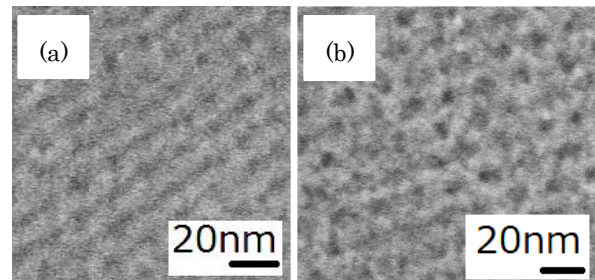


Fig.1 SEM image of mesoporous silica film, (a)Dry for 6 hour, (b)Dry for 12 hour

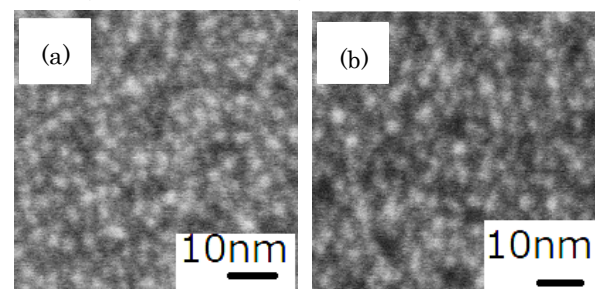


Fig.2 SEM image of FePt(300°C) on mesoporous silica film,(a)Dry for 6 hour, (b)Dry for 12 hour

# 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)<sup>1)</sup>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、H<sub>2</sub>O 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。

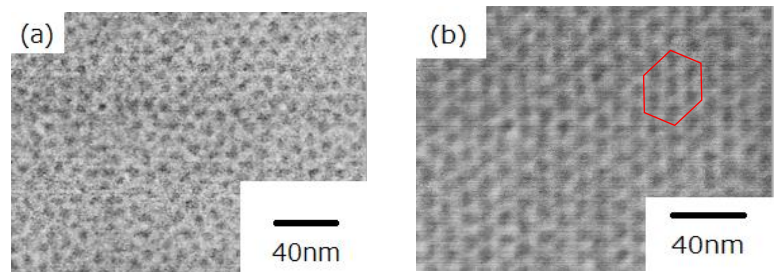


Fig 1 SEM image of mesoporous silica film,  
(a) The humidity is 92%, (b) The humidity is 87%

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。

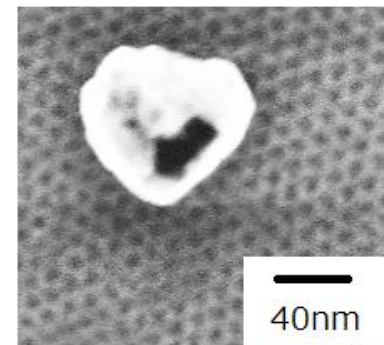


Fig 2 Surface of mesoporous silica thin film at 1 mA

## 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<sup>1)</sup>。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<sup>2)</sup>。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<sup>3)</sup>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 ( $\alpha$ ) の Bi 膜厚依存性に着目する。

## 2 実験方法

多元スパッ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  $40^\circ$  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  $\tau$  を得る。印加磁場の強度 ( $H_{\text{ext}}$ ) を変えて、異なる  $f$  での歳差運動を調べる。そして  $H_{\text{ext}}$  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  $\alpha$  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  $\alpha$  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、 $\alpha$  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<sup>4)</sup>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、 $\alpha$  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  $\alpha$  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  $\alpha$  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).

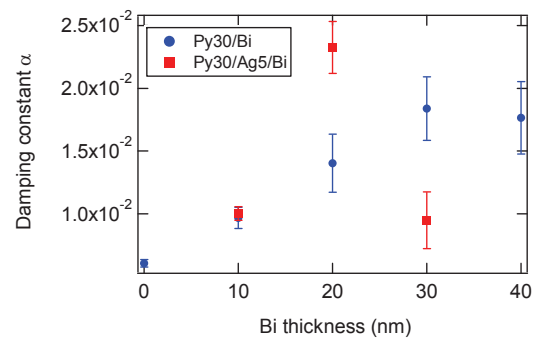


Fig. 1 Gilbert damping  $\alpha$  is plotted as a function of Bi-layer thickness. Blue circles and red squares correspond to Py/Bi and Py/Ag/Bi samples, respectively.



