

## 脱窒素法によるバリエントの無い(110)配向 L1<sub>0</sub>-FeNi 薄膜の作製

市村匠<sup>1</sup>、伊藤啓太<sup>1,2</sup>、西尾隆宏<sup>3</sup>、藏裕彰<sup>3</sup>、柳原英人<sup>4</sup>、高梨弘毅<sup>1,2,5</sup>  
(東北大金研<sup>1</sup>、東北大 CSRN<sup>2</sup>、株式会社デンソー<sup>3</sup>、筑波大物工<sup>4</sup>、東北大 CSIS<sup>5</sup>)

Fabrication of variant-free (110)-oriented L1<sub>0</sub>-FeNi films by a denitriding method

T. Ichimura<sup>1</sup>, K. Ito<sup>1,2</sup>, T. Nishio<sup>3</sup>, H. Kura<sup>3</sup>, H. Yanagihara<sup>4</sup>, K. Takanashi<sup>1,2,5</sup>  
(IMR, Tohoku Univ.<sup>1</sup>, CSRN, Tohoku Univ.<sup>2</sup>, DENSO CORPORATION<sup>3</sup>,  
Department of Applied Physics, Univ. of Tsukuba<sup>4</sup>, CSIS, Tohoku Univ.<sup>5</sup>)

**【緒言】**一軸磁気異方性エネルギー( $K_u$ )が高い磁性材料の多くは希少元素(希土類、貴金属元素)を含んでいるため、安価な元素で代替できれば自動車分野をはじめとしたモーター用永久磁石材料の需要に応えることができる。我々は豊富に存在する Fe、Ni からなり、高い飽和磁化( $M_s$ )および  $K_u$  を持つことが知られている L1<sub>0</sub>-FeNi に注目して、単結晶薄膜の作製と規則度( $S$ )および  $K_u$  の向上に取り組んできた<sup>1)</sup>。これまでに共蒸着法により膜面直方向に  $a$  軸(磁化困難軸)配向したエピタキシャル FeNiN 薄膜を作製し、脱窒素熱処理<sup>2)</sup>を行うことで  $a$  軸配向した L1<sub>0</sub>-FeNi 薄膜の作製に成功した<sup>3)</sup>。しかし、 $S = 0.87$  の高い規則度が得られた一方で  $K_u = 5.9 \times 10^5 \text{ J/m}^3$  となり、期待される値( $> 1.0 \text{ MJ/m}^3$ )よりも小さかった。この要因として、膜面内で2つの  $c$  軸(磁化容易軸)が直交した2種類のナノメートルサイズのバリエントが形成された結果、正味の  $K_u$  が過小評価された可能性が考えられる<sup>3)</sup>。そこで、バリエントが存在しないエピタキシャル薄膜を作製できれば、正確な  $K_u$  の評価が期待される。本研究では、FeNiN 薄膜に対する脱窒素法によるバリエントの無い単結晶 L1<sub>0</sub>-FeNi 薄膜の作製と正確な  $K_u$  の評価を目的とし、分子線エピタキシー(MBE)法により作製したバリエントの無い FeNiN(110)薄膜に脱窒素熱処理を行うことで L1<sub>0</sub>-FeNi(110)薄膜を作製した。

**【実験方法】** Fe、Ni および高周波(RF)N<sub>2</sub> の同時供給による MBE 法により、適切な酸化物単結晶基板の上に FeNiN(110)薄膜(20 nm)のエピタキシャル成長を試みた。N<sub>2</sub> 流量を 1.0 sccm、RF 入力を 300 W、基板温度を 350 °C とし、Fe:Ni の組成比が 1:1 となるように制御した。その後、水素流量 2 L/min で 200 °C、2 h の脱窒素熱処理を行なった。解析には面外( $\omega$ - $2\theta$ )および面内( $\phi$ - $2\theta_\chi$ )[110]方向と[001]方向からの X 線回折(XRD)と、室温における磁化測定を行なった。

**【結果】**  $\omega$ - $2\theta$  測定では FeNiN 220 ピークが見られた。一方、 $\phi$ - $2\theta_\chi$  測定では基板[110]方向からの測定では FeNiN 220 ピーク、基板[001]方向からの測定では FeNiN 002 ピークのみがそれぞれ見られた。また、磁化測定で磁化がほとんど見られなかった。以上の結果から、バリエントの無い反強磁性 FeNiN(110)膜が得られた。脱窒素熱処理後は、 $\omega$ - $2\theta$  測定では L1<sub>0</sub>-FeNi 220 ピークが、 $\phi$ - $2\theta_\chi$  測定の基板[110]方向からの測定では L1<sub>0</sub>-FeNi 220 ピーク、基板[001]方向からの測定では L1<sub>0</sub>-FeNi 002 ピークのみがそれぞれ見られた。また、面内外部磁場の方向を[110]と[001]で変えた磁化測定から、膜面内の L1<sub>0</sub>-FeNi[001]方向に沿った一軸磁気異方性を確認できた。 $\mu_0 M_s = 1.55 \pm 0.03 \text{ T}$  であり、二方向の磁化曲線で囲まれた面積から  $K_u = (3.05 \pm 0.06) \times 10^5 \text{ J/m}^3$  と算出された。 $K_u$  が期待される値よりも小さいことから、今後はこの試料の  $S$  を評価する予定である。

**【参考文献】** 1) K. Takanashi *et al.*, J. Phys. D: Appl. Phys. **50**, 483002 (2017). 2) S. Goto *et al.*, Sci. Rep. **7**, 13216 (2017). 3) K. Ito *et al.*, Appl. Phys. Lett. **116**, 242404 (2020).

**【謝辞】** 本研究は国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)の委託事業未来開拓研究プログラム「次世代自動車向け高効率モーター用磁性材料技術開発」(課題番号:JPNP14015)の成果である。

# Fe<sub>2</sub>Ni<sub>2</sub>C および Fe<sub>2</sub>Ni<sub>2</sub>N の磁気異方性定数の第一原理計算

小田 洋平<sup>1</sup>・佐久間 昭正<sup>2</sup>

(<sup>1</sup> 福島高専・<sup>2</sup> 東北大)

First-principles calculations of magnetic anisotropy constant in Fe<sub>2</sub>Ni<sub>2</sub>C and Fe<sub>2</sub>Ni<sub>2</sub>N

Y. Kota<sup>1</sup> and A. Sakuma<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Fukushima KOSEN, <sup>2</sup>Tohoku Univ.)

## 1 はじめに

希少元素フリー磁石材料の候補となる物質としてこれまでに FeCo, FeNi あるいは MnAl, MnGa などの規則合金に注目が集まり研究が行われてきた。これらの物質に関しては、理論計算では大きな磁気異方性を示す結果が得られているものの、実験においては理論での物質モデルのような極めて理想的な状態を作り出すのは難しく期待通りの特性が得られていないのが実状と言える。主な原因の一つとして、Fe, Co, Ni の 3d 遷移元素のみの合金では規則相と不規則相とのエネルギー差が小さいため規則構造が得られにくい問題が考えられる。加えて Mn 合金についても Al や Ga などの大きな典型元素が入ると体積あたりの磁化が大幅に減少するというそもそもの問題も実用上は見逃すことができない。したがって我々はこれらの問題点を解決するような新しい物質の設計を試みているが、Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> や Mn<sub>4</sub>N のような正方晶の対称性を有する物質が数 MJ/m<sup>3</sup> の一軸異方性を示すことが報告されていることから<sup>1)</sup>, 3d 遷移元素と軽元素 (2p 典型元素) の化合物に注目している。また最近、脱窒化法による L1<sub>0</sub> 型 FeNi 作製の研究の報告もあるが<sup>2)</sup>, その中間物質である FeNiN も比較的大きな一軸異方性を示すことが知られている<sup>3)</sup>。そこで本研究では第一原理計算により FeNi に N および C を添加したときの磁気異方性定数を評価したのでその結果を報告する。

## 2 結果および考察

以下の表は FeNi および FeCo に C または N を添加し、いわゆる逆ペロブスカイト型の構造となった場合の磁化  $M_s$  ならびに一軸異方性定数  $K_u$  の計算結果である。これらの物理量の第一原理計算には Vienna *ab-initio* simulation package (VASP) を用い、先行研究<sup>3,4)</sup>があるものについてはその計算結果を再現することを確認した。得られた結果より、軽元素を含まない Fe<sub>2</sub>Ni<sub>2</sub> (L1<sub>0</sub>-FeNi) と比べて  $M_s$  は同等の大きさ、または小さくなるが、MnAl ( $M_s \sim 500$  kA/m) よりは大いことが分かる。ただ Fe<sub>2</sub>Co<sub>2</sub>C, Fe<sub>2</sub>Co<sub>2</sub>N については  $K_u$  が小さい、または負の値となり磁石材料としては不適である。FeCo は格子ミスフィットによって適当なひずみを与えることで大きな磁気異方性を示すことが知られているが、ひずみのない逆ペロブスカイト型の構造では期待されていた磁気異方性は得られないと言える。一方、FeNi については軽元素を含ませることにより  $K_u$  が L1<sub>0</sub>-FeNi よりも大きくなっており、特に Fe<sub>2</sub>Ni<sub>2</sub>C の  $K_u$  は MnAl や MnGa ( $K_u \sim 1\text{--}2$  MJ/m<sup>3</sup>) をも超える値となっている。講演では他に Disordered Local Moment 法を用いて計算した Fe<sub>2</sub>Ni<sub>2</sub>, Fe<sub>2</sub>Ni<sub>2</sub>C, Fe<sub>2</sub>Ni<sub>2</sub>N の  $K_u$  の温度依存性の結果についても報告する予定である。

Composition	$M_s$ (kA/m)	$K_u$ (MJ/m <sup>3</sup> )
Fe <sub>2</sub> Ni <sub>2</sub>	1328	0.563
Fe <sub>2</sub> Ni <sub>2</sub> C	1055	2.984
Fe <sub>2</sub> Ni <sub>2</sub> N	1073	1.889
Fe <sub>2</sub> Co <sub>2</sub> C	1150	0.296
Fe <sub>2</sub> Co <sub>2</sub> N	1412	-0.460

## References

- 1) L. Ke *et al.*, Phys. Rev. B **88**, 024404 (2013); S. Isogami *et al.*, Phys. Rev. Mater. **4**, 014406 (2020).
- 2) K. Ito *et al.*, Appl. Phys. Lett. **116**, 242404 (2020).
- 3) 辻川 *et al.*, 第 38 回日本磁気学会学術講演会 (2014); 伊藤 *et al.*, 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会 (2017).
- 4) Y. Miura *et al.*, J. Phys.: Condens. Matter. **25**, 106005 (2013).