# 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<sup>1</sup>, 森 修<sup>2</sup>, 藪上 信<sup>1</sup>, 内海 良一<sup>2</sup>, 島田 寛<sup>2</sup>  
(<sup>1</sup> 東北大, <sup>2</sup> (株)東栄科学産業)

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

Yasushi Endo<sup>1</sup>, Osamu Mori<sup>2</sup>, Shin Yabukami<sup>1</sup>, Ryoichi Utsumi<sup>2</sup>, Yutaka Shimada<sup>2</sup>  
(<sup>1</sup> Tohoku Univ., <sup>2</sup> 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 ( $\alpha$ ) 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  $\alpha$  と磁気ひずみとの相関関係を明確にしてきた<sup>1)</sup>。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、 $\alpha$  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  $\alpha$  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  $\alpha$  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 ( $f_{\text{res}}$ ) を計測する。応力負荷時と無負荷時の薄膜試料の  $f_{\text{res}}$  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  $f_{\text{r0}}$  とその半値幅を用いて  $\alpha$  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 Fe<sub>80</sub>Si<sub>20</sub> 膜における強磁性共鳴周波数 ( $f_{\text{res}}$ ,  $f_{\text{r0}}$ ) の外部磁界 ( $H_{\text{ex}}$ ) 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、 $f_{\text{res}}$  および  $f_{\text{r0}}$  は  $H_{\text{ex}}$  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  $f_{\text{res}}$  はいずれの  $H_{\text{ex}}$  においても  $f_{\text{r0}}$  よりも低い周波数帯側へ移動し、その差は  $H_{\text{ex}}$  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)<sup>1)</sup> と若干低くなった。また、 $\alpha$  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).

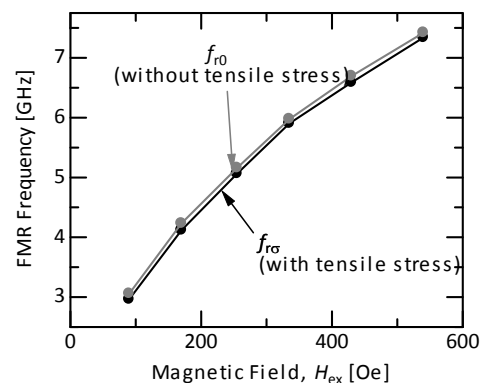


Fig. 1 Dependence of FMR frequencies on the magnetic field for 10-nm thick Fe<sub>80</sub>Si<sub>20</sub> film with and without tensile stress.

# 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<sup>[1-3]</sup>. 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 $1000 \text{ emu/cm}^3$ , 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 $t=3 \text{ nm}$ ,  $H_k=32 \text{ kOe}$ ,  $A_{int}=-0.15 \text{ } \mu\text{erg/cm}$ 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 $\Delta f_r$ 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 $\Delta f_r$ 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 $70 \sim 87 \text{ GHz}$ 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).

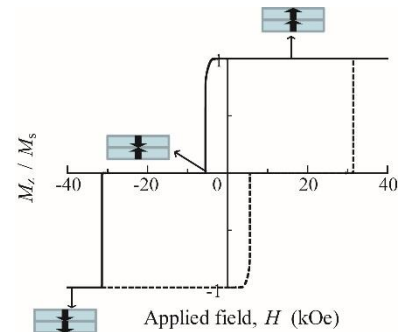


Fig.1. Magnetization configurations and normalized hysteresis curves for anti-ferromagnetic coupling layers.

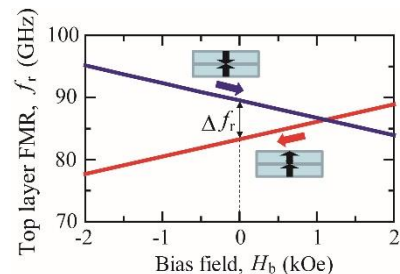


Fig.2. Bias field dependence of the resonance frequency for the top layer.