# 機械学習を用いた高磁気異方性材料の効率的探索と創製

古矢 大悟<sup>1</sup>, 中尾 太一<sup>1</sup>, 齋藤 彪我<sup>1</sup>,  
宇田 皓一, 三浦 良雄<sup>2</sup>, 小嗣 真人<sup>1</sup>  
(東理大先進工<sup>1</sup>, 物質・材料研究機構<sup>2</sup>)

## High Through-put Exploration and Fabrication of Large Magnetic Anisotropy Materials Using Machine Learning

Daigo Furuya<sup>1</sup>, Nakao Taichi<sup>1</sup>, Hyuga Saito<sup>1</sup>,  
Koichi Uda<sup>1</sup>, Yoshio Miura<sup>2</sup>, Masato Kotsugi<sup>1</sup>  
(Tokyo Univ. of Science<sup>1</sup>, NIMS<sup>2</sup>)

### はじめに

高磁気異方性材料は、省電力且つ超高速の磁気メモリの実現を支える重要な磁気特性である。これまでの材料創製では、様々な構成元素や積層構造を人力で探索してきた。しかし多元素系では組み合わせ爆発が起きることから、膨大な数の候補を網羅的に作製する事が困難だった。そこで我々は機械学習の代表例である「ベイズ最適化」を活用し、高い異方性を有する磁性多層膜の効率的な探索手法を開発した<sup>[1]</sup>。ベイズ最適化は Black-Box 関数最適化手法の一つであり、データ収集コストが高い分野においても、少ない試行数で最適解を得られる等の利点がある。本研究ではベイズ推定に基づいて高磁気異方性材料を予測し、そこで予測された材料の創製を行なった結果について報告する。

### 実験方法

膜構成の予測では、Fe, Co, Ni, Cu の 4 種類の元素と 4 周期までの超周期構造を対象にし、第一原理計算とベイズ最適化を融合した材料探索を行った。ベイズ推定の探索方針は、異方性の期待改善度が高い点を次の候補とする獲得関数 EI を用いた。またデータ同士の類似度を表すカーネル関数には Matern52 を用いた。実験ではベイズ最適化により予測した 2 種類の候補物質 (Fe/Cu/Co/Cu)<sub>13</sub>, (Fe/Co/Fe/Ni)<sub>13</sub> について、PLD 装置を用いた単原子交互積層によって 52ML の薄膜を成膜した。表面の結晶性は反射高速電子回折、表面平坦性は原子間力顕微鏡、結晶構造は X 線回折、磁気特性評価は超伝導量子干渉磁力計を用いて行なった。

### 実験結果

Fig.1(a)の(Fe/Cu/Co/Cu)<sub>13</sub>の磁化曲線から飽和磁化  $M_s$  と磁気異方性エネルギー  $K_u$  は 906.4 emu/cc,  $1.44 \times 10^6$  erg/cc と算出された。また Fig.1(b)の (Fe/Co/Fe/Ni)<sub>13</sub> の磁化曲線から  $M_s$  と  $K_u$  は 1312.9 emu/cc,  $3.74 \times 10^6$  erg/cc と算出され、非常に高い磁気特性を示した。この結果は我々の先行研究の  $L1_0\text{FeNi}$ <sup>[2]</sup>,  $L1_0\text{FeCo}$ <sup>[3]</sup> を超える値であり、ベイズ最適化を用いて高磁気異方性材料の予測と創製を実現したと言える。

### 参考文献

- 1) 古矢大悟 他, 第 68 回応用物理学会春季学術講演会, 19a-Z32-9, (2021)
- 2) H. Ito et.al., AIPAdv., 9, 045307, (2019)
- 3) M. Saito et.al., Appl.Phys.Lett. 114, 072404, (2019)

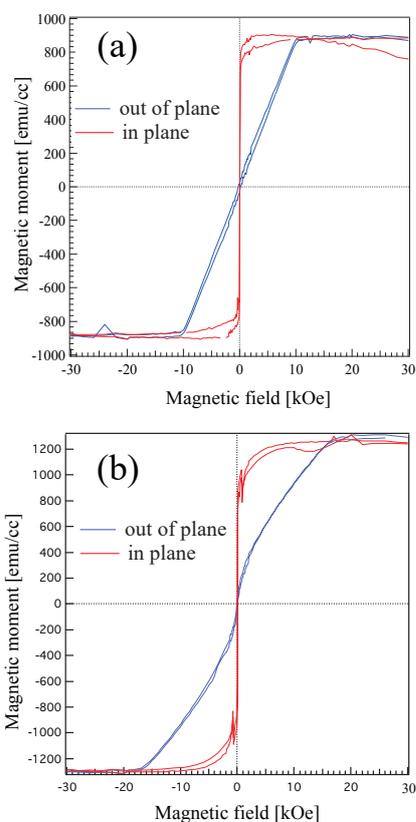


Fig.1 Magnetization curve of deposited on room temperature.  
(a) (Fe/Cu/Co/Cu)<sub>13</sub>, (b) (Fe/Co/Fe/Ni)<sub>13</sub>

# Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001)単結晶基板上 CoPt 多積層薄膜における CoPt の規則化

遠山諒<sup>1</sup>、河智史朗<sup>2,3,4</sup>、山浦淳一<sup>2,3</sup>、村上洋一<sup>3</sup>、細野秀雄<sup>2</sup>、真島豊<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup>東工大フロンティア材料研究所、<sup>2</sup>東工大元素戦略研究センター

<sup>3</sup>KEK 物質構造科学研究所、<sup>4</sup>兵庫県立大学理学研究科)

Ordering of CoPt in CoPt multilayer thin films on Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001) single-crystal substrates

R. Toyama<sup>1</sup>, S. Kawachi<sup>2,3,4</sup>, J. Yamaura<sup>2,3</sup>, Y. Murakami<sup>3</sup>, H. Hosono<sup>2</sup>, Y. Majima<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup>MSL, Tokyo Tech, <sup>2</sup>MCES, Tokyo Tech, <sup>3</sup>IMSS, KEK, <sup>4</sup>Graduate School of Science, Univ. of Hyogo)

## はじめに

磁気抵抗ランダムアクセスメモリや超高密度ハードディスクドライブなどのナノスケールの磁石を用いるスピントロニクスデバイスでは、高い垂直結晶磁気異方性 (PMA) と大きな保磁力 ( $H_c$ ) を有する強磁性材料が用いられている。Pt 基二元合金である CoPt は、熱処理により  $A1$  不規則相から  $L1_0$  規則相に構造変態すると、 $10^7$  erg/cm<sup>3</sup> 台の高い PMA と 10 kOe 以上の大きな  $H_c$  を示す強磁性体となるため、これらのデバイス応用のための有用な材料である。近年、我々は、熱酸化膜付き Si 基板上に作製した CoPt 多積層薄膜におけるアニール処理後の結晶構造、磁気特性、表面形態の解析を行い、CoPt の  $L1_0$  規則化を報告してきた<sup>[1,2]</sup>。Pt/Co 二層薄膜においては、急速熱処理に起因する相互拡散により、 $L1_0$  規則化 CoPt を含む傾斜薄膜が形成されたことを確認した<sup>[1]</sup>。また、(Co/Pt)<sub>4</sub> 八層薄膜においては、球状の  $L1_0$  規則化 CoPt が形成されることを確認した<sup>[2]</sup>。さらに我々は、Si 基板上 CoPt の規則化に対する Ti 下地層の効果を検証し、Ti 下地層の導入により  $L1_2$  規則化 CoPt<sub>3</sub> が発現することを報告してきた<sup>[2]</sup>。本研究では、基板表面の方位の揃った Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001)単結晶基板上に CoPt 多積層薄膜を作製し、アニール処理後の結晶構造と表面形態の解析を行ったので報告する。

## 実験方法

電子線蒸着により、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001)単結晶基板上に、[Co (1.2 nm)/Pt (1.6 nm)]<sub>4</sub> 薄膜を作製した。これまでの報告との比較のため、下地層として Ti を導入した試料も作製した。その後、Ar/H<sub>2</sub> 混合ガス雰囲気下においてアニール処理を行った。結晶構造と表面形態はそれぞれ、KEK PF BL-8B におけるすれすれ入射 X 線回折 (GI-XRD) と走査電子顕微鏡 (SEM) により評価した。

## 実験結果

800 °C でアニール処理を行った(Co/Pt)<sub>4</sub> 薄膜 (下地層なし) において、GI-XRD で  $L1_0$ -CoPt  $001$ ,  $110$  に起因する超格子反射を確認したことから、CoPt の  $L1_0$  規則化を確認した。一方、Ti (3 nm) の下地層を導入した(Co/Pt)<sub>4</sub> 薄膜では、800 °C のアニール処理後に  $L1_2$  規則化 CoPt<sub>3</sub> を確認した。

## 謝辞

本研究の一部は、文部科学省「元素戦略プロジェクト<研究拠点形成型>」(Grant No. JPMXP0112101001) と日本学術振興会特別研究員奨励費 (Grant No. 21J13665) の支援により行われた。KEK PF BL-8B における GI-XRD 実験は、2016S2004, 2019V003, 2019G534 の課題のもと行われた。VSM 測定は、東京大学物性研究所共同利用 (課題番号: 7, 8, 77, 271, 202012-GNBXX-0012) のもと行われた。

## 参考文献

- [1] R. Toyama, S. Kawachi, S. Iimura, J. Yamaura, Y. Murakami, H. Hosono, and Y. Majima, *Mater. Res. Express* **7**, 066101 (2020).  
 [2] R. Toyama, S. Kawachi, J. Yamaura, Y. Murakami, H. Hosono, and Y. Majima, *Jpn. J. Appl. Phys.* **59**, 075504 (2020).