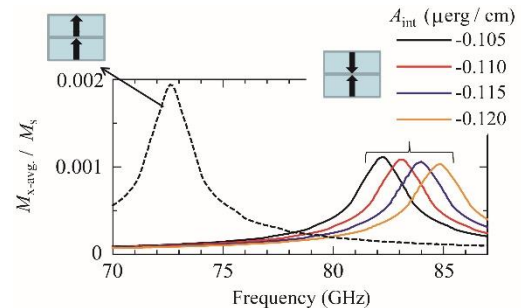


Fig.3. Magnetization precession amplitudes as a function of microwave frequency for bilayer with different magnetization configurations.

## 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 Å/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  $L_x = 18 \mu\text{m}$ , 細線長  $L_y = 1 \text{mm}$ ) に微細加工し、80 nm の  $\text{SiO}_2$  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)

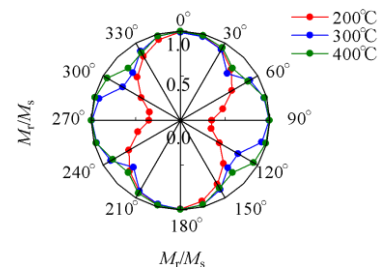


Fig. 1. Angular dependence of remanent magnetization ratio measured for CoFeB films fabricated with different sputtering temperature.

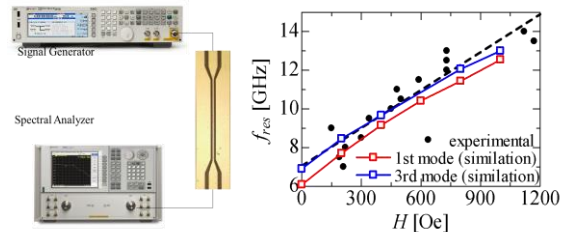


Fig. 2. (a) The schematic of designed measurement system. (b) The dependence of resonance frequency  $f_{\text{res}}$  on bias field  $H$ .

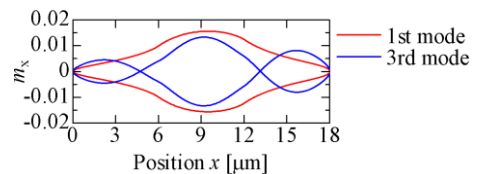


Fig. 3. The magnetization configuration of 1st and 3rd standing spin wave modes

## 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<sup>1,2)</sup>. 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 ( $f_{\text{exc}}$ ) 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 ( $\Delta H_k$ ) 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,  $\Delta H_k$  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 ( $H_b = 0 \text{ Oe}$  @  $f = 4.26 \text{ GHz}$ ,  $H_b = 200 \text{ Oe}$  @  $4.17 \text{ GHz}$ ) には,  $\Delta H_k$  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)

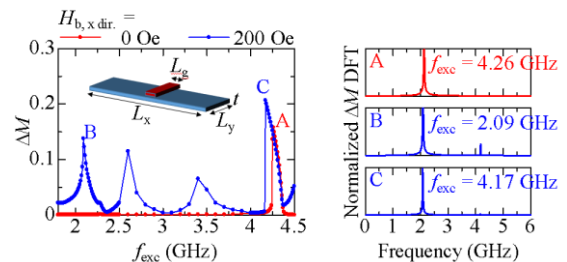


Fig. 1. (a) VCMA resonance property when  $H_b = 0 \text{ Oe}$  and  $200 \text{ Oe}$ . (b) The resonance spectra of the micromagnetically calculated magnetization precession under the gate region.

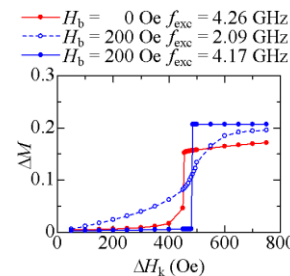


Fig. 2. The dependence of the precession amplitude on the excitation amplitude.