## エピタキシャル Mn-Al 合金薄膜の構造と磁気特性に及ぼす膜厚の影響

野呂翔太<sup>1</sup>・中野光太郎<sup>1</sup>・大竹充<sup>1</sup>・二本正昭<sup>1</sup>・川井哲郎<sup>1</sup>・桐野文良<sup>2</sup>・稲葉信幸<sup>3</sup>  
 (<sup>1</sup>横浜国大, <sup>2</sup>東京藝大, <sup>3</sup>山形大)

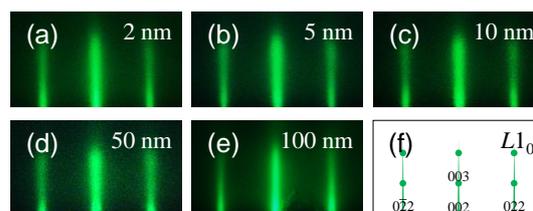
Influence of Film Thickness on the Structural and Magnetic Properties of Epitaxial Mn-Al Alloy Thin Films  
 Shota Noro<sup>1</sup>, Kotaro Nakano<sup>1</sup>, Mitsuru Ohtake<sup>1</sup>, Masaaki Futamoto<sup>1</sup>, Tetsuroh Kawai<sup>1</sup>, Fumiyoshi Kirino<sup>2</sup>, Nobuyuki Inaba<sup>3</sup>  
 (<sup>1</sup>Yokohama Nat. Univ., <sup>2</sup>Tokyo Univ. Arts, <sup>3</sup>Yamagata Univ.)

**はじめに** 大きな一軸磁気異方性エネルギー ( $K_u$ ), 小さな飽和磁化 ( $M_s$ ), 小さなダンピング定数 ( $\alpha$ ) をもつ硬磁性膜は, スピン注入型磁気抵抗メモリの磁気トンネル接合素子への応用に向けて研究されている.  $L1_0$  (CuAu 型,  $tP4$ ) 構造をもつ Mn-Al 合金膜は, ( $K_u, M_s, \alpha$ ) = ( $1.5 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ <sup>1)</sup>,  $500 \text{ emu/cm}^3$ <sup>2)</sup>,  $0.006$ <sup>3)</sup> という物性を持ち, 上記条件を満たす材料のひとつである. しかしながら, これまでの Mn-Al 合金膜の報告例では, 比較的, 膜厚が厚いことが多く, 実際のデバイス応用を考えるためには数~数十 nm オーダーの膜厚における構造と磁気特性を把握する必要がある. 本研究では, RHEED による結晶成長のその場観察が可能な分子線エピタキシー法を用いて, Mn-Al 膜の成長過程の観察を行った. その上で, 膜厚を変化させ, 構造と磁気特性を系統的に調べた. 作製した膜に熱処理を施し, 特性向上を試みた.

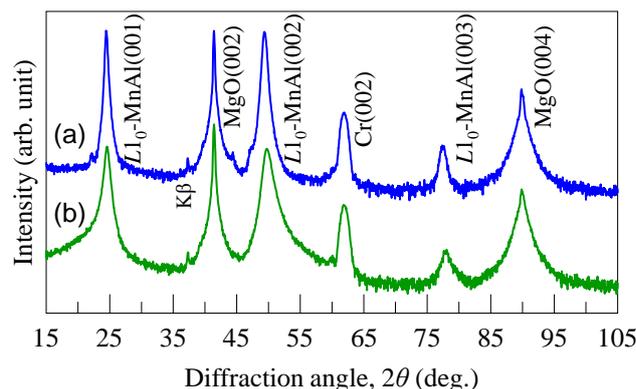
**実験方法** Cr(001)下地層上に 300 °C で Mn-Al 合金膜を成長させた. 膜厚は 2~100 nm の間で変化させた. 結晶構造評価には RHEED, 格子定数や規則度の評価には XRD, 表面形態観察には AFM, 磁化曲線測定には VSM を用いた.

**実験結果** Mn-Al 膜に対して観察を行った RHEED パターンを Fig. 1 に示す. 膜成長の初期過程から 100 nm の膜厚まで, Fig. 1(f)の模式図に対応する  $L1_0$  単相のパターンが得られた. 熱処理の有無が異なる, 膜厚 100 nm の試料に対して測定した面外 XRD パターンを Fig. 2 に示す. いずれも  $L1_0(001)$ 超格子反射が見られたが, 基本反射(002)に対する強度比  $I_{001}/I_{002}$  は, 熱処理無し試料が 0.55, 熱処理有り試料が 0.67 であり, 規則度が向上していることが分かる. 当日は, 構造と磁気特性の膜厚依存性について議論する.

- 1) A. Sakuma: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **63**, 1422 (1994).
- 2) J. H. Park, Y. K. Hong, S. Bae, J. J. Lee, J. Jalli, G. S. Abo, N. Neveu, S. G. Kim, C. J. Choi, and J. G. Lee: *J. Appl. Phys.*, **107**, 09A731 (2010).
- 3) M. Hosoda, M. Oogane, M. Kubota, T. Kubota, H. Saruyama, S. Iihama, H. Naganuma, and Y. Ando: *J. Appl. Phys.*, **111**, 07A324 (2012).
- 4) M. S. Parvin, M. Oogane, M. Kubota, M. Tsunoda, and Y. Ando: *IEEE Trans. Magn.*, **54**, 3401704 (2018).



**Fig. 1** (a)–(e) RHEED patterns observed for Mn-Al film. (f) Schematic diagrams of RHEED pattern simulated for (001) single-crystal surface with  $L1_0$  structure.



**Fig. 2** Out-of-plane XRD patterns of Mn-Al films (a) after annealing and (b) before annealing. The intensity is shown in logarithmic scale.

# FePt エピタキシャル薄膜の成長形態に与える 表面自由エネルギーの影響

鈴木一平、ホセイン・セペリアミン、高橋有紀子、宝野和博 (物材機構)

Effect of surface free energy on the growth mode of FePt epitaxial thin films

I. Suzuki, H. Sepehri-Amin, YK. Takahashi, and K. Hono (NIMS)

## はじめに

$L1_0$ -FePt 薄膜は、その巨大な垂直磁気異方性<sup>(1)</sup>やスピンホール効果<sup>(2)</sup>などから、次世代磁気記録媒体やスピントロニクス応用の観点で盛んに研究されている。ところが、同じ材料であっても要求される薄膜形態はその用途に応じて異なる。例えば、磁気記録媒体では島状成長が不可欠であるが、スピントロニクスでは、多くの場合で連続膜が求められる。そのため、薄膜形態を用途に応じて適切に制御することは極めて重要である。エピタキシャル薄膜の成長形態は、基板との格子不整合や表面自由エネルギーが重要な要素であることが知られている。FePt 薄膜については、格子不整合が薄膜形態に与える影響は調べられてきた<sup>(3)</sup>一方で、表面自由エネルギーの影響についての定量的な評価はほとんどなされていない。そこで我々は、格子不整合を変えずに、表面自由エネルギーを変調した際の、FePt エピタキシャル薄膜の成長形態について調べた<sup>(4)</sup>ので、これを報告する。

## 実験方法

格子定数を変えずに下地層の表面自由エネルギーを変調するために、下地層として MgO(001)基板、及び MgO(001)にエピタキシャル成長した NiO(001)、MgO 基板を窒素雰囲気中でアニールすることによって準備した MgON 表面を用いた。これら MgO, NiO, MgON の表面自由エネルギーは、純水及びジヨードメタンをプローブとした接触角測定結果を Owens-Wendt モデルに基づいて評価した。それら 3 種の表面上に、1.2 nm 及び 12 nm の FePt 薄膜をマグネトロンスパッタ法によってエピタキシャル成長させた。作製した試料の構造は TEM 及び XRD を、磁気特性は SQUID-VSM を用いてそれぞれ評価した。

## 結果

MgO, NiO, MgON の表面自由エネルギーはそれぞれ  $39.6 \text{ mJ/m}^2$ ,  $59.4 \text{ mJ/m}^2$ ,  $63.6 \text{ mJ/m}^2$  であり、NiO および MgON は MgO より大きな表面自由エネルギーを有していることが分かった。Fig. 1 には MgO, NiO, MgON、それぞれの表面にエピタキシャル成長した膜厚 1.2 nm の FePt 薄膜の平面 TEM 像を示す。MgO では明瞭な島状成長が見られ、その被覆率は 50%程度であるが、MgON では粒子間がつながった組織が観察された。NiO においては、より連続膜に近い組織が見られ、その被覆率は 82%に達する。この時、格子不整合はほとんど同一であるため、これら薄膜形態の違いは表面自由エネルギーの違いに起因する。すなわち、表面自由エネルギーを変調することによって FePt 薄膜の成長モードが制御可能であることを示す。

## 参考文献

- 1) J. -U. Thiele *et. al.*, J. Appl. Phys. **84**, 5686 (1998).
- 2) T. Seki *et. al.*, Nat. Mater. **7**, 125 (2008).
- 3) K. F. Dong *et. al.*, J. Appl. Phys. **113**, 233904 (2013).
- 4) I. Suzuki *et. al.*, ACS Appl. Mater. Interfaces. **13**, 16620 (2021)

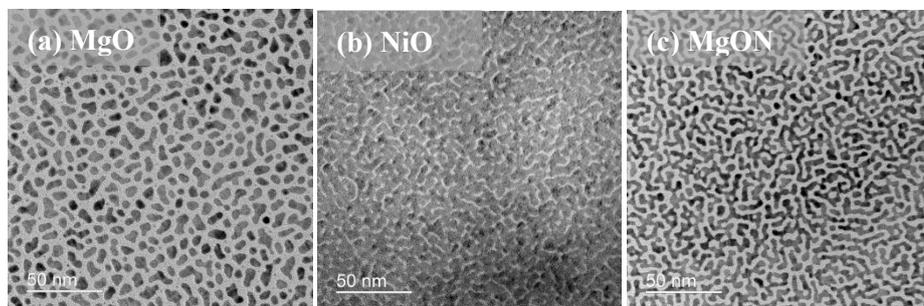


Fig.1 Plan-view bright-field-TEM images of 1.2 nm-thick-FePt films on (a)MgO, (b) NiO and (c) MgON, respectively.

## 90度磁気結合の材料依存性と温度依存性

劉楚寒<sup>1</sup>、橋本直樹<sup>1</sup>、堀池周<sup>1</sup>、黒川雄一郎<sup>1</sup>、湯浅裕美<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>九州大学)

Biquadratic magnetic coupling dependence on material of spacer and temperature  
Chuhan Liu<sup>1</sup>, Naoki Hashimoto<sup>1</sup>, Shuu Horiike<sup>1</sup>, Yuichiro Kurokawa<sup>1</sup>, and Hiromi Yuasa<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>Kyushu-Univ.)

## はじめに

反強磁性体は高速ダイナミクスには魅力的であるが、しかし汎用の電流で電流駆動磁化発振を観測することは困難である。そのため、我々は90度の磁気結合を利用して作製した逆平行磁化を交互に持つ磁区からなる人工反強磁性体を提案した。シミュレーションより、スピントルク発振の周波数は90度の磁気結合が増加するにつれて上昇することが示された<sup>1)</sup>、<sup>2)</sup>。そこで本報告では、より高い90度磁気結合を発現するためスペーサーの材料探索を行い、その起源を説明するため温度依存性を調べた。

## 実験方法

SiO<sub>2</sub>基板上にスパッタリングされたサンプル構造と磁化構成を図1に示す。Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(A)の磁化は、IrMnからの交換相互作用によってx方向に均一に固定される。スペーサーを介したCo<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(A)と(B)間の90度磁気結合により、Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(B)は疑似反強磁性層になり、Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(B)の磁化は+/- y方向に沿っている。Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(C)は磁気フリー層である。我々はCr(1nm、2nm、および3nm)とCr-Oを使って磁化曲線を測定した。測定装置はVibrating Sample Magnetometer (VSM)である。

## 実験結果

図2(a)は、y方向の磁場にさまざまなスペーサー材料を使ったサンプルの磁化曲線を示している。ここで、保磁力の大きさは90度磁気結合の強さに対応する。保磁力はスペーサー材料に強く依存し、高い順に、Cr 1nm、Cr 2nm、Cr 3nm、Cr-O、Fe-Oとなった。Cr-OとFe-Oの保磁力が小さい理由の1つは、Cr-OとFe-Oでは非磁性領域が多く、90度磁気結合に寄与するスピンの連続的に存在しないことが考えられる。これと比較すると、金属Crは層全体にスピンの存在があり、強い90度磁気結合が発現するものと考えられる。スペーサー材料が非磁性であるAlの場合、90度磁気結合の四重極結合定数 $B_{12}$ は温度依存性が大きいことが知られる<sup>3)</sup>。これと比較するため、Cr 1nmスペーサーのサンプルについて、保磁力および四重極結合定数 $B_{12}$ の温度依存性を調べ、図2(b)に示した。まず保磁力に着目すると、温度を下げることで、Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(B)の保磁力が大幅に上昇したが、自由層Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(C)の保磁力は変化しなかった。これは、Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(B)の保磁力の温度依存性が、材料の保磁力ではなく、90度磁気結合によって引き起こされていることを示している。一方、四重極結合定数 $B_{12}$ も温度を下げると増加するものの、その増加量は1.2倍ほどであり、過去に示されたAlスペーサーで2倍以上であると事と比べると温度依存性は小さく、発現機構が異なることを示唆する。

## 参考文献

- 1) G. Nagashima, *et al*, J. Appl. Phys., **126** (2019) 093901.
- 2) S. Horiike *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **59** (2020) SGGI02.
- 3) C.J. Gutierrez, *et al*, J. Magn. Magn. Mater. **116** (1992) L305.

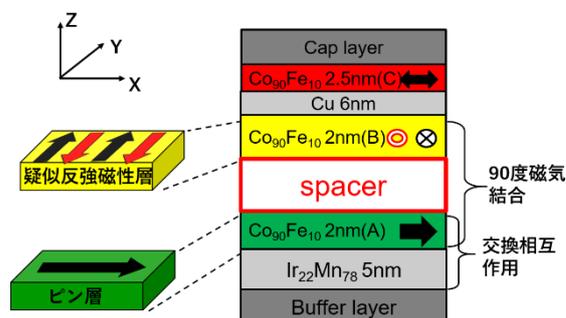


図1 サンプルの構造

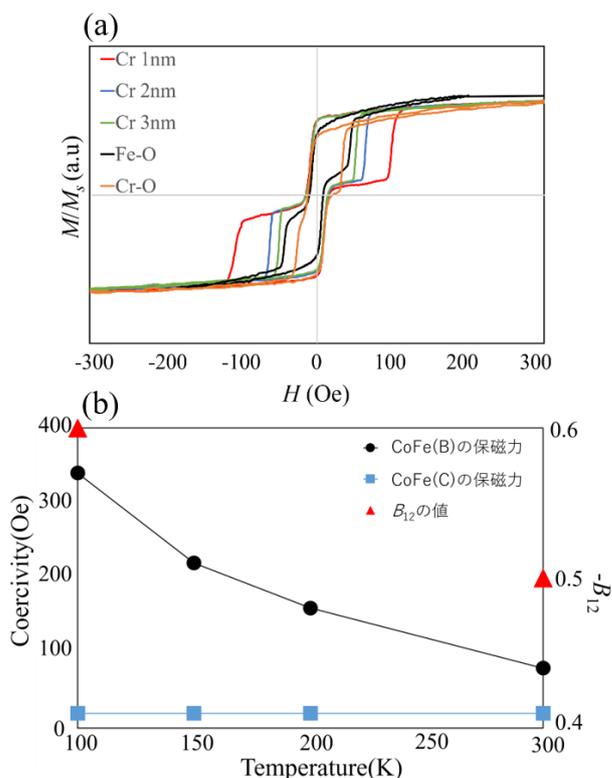


図2 (a) スペーサー層膜厚と材料による磁化曲線形状の変化、(b) 温度によるCoFeの保磁力と $B_{12}$ の変化

# 強磁性超薄膜／反強磁性薄膜における交換バイアスおよび超常磁性ブロッキング温度に対する反強磁性秩序の影響

白土 優、陶 亦然、豊木研太郎、中谷亮一  
(大阪大学大学院工学研究科)

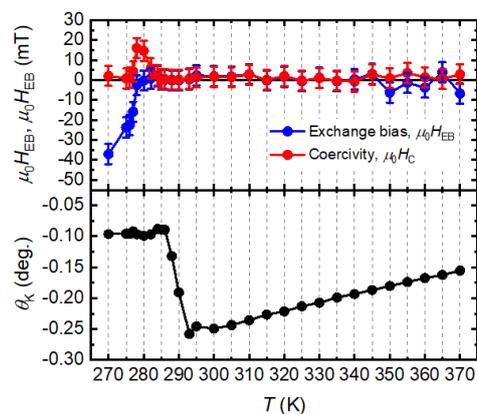
Influence of antiferromagnetic ordering on exchange bias and superparamagnetic blocking temperature in ferromagnetic/antiferromagnetic thin film

Yu Shiratsuchi, Yiran Tao, Kentaro Toyoki and Ryoichi Nakatani  
Graduate School of Engineering, Osaka University