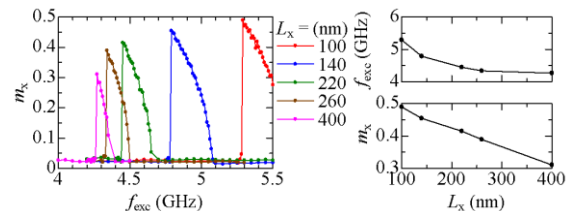


Fig. 3. The resonance properties of nanowires with various wire length  $L_x$ .



# 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<sup>1</sup>, 後藤太一<sup>1,2</sup>, 岩本文吾<sup>1</sup>, 中村雄一<sup>1</sup>, 内田裕久<sup>1</sup>,  
ロス キャロライン<sup>3</sup>, 井上光輝<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>豊橋技科大, <sup>2</sup>JST さきがけ, <sup>3</sup>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 Yoshimoto<sup>1</sup>, Taichi Goto<sup>1,2</sup>, Bungo Iwamoto<sup>1</sup>, Yuichi Nakamura<sup>1</sup>,

Hironaga Uchida<sup>1</sup>, Caroline A. Ross<sup>3</sup>, Mitsuteru Inoue<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Toyohashi Univ. of Tech., <sup>2</sup>JST PRESTO, <sup>3</sup>MIT)

## 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<sup>[1]</sup>。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<sup>[2,3]</sup>。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  $\mu\text{m}$  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。

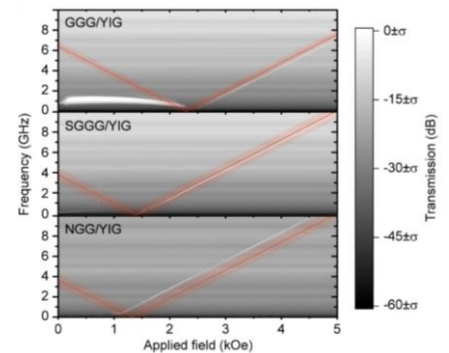


Fig.1 Spin wave propagation properties of YIG films on three garnet substrates.

## 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ン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, 伝搬するスピン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<sup>1)</sup>. 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<sup>2)</sup>. さらに減衰の少ないスピン波伝搬に向けて, 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 溶液をスピコートで塗布し, 有機溶剤を蒸発するために  $100^\circ\text{C}$  で 10 分間乾燥した. 次に有機物を分解, 揮発するために  $450^\circ\text{C}$  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<sup>3)</sup>, 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  $750^\circ\text{C}$ , 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

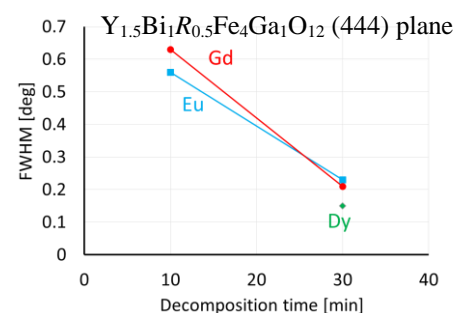


Fig. 1 Full width at half maximum (FWHM) of rocking curves of  $(\text{YBiR})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$  ( $R = \text{Dy}, \text{Gd}, \text{and Eu}$ ) films

## 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<sup>1</sup>、遠藤恭<sup>2</sup>  
(大島商船高専、<sup>1</sup>秋田大、<sup>2</sup>東北大)

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

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

(National Inst. of Technology, Oshima College, <sup>1</sup>Akita Univ., <sup>2</sup>Tohoku 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  $\mu\text{m}$  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  $\mu\text{m}$ 、グラウンド線路幅を 170  $\mu\text{m}$  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  $\mu\text{m}$ 、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。

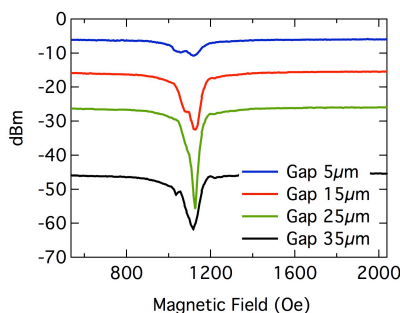


Fig. 1 Magnetic field dependence of reflected wave power with various gap length of asymmetrical-coplanar waveguides.