**【緒言】** 超薄膜やナノ粒子などのナノサイズの磁性体においては、磁化反転のエネルギー障壁が熱エネルギーと同程度となる場合に超常磁性が観測される。超常磁性は、磁場を除去した際に正味の磁化が消失することから、多くの磁気デバイスにおいては抑制することが必要とされる。反強磁性体／強磁性体界面における交換磁気異方性は、超薄膜やナノ粒子等の実効的な磁気異方性エネルギーを上昇させる効果として利用されることがある。この系においては、超常磁性ブロッキング温度 ( $T_{B\_SPM}$ ) が反強磁性層のネール温度 ( $T_N$ ) と一致することが期待され、また、交換磁気異方性によって生じる交換バイアスのブロッキング温度 ( $T_{B\_EB}$ ) も、両者 (超常磁性ブロッキング温度、ネール温度) と一致するものと仮定されることが多い。本研究では、Pt/Co/Au/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Pt 積層膜に対して、 $T_{B\_SPM}$ 、 $T_{B\_EB}$ 、 $T_N$  の対応について検討した。

**【実験方法】** 試料作製には、DC マグネトロンスパッタリング装置 (到達真空度  $<1 \times 10^{-6}$  Pa) を用いた。作製した積層膜の構成は、Pt(2 nm)/Co(0.25 nm)/Au(1.0 nm)/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(30 nm)/Pt(20 nm) とし、本構成の薄膜を  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001) 単結晶基板上に作製した。構造評価には、反射高速電子線回折 (RHEED) 法、X 線回折法を用いた。試料作成方法と各層の構造については、別紙 1) を参考して頂きたい。磁気特性評価には、磁気光学 Kerr 効果 (MOKE) 測定、および、交流帯磁率測定を用いた。

**【実験結果】** 室温 (~297 K) において、膜面内 (縦 Kerr 効果測定) と膜面垂直 (極 Kerr 効果測定) の磁化曲線において、いずれも保磁力と残留磁化は観測されず、作製した薄膜は室温で超常磁性状態にあると考えられる。また、交流帯磁率の温度依存性において、磁化の同期成分 (in-phase) が 285 K でピークを示すことから、 $T_{B\_SPM}$  を 285 K とした。右図に、極 Kerr 効果測定において得られた保磁力 ( $H_C$ )、交換バイアス磁場 ( $H_{EB}$ )、および、Kerr 回転角 ( $\theta_K$ ) の温度依存性を示す。保磁力は 285 K 以上ではゼロであるが、温度の低下により 285 K で保磁力が観測され、278 K で最高値を示した後、再度低下する。278 K における保磁力の低下と同時に、交換バイアス磁場が観測され始める。この結果から、交換バイアスに対するブロッキング温度  $T_{B\_EB}$  を 278 K とできる。興味深いことに、285 K における保磁力の上昇とほぼ同じ温度領域において、Kerr 回転角が変化する。本研究で使用した積層構造においては、Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 層内の光学的な干渉効果によって見かけ上の Kerr 回転角は変化する。図に示した Kerr 回転角の変化は、反強磁性秩序の生成にともなう Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 層における光学定数の変化を反映したものであると考えられ、この結果を基に、 $T_N = 290 \pm 3$  K とすることができる。講演では、以上の結果と基に、 $T_{B\_SPM}$ 、 $T_{B\_EB}$  に対する反強磁性秩序の影響について議論する。



$\mu_0 H_C$ ,  $\mu_0 H_{EB}$ ,  $\theta_K$  の温度依存性

## 参考文献

- 1) Y. Shiratsuchi, Y. Tao, K. Toyoki, and R. Nakatani, Magnetochemistry, 7, 36 (2021).

## 光励起超短時間磁化応答の光学干渉層厚依存性

高橋 壽生<sup>1</sup>, 田島 大輝<sup>1</sup>, 吉川 大貴<sup>2</sup>, 塚本 新<sup>2</sup>

(<sup>1</sup> 日本大学大学院理工学研究科, <sup>2</sup> 日本大学理工学部)

The effects of optical interference layer thickness on photo-excited ultrafast magnetization response

Tokio Takahashi<sup>1</sup>, Daiki Tajima<sup>1</sup>, Hiroki Yoshikawa<sup>2</sup>, and Arata Tsukamoto<sup>2</sup>

(<sup>1</sup> Graduate School of Science and Technology, Nihon Univ.,

<sup>2</sup> College of Science and Technology, Nihon Univ.)

**はじめに:** 磁性薄膜材料の微細・多層構造化と共に高速化の要請が高まるスピントロニクスデバイスでは, 超短時間領域における高速磁化挙動の詳細な理解と制御技術の進展が求められている. 超短パルス光を用いた実時間分解磁化ダイナミクス計測・光制御において, 積層構造を有する素子内での磁化ダイナミクスを含む光物質作用を明らかにするため, 超短時間における光学干渉特性の考慮・設計が重要となる. 本報告では, 異なる光学干渉構造, 同一金属磁性層を有する SiN 光学干渉層/GdFeCo 磁性層からなる薄膜試料群を用いて, 光学干渉構造・励起光強度が及ぼす超短時間減磁及び磁化回復過程への寄与につき検討を行った.

**実験方法:** 光励起磁化挙動の光学干渉効果による寄与解明を目的として, 同一金属磁性層を有する SiN ( $t$  nm) / Gd<sub>25</sub>Fe<sub>65.62</sub>Co<sub>9.38</sub> (20 nm) / SiN (5 nm) / glass sub. ( $t = 20, 40, 60, 100$  nm) 試料群を DC/RF マグネトロニクスパルタ法を用いて作製 (以下試料 A, B, C, D) した. 超短パルスレーザー (半値全幅 35 fs) を励起・観察光源とした全光型 Pump ( $\lambda = 800$  nm) - Probe ( $\lambda = 400$  nm) 法により, 励起後約 10 ps に渡る磁気光学効果の時間発展を計測した. 同一の光照射強度であり照射後減磁化量に相当する信号強度変化は飽和磁化信号強度比で最大でも 10 % 未満の条件である. さらに試料 A ( $t = 20$  nm) において励起光強度依存性として, 照射光強度 4~10  $\mu\text{J}/\text{pulse}$  の範囲にて同様の計測を行った. また, 測定環境として室温下にて外部磁場  $\mu_0 H_{\text{ext}} = 282$  mT を膜面法線から 54° の角度で印加した.

**実験結果:** Fig. 1 に試料 A, B, C, D における同一光強度励起下での超短時間減磁応答特性を示す. 連続光 ( $\lambda = 800$  nm) での光吸収率が SiN 膜厚に対し線形に変化する範囲で設計した試料群に対し, 膜厚の増大とともに励起後の準安定状態における信号は減少するが, 約 2 ps の時間領域では, 光吸収による減磁量が非線形かつ特異的に変化することが明らかとなった<sup>1)</sup>. また, Fig. 2 に試料 A に対し, 励起光強度を 4~10  $\mu\text{J}/\text{pulse}$  で変化した超短時間減磁及び磁化回復過程を示す. 減磁量は Fig. 1 より大きく約 8~30 % であるが, いずれも試料 C に現れる急峻な減磁緩和応答は見られない. 連続光同様の実効的光吸収特性のみならず, 超短パルスレーザー光での光学干渉による, ps スケールの超短時間磁化ダイナミクスへの寄与が示唆された.

**謝辞:** 本研究の一部は, JST, 未来社会創造事業, JPMJMI20A1 の支援を受けたものである.

**参考文献:** 1) T. Takahashi, D. Tajima, H. Yoshikawa, A. Tsukamoto, *Technical Meeting on "Magnetics", IEE Japan, MAG-21-008 (2021).*

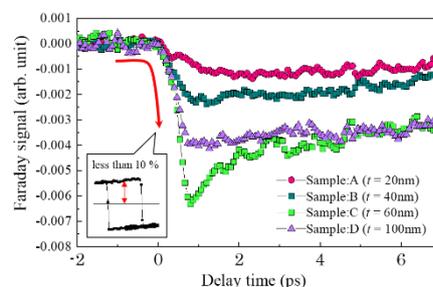


Fig. 1 Ultrafast demagnetization process using ultrashort pulsed laser ( $\lambda = 800\text{nm}$ ) in samples A, B, C and D.

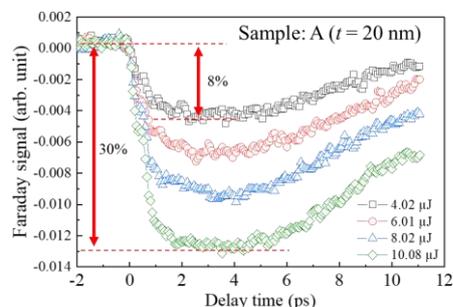


Fig. 2 Laser power dependence of ultrafast demagnetization using ultrashort pulsed laser ( $\lambda = 800\text{nm}$ ) in sample A

# 強磁性プローブを用いた NiFe-Cu ナノキューブの電気伝導測定

佐久間洋志<sup>1</sup>, 竹内亮太<sup>1</sup>, 坂倉 響<sup>2</sup>, 竹田真帆人<sup>2</sup>,

Suko Bagus Trisnanto<sup>2</sup>, 大多哲史<sup>3</sup>, 竹村泰司<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>宇都宮大学, <sup>2</sup>横浜国立大学, <sup>3</sup>静岡大学)

Electrical conductivity measurements of NiFe-Cu nanocubes with ferromagnetic probes

H. Sakuma<sup>1</sup>, R. Takeuchi<sup>1</sup>, H. Sakakura<sup>2</sup>, M. Takeda<sup>2</sup>, S. B. Trisnanto<sup>2</sup>, S. Ota<sup>3</sup>, Y. Takemura<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Utsunomiya Univ., <sup>2</sup>Yokohama National Univ., <sup>3</sup>Shizuoka Univ.)

## はじめに

Cu<sub>75</sub>Ni<sub>20</sub>Fe<sub>5</sub>の単結晶を特定の条件で時効処理すると、Ni と Fe の含有量が高い、平均サイズが 70 nm のナノキューブが母相と同じ結晶配向を持って析出することが明らかになっている<sup>(1)</sup>。これまでこの NiFe-Cu ナノキューブに対して、直流/交流磁化測定<sup>(2)</sup>やレーザー励起光電子顕微鏡による観察<sup>(3)</sup>が行われてきた。本研究では、金属プローブを試料表面に接触させることにより、表面付近の局所的な電気的特性を測定することを目的とする。

## 測定方法

試料は、NiFe-Cu ナノキューブを含む Cu<sub>75</sub>Ni<sub>20</sub>Fe<sub>5</sub>単結晶を一辺約 2 mm の立方体に切り出したものである。立方体の各面は{100}に平行である。プローブとして、非磁性の Pt-Ir、強磁性の Fe、Co、Ni 線を用いた。ピエゾ素子を備えた XY ステージ上に試料を設置し、Z ステージにプローブを設置することにより、試料とプローブの相対位置を制御した<sup>(4)</sup>。試料とプローブ間には電圧源を設置し、電流をモニターした。磁場の印加には永久磁石式磁場源<sup>(5)</sup>を用いた。

## 測定結果

Fig. 1 に Co プローブを用いて約 4.4×2.4 μm<sup>2</sup>の領域を走査した結果を示す。各点において、プローブと試料が離れた状態からスタートし、徐々にプローブを近づけていった。ある距離でコンダクタンスが最大となるが、その時の高さ (Z) 方向のピエゾ印加電圧を図示したもので、つまり形状像が上段である。下段はコンダクタンスの最大値を図示したものである。測定前に -50 mT 以上の磁束密度を印加し、3~51 mT の間で磁束密度を強くしながら測定を行った。磁場の変化による強磁性プローブの移動が懸念されたが、位置の大きなずれはないようである。一方、右上に見える山が徐々に低くなっており、プローブを押し当てたことにより形状が変化した可能性がある。コンダクタンスは磁場による変化があるようにも見えるが、接触状態による変化の可能性もあり、より詳細な実験・解析が必要である。

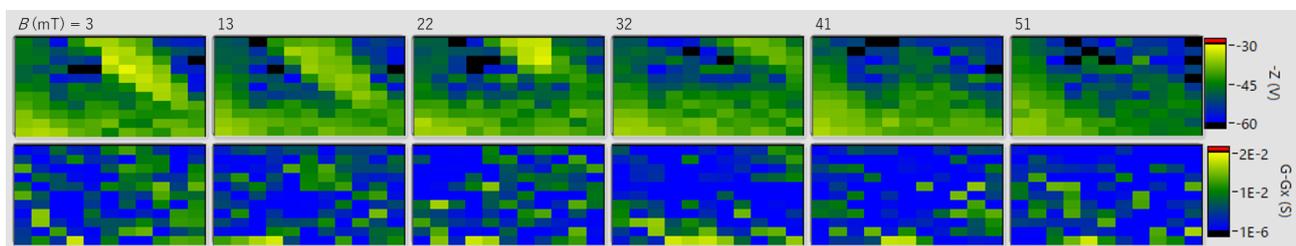


Fig. 1. Topographic images (upper panels) and conductance maps (lower panels) acquired with Co probe.

## 参考文献

- (1) J.-S. Kim *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **55**, 123002 (2016). (2) 例えば, S. Kobayashi *et al.*, *Molecules* **25**, 3282 (2020). (3) J.-S. Kim *et al.*, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **49**, 335006 (2016). (4) 佐久間洋志ほか, 電気学会論文誌 A **137**, 380 (2017). (5) H. Sakuma, *J. Magn. Soc. Jpn.* **44**, 21 (2020).

# STM/UPS による有機分子磁性金属へテロ構造の研究

山田 豊和

(千葉大学 大学院工学研究院 物質科学コース)

STM and UPS study of Organic Molecule – Magnetic Metal Hetero Structures

Toyo Kazu Yamada

(Chiba University, Graduate School of Engineering, Department of Materials Science)

## 有機分子と磁性金属の強固な $\pi$ -d 電子結合：有機分子スピントロニクスを目指して

無機材料によるスピントロニクス替わる、新たな材料として有機分子がある。有機分子は、窒素、炭素、水素など、軽元素からなる。グラフェンのような炭素材料に比べると耐久性には課題があるが、特異な対称性を有する低次元格子膜を人工的に創出できる利点がある。

有機分子は、一般に、350 – 500 K 程度で真空昇華する。多くの単分子の厚さは約 0.2-1.0 nm であり、単分子レベルで昇華制御できるため、エピタキシャル成長で製膜が可能である。分子サイズが大きく昇華する前に熱で壊れてしまう分子は、分子溶液を直接真空スプレーする方法もあるが<sup>2,3)</sup>、本研究では真空昇華による製膜法を用いた。有機分子の中で比較的耐久性が高い分子として、フタロシアニン(Pc)分子やポルフィリン(TPP)分子がある。これらは、600-700 K まで分子構造が壊れず保持することが分かっている。

我々は、過去 10 年にわたり、Pc / TPP 分子の単分子レベルでの真空昇華技術の確立と<sup>1)</sup>、3d 磁性金属と分子との電子結合に関して、走査トンネル顕微鏡(STM)および紫外光電子分光(UPS)を用いて研究してきた。右図に、試料作製と STM/UPS 計測の概要を示す。全ての実験は超高真空中で行った。

単一 Pc 分子による磁気伝導計測(4 K)<sup>4,5)</sup>、強固な p-d 電子結合による Fe(001)上 Pc 分子の室温での熱拡散防止<sup>6,7)</sup>、そして、Pc / TPP や環状分子の二次元規則配列への磁性原子吸着構造の解明である<sup>8-10)</sup>。

これまでの経緯と、有機分子を使った、表面合成ポリマーによる新たな磁気格子創製、に関して報告する。

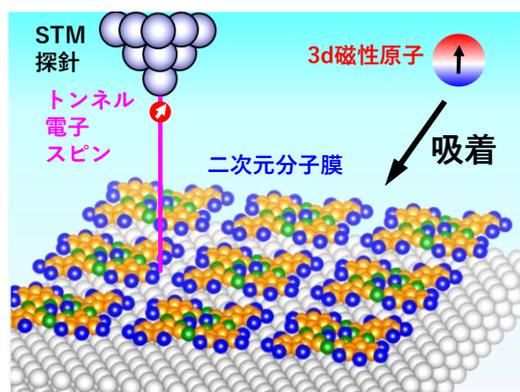


Fig.1 STM による二次元有機分子配列への磁性原子吸着構造の研究。

## 参考文献

- 1) Analytical Chemistry 90, pp. 8954-8959 (2018).
- 2) Nanotechnology 29, 315705 (2018).
- 3) 表面と真空 64 (No.1) pp.40-46 (2021).
- 4) Nature Nanotechnology, 6, (2011) 185-189.
- 5) Nano Letters, 12, (2012) 5131-5136.
- 6) Scientific Reports 8, 353 (2018).
- 7) Phys. Rev. B 94, 195437 (2016).
- 8) The Journal of Physical Chemistry C 124, 3621-3631 (2020).
- 9) The Journal of Physical Chemistry C 123, 18939-18950 (2019).
- 10) 表面と真空 63 (No.9) pp.465-469 (2020).

# (Fe-Pt, Co-Pt)-フッ化物系ナノグラニューラー膜のファラデー効果

小林伸聖, 岩佐忠義, 池田賢司, 荒井賢一  
(公益財団法人 電磁材料研究所)

Faraday effect of (Fe-Pt, Co-Pt)-fluoride nanogranular films

N. Kobayashi, T. Iwasa, K. Ikeda, and K. I. Arai

(Research Institute for Electromagnetic Materials, DENJIKEN)

## はじめに

ファラデー効果を有する材料は、光アイソレーター等の光通信デバイスに用いられており、高度情報化社会に欠かせないものである。我々は、ナノグラニューラー膜のファラデー効果を検討した結果、光通信の波長帯において Bi-YIG の約 40 倍もの大きなファラデー効果を示すことを明らかにした<sup>(1)</sup>。これらは、スパッタ法で作製される膜厚がサブミクロンから数ミクロン程度の薄膜材料であり、これを用いることによって、光通信デバイスの微細化・集積化が可能となる。一方、磁気光学材料が磁気光学効果を発現させるためには磁界を印可することが必要であり、デバイスに磁界印加機能を組み込むことは、デバイスの小型化・簡素化を困難にする要因となるであろう。ここでは、ナノグラニューラーが、高保磁力を有する FePt, CoPt または FeCoPt 合金から成るナノグラニューラー膜のファラデー効果について報告する。保磁力を持つナノグラニューラーを採用することにより、材料自身の残留磁化によって、磁場を印可しなくてもファラデー効果を発現することができる。