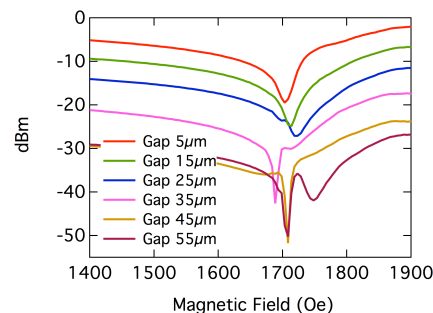


Fig.2 Magnetic field dependence of reflected wave power with various gap length of slot-waveguides.

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はわくが、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<sup>2)</sup>。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、AlF<sub>3</sub>およびYF<sub>3</sub>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、Fe<sub>21</sub>Co<sub>14</sub>Y<sub>24</sub>F<sub>41</sub>、Fe<sub>25</sub>Y<sub>23</sub>F<sub>52</sub>およびFe<sub>13</sub>Co<sub>10</sub>Al<sub>22</sub>F<sub>55</sub> 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Fe<sub>21</sub>Co<sub>14</sub>Y<sub>24</sub>F<sub>41</sub>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。

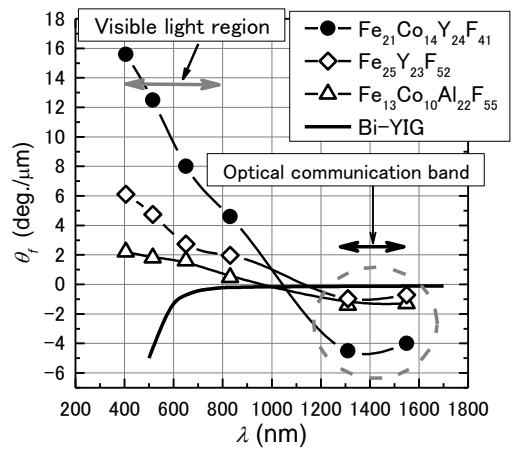


Fig.1 Relationship between the wavelength of incident light and the Faraday rotation angle of Fe<sub>21</sub>Co<sub>14</sub>Y<sub>24</sub>F<sub>41</sub>, Fe<sub>25</sub>Y<sub>23</sub>F<sub>52</sub> and Fe<sub>13</sub>Co<sub>10</sub>Al<sub>22</sub>F<sub>55</sub> films. The films were deposited on substrates 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 $S^z$ ( $\mu_B$ )	Orbit $L^z$ ( $\mu_B$ )
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 <sub>3</sub> interface	6.07	2.12	0.142
Fe/YF <sub>3</sub> 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 AlF<sub>3</sub> and YF<sub>3</sub>.



# 集積型 Q スイッチレーザーに向けた(Tb,Bi)<sub>3</sub>(Fe,Ga)<sub>5</sub>O<sub>12</sub> 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)<sub>3</sub>(Fe,Ga)<sub>5</sub>O<sub>12</sub> 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<sup>1-4)</sup>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<sup>1-4)</sup>。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 Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> (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)<sub>3</sub>(Fe,Ga)<sub>5</sub>O<sub>12</sub> (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).

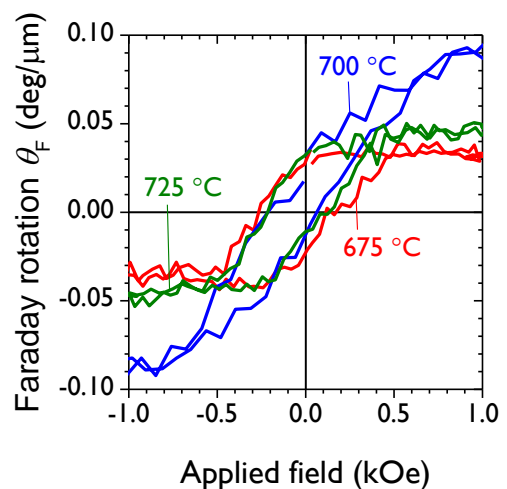


Fig. 1 Faraday rotation loops of BiGa:TIG films with different substrate temperature at the wavelength of 1064 nm..