## 実験方法

薄膜試料は、RF スパッタ装置を用いタンデム法<sup>(2)</sup>によって作製した。2つのターゲットホルダーの一方に、Fe, Co もしくは FeCo 合金ターゲット(76 mm φ)上に Pt チップ(5×5mm)を配置した複合ターゲット、他方に MgF<sub>2</sub>, CaF<sub>2</sub> もしくは BaF<sub>2</sub>(76 mm φ)粉末焼結ターゲットを配置し、Ar ガス雰囲気中にて同時にスパッタした。基板には、50×50×0.5 mm の石英ガラスを用いた。成膜中の基板温度は 300 °C に設定し、成膜後には真空中にて 400~800°C の所定の温度で 1 時間保持した。膜組成は、波長分散型分光分析法(WDS)を用いて分析し、磁化曲線は、振動試料磁力計(VSM)を用いて測定した。光透過率の測定は分光光度計を用いた。ファラデー回転角は、ネオアーク社製 BH-501F-SV1-DJK を用いて 500~1700nm の波長範囲で測定した。膜の構造解析には、X 線回折法を用いた。

## 結果

Fig.1 には、(Co<sub>0.7</sub>Pt<sub>0.3</sub>)<sub>15</sub>Ca<sub>25</sub>F<sub>60</sub> 膜の波長 1550nm でのファラデーロープを示す。ファラデーロープは保磁力と残留磁化に伴うヒステリシスを有し、零磁界で約 0.25deg./μm のファラデー回転角を示す。XRD の結果から、この膜のナノグラニューラーは Co<sub>3</sub>Pt 規則相から成ることが分かった。

## 謝辞

本研究の一部は、JSPS 科研費 JP20H02468、JP20K03843、JP19K21959、JST-CREST JPMJCR19T1 の助成、および東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センターの援助を受けて行われました。

## 参考文献

- 1) N. Kobayashi, K. Ikeda, Bo Gu, S. Takahashi, H. Masumoto, and S. Maekawa, Scientific Reports, 8, 4978 (2018)
- 2) N. Kobayashi, S. Ohnuma, T. Masumoto, and H. Fujimori, J. Magn. Soc. Jpn. 23, 76-78 (1999).

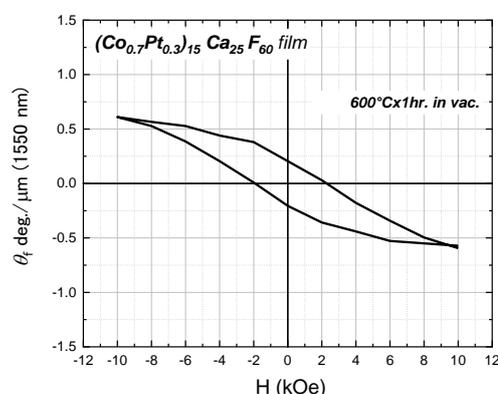


Fig.1 Faraday loop of (Co<sub>0.7</sub>Pt<sub>0.3</sub>)<sub>15</sub>Ca<sub>25</sub>F<sub>60</sub> film at 1550nm.

# ナノ粒子を扁平化したナノグラニューラ膜の粒子形状が及ぼす強磁性・超常磁性への影響

青木英恵<sup>1</sup>、打越雄央<sup>1</sup>、大沼繁弘<sup>1,2</sup>、小林伸聖<sup>2</sup>、増本博<sup>1</sup>

(1 東北大学、2 電磁材料研究所)

Shape effect of granule of lateral nanogranular films on ferromagnetic and superparamagnetic properties

Hanae Aoki<sup>1</sup>, Katsuhiko Uchikoshi<sup>1</sup>, Shigehiro Ohnuma<sup>1,2</sup>, Nobukiyo Kobayashi<sup>2</sup>, Hiroshi Masumoto<sup>1</sup>

(1.Tohoku University, 2.DENJIKEN)

## はじめに

デバイスの小型化・高周波化・省電力化への要求から、磁気-誘電-光などの複数の機能性をあわせ持つ薄膜材料への期待が高まっている。球形の磁性ナノ粒子が誘電体中に均一分散するナノグラニューラ膜は、トンネル磁気誘電(TMD)効果、トンネル磁気抵抗(TMR)効果および高周波軟磁気特性などの様々な電磁気効果が得られることが知られる。著者らは、ナノ粒子を球形状ではなく、膜面内に横扁平化することによって、Co-BaF<sub>2</sub>膜の面内磁気異方性が増加し、さらに TMR, TMD の両特性で、弱磁場における応答性が向上することを見出した<sup>1)</sup>。このことから、粒子を扁平化した膜の TMD・TMR 特性は、従来の超常磁性だけでなく強磁性に由来することが考えられる。本研究では、TMR・TMD が得られる 30-40at.% Co 組成域の Co-BaF<sub>2</sub> ナノグラニューラ膜を対象に、扁平 Co 粒子の粒子サイズを一定とし粒子間のみ変化させた膜、ならび比較として球形粒子がランダム分散した膜の低温磁化測定を行い、粒子形状が強磁性(磁気異方性)と超常磁性におよぼす影響を明らかにすることを目的とした。

## 実験方法

扁平 Co-BaF<sub>2</sub> ナノグラニューラ膜の作製には、Co と BaF<sub>2</sub> を交互に成膜するタンデムスパッタ法を用いた<sup>1)</sup>。ターゲットにはそれぞれ 2 および 3 inchφ の Co と BaF<sub>2</sub> を使用し、基板回転速度を一定とし、Co 側の投入電力を 100W で固定し BaF<sub>2</sub> 側の投入電力を 100-200W の範囲で変化させ、Co 粒子間の BaF<sub>2</sub> 厚みを変化させた。作製した膜の微細組織は TEM、膜面内の電気比抵抗( $\rho$ )は 4 端子法、静磁気特性は SQUID を用いてそれぞれ評価した。

## 実験結果

BaF<sub>2</sub> 側の投入電力が 150W で作製した Co-BaF<sub>2</sub> 膜は、32at.%Co 組成であり、扁平形の Co 粒子(幅 4.2, 厚み 2.7 nm)が BaF<sub>2</sub> 層(2.5nm)と交互に積層した構造である。粒子形状が膜の超常磁性および強磁性に与える影響を調べるために球形粒子の Co-BaF<sub>2</sub> 膜<sup>2)</sup>とともに低温磁化測定を行った。Fig. 1 に 15K-300K における球形粒子(a)および扁平粒子(b)のナノグラニューラ膜の面内方向に測定した磁化曲線を示す。横軸は温度 T で規格化した。Fig.1(a)球形粒子では、50-300K でほぼ同じ超常磁性の挙動を示し、ランジュバン関数に良い一致を示した。一方、Fig.1(b)扁平粒子では、300K で飽和磁化が大きく、70K で保磁力が増大しており、強磁性を示した。

## 参考文献

- 1) 打越雄央, 青木英恵, 小林伸聖, 大沼繁弘, 増本博, 日本金属学会春季講演大会, G28, 2021 年 3 月 19 日
- 2) H. Kijima-Aoki, Y. Cao, N. Kobayashi, S. Takahashi, S. Ohnuma, H. Masumoto, *J. Appl. Phys.* 128(13), 133904(2020)

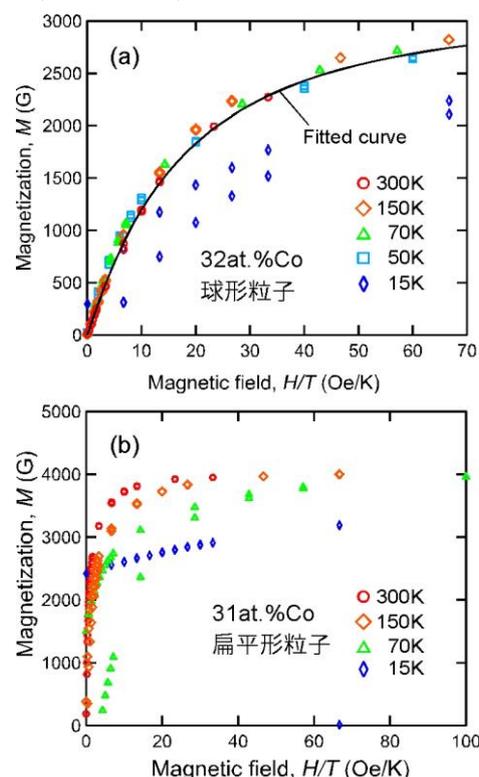


Fig.1 15K-300K における球形粒子(a) および扁平粒子(b)のナノグラニューラ膜の磁化曲線。横軸は温度 T で規格化した。

## グラニューラー薄膜を用いたひずみセンサの開発 2

上野駿平, 天満光佑, 上部智也, 藤原裕司, 大島大輝\*, 加藤剛志\*, 神保睦子\*\*  
(三重大, \*名古屋大, \*\*大同大)

Development of strain sensor with granular film 2

S.Ueno, K.Temma, T.Uwabe, Y.Fujiwara, \*D.Oshima, \*T.Kato, \*\*M.Jimbo  
(Mie Univ., \*Nagoya Univ., \*\*Daido Univ.)

### はじめに

近年 IoT 社会の実現に向け、多くの分野で微小ひずみの検出が求められている。また、多数の自動車、航空宇宙用途およびさらなる産業分野における機械量の測定のために小型センサが求められており、様々な原理のひずみセンサが研究されている<sup>1)2)</sup>。本研究では、印加磁界によって抵抗が変化するグラニューラー薄膜を FeSiBNb アモルファス薄膜(a-FeSiBNb)ヨークのギャップ中に埋め込んだ構造のひずみセンサの試作を行い検出可能なひずみを見積もった。

### 実験方法

成膜は DC 電源・RF 電源を持つマグネトロンスパッタリング装置を使用した。a-FeSiBNb 薄膜は 0.5Pa, Co-AlO 薄膜は 1Pa で成膜した。膜厚はともに 300nm である。基板はマイクロカバーガラスを使用した。ひずみセンサ素子はリフトオフにより a-FeSiBNb 電極を作製し、ギャップ部に Co-AlO を成膜することで作製した。素子の設計値は、ギャップ長は 3 $\mu\text{m}$ , 幅は 600 $\mu\text{m}$  である。磁気抵抗(MR)測定は直流二端子法で行った。磁気特性は VSM, トルク磁力計で評価した。

### 実験結果

本研究のひずみセンサ素子の概略図を Fig.1 に示す。a-FeSiBNb ヨークの磁気モーメント  $M$  を飽和させるために、外部磁界  $H_{DC}$  を特定の方向に印加する。今回は比較のために、ギャップに対して垂直な方向と(H $\perp$ gap)と平行な方向(H//gap)の2方向に磁界を印加した。H//gap 方向にひずみにより a-FeSiBNb ヨークの磁気モーメント  $M$  の方向を制御し、Co-AlO グラニューラー薄膜の抵抗を変化させる。これにより、Co-AlO グラニューラー薄膜の抵抗変化としてひずみを検出する。

Fig.2 は作製した素子に印加した引張ひずみ  $\epsilon$  に対する出力電圧変化であり、磁界の印加方向は(a)H $\perp$ gap, (b)H//gap である。また、青のプロットはひずみ増加時の測定結果、赤のプロットはひずみ減少時の測定結果である。(a)ではひずみの増加に伴い出力電圧が増加し、ひずみが  $6 \times 10^{-5}$  を超えると飽和する傾向を見せている。(b)では初期の磁気モーメントの向きとひずみの方向が同じであるために、原理的には抵抗変化がないはずであるが、若干の出力電圧が上昇している。今回試作した素子では、 $6 \times 10^{-5}$  程度以下のひずみを検出できることが示された。今後は、電圧変化率の増加が課題である。

### 謝辞

本研究は、名古屋大学未来材料・システム研究所における共同研究として実施された。

### 参考文献

- 1) M.Lohndorf et al.: J. Magn. Magn. Mater. **316**, e223 (2007)
- 2) Y.Hashimoto et al.: J. Appl. Phys. **123**, 113903 (2018)

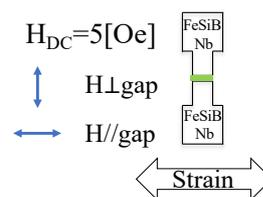
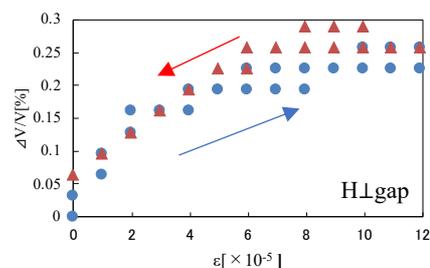
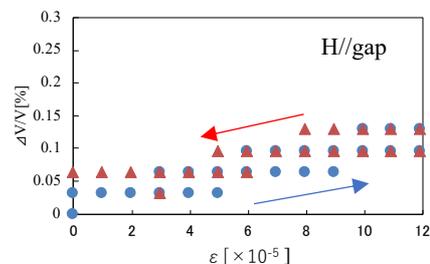


Fig.1 Schematic of strain sensor



(a)



(b)

Fig.2 Output voltage change on strain.

(a)Simulation and (b)Experimental results

## 凍結した磁性流体のメスバウアー効果と磁気緩和

喜多英治<sup>1,2,3)</sup>、小野寺礼尚<sup>3)</sup>、岸本幹雄<sup>2)</sup>、柳原英人<sup>2)</sup>  
(筑波大学応用加速器<sup>1)</sup>、筑波大学数理物質系<sup>2)</sup>、茨城高専<sup>3)</sup>)

Mössbauer study and magnetic relaxation of frozen magnetic fluid

E. Kita<sup>1,2,3)</sup>, R. Onodera<sup>3)</sup>, M. Kishimoto<sup>2)</sup> and H. Yanagihara<sup>2)</sup>

(University of Tsukuba TAC<sup>1,2)</sup>, University of Tsukuba FPAS<sup>2)</sup> NIT Ibaraki college<sup>3)</sup>)

### はじめに

酸化鉄ナノ粒子については、強磁性領域だけではなく超常磁性領域のナノ粒子も医療用 NMR 造影などに利用されている。ナノ粒子における磁気緩和は、ハイパーサーミアの発熱源としての発熱特性や磁性流体の凝集などに大きな影響を与える。磁気緩和を議論する際には異なる観測時間による計測データが有効である。そこで準静的な磁気測定と  $10^{-6}$  秒程度の観測時間を有すると考えられるメスバウアー効果を測定手段とし、MRI 造影剤として市販されている酸化鉄ナノ粒子磁性流体などの磁気緩和を明らかにする。

### 実験

試料には市販の超常磁性ナノ粒子 MRI 造影剤、Resovist<sup>1)</sup> と Co 添加球形マグネタイトナノ粒子の分散体を用いた。測定試料として 2~3mm 厚のアルミ板にあけた直径 10mm の穴に、液体試料を 0.5mm 厚の PET 板を接着剤 (3M) により封着した。気泡を逃がすため、小さな空間を作った。試料は冷凍機において冷凍固化させた。また比較のため乾燥試料も測定した。メスバウアー効果の試料冷却には無振動型冷凍機を用い、到達温度は 2.5K であった。メスバウアースペクトルのフィッティングには、市販ソフト MossWinn4.0 を用いた。

### 結果

図 1 に 2.5K から 250K で測定した、メスバウアー分光の結果を示す。2.5K のスペクトルは Maghemite の A,B サイトとしてフィッティングでき、そのパラメータを Table.1 に示す。100K 以上ではベースラインが明確ではなく、磁気緩和の特徴が見え始めて高温になるほど顕著となる。

結果的には乾燥状態と凍結試料でのメスバウアースペクトルには大きな差は見られなかった。100K 以上では、磁気緩和の影響を考慮しても、単純に一種類のサイトではフィットできず、緩和状態の異なる 2 成分の存在を示唆する。200K で Jump Rate から見積もった緩和時間は、 $5.7 \times 10^{-9}$  [s]、 $1.2 \times 10^{-7}$  [s] と得られた。さらにこの分布の影響が他の計測結果にも現れているか検討する。

Table I. Mossbauer parameters from fitting of the spectrum recorded at 2.5K.

Site	Hhf (kOe)	IS* (mm/s)	Area ratio (%)
A	509.7	0.535	44.8
B	530.0	0.492	55.2

\*IS : with respect to  $\alpha$ -Fe at RT

### 参考文献

- 1) Resovist、富士フイルム RI ファーマ

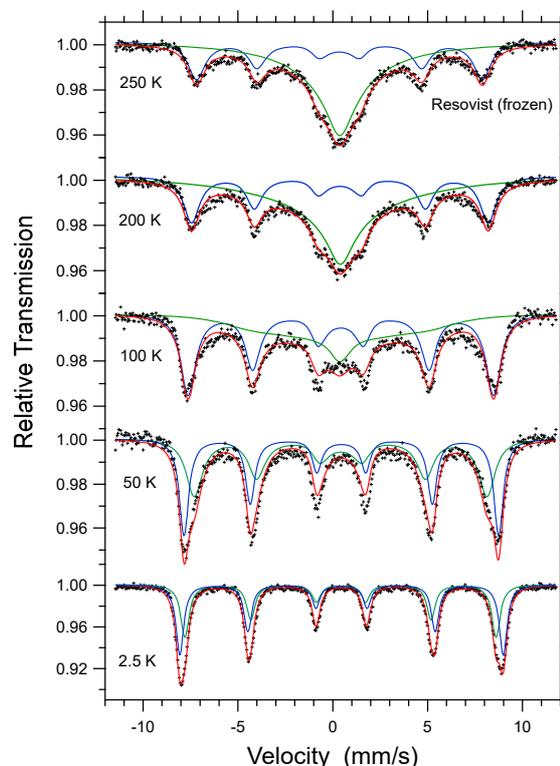


Fig. 1 Mössbauer spectra of Fe oxide nano-particles in a frozen magnetic fluid of Resovist®. Sample temperatures were changed from 2.5 K to 250 K.

# 一次反転曲線法による立方体型 $\text{Fe}_3\text{O}_4$ サブミクロン粒子の磁気渦解析

野村英志, 小林悟, 野田千晶, J. Manjanna\*

(岩手大理工, \*Rani Channamma Univ.)

Analysis of magnetic vortex formation of cubic  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  submicron particles by FORCs method

E. Nomura, S. Kobayashi, C. Noda, J. Manjanna\*

(Iwate Univ., \*Rani Channamma Univ.)

## 1 はじめに

近年、スピン渦 (SV) 状態を示すサブミクロン強磁性体粒子が、磁気ハイパーサーミアや磁気機械効果などの医療応用特性の向上に期待されている。医療応用特性の向上には SV 形成過程を理解することが重要であるが、SV の形成過程は形態・サイズ・次元に大きく依存する。特に立方体型粒子は単純な形状かつ作製も容易なため医療応用分野で注目されているが、サブミクロンサイズ粒子における SV 状態の磁気特性について十分理解されていない。そこで本研究では立方体型  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  サブミクロン粒子について一次反転曲線 (FORC) 測定を行い、SV の安定性と温度依存性を、以前報告した球状中空粒子の結果<sup>2)</sup>と比較して報告する。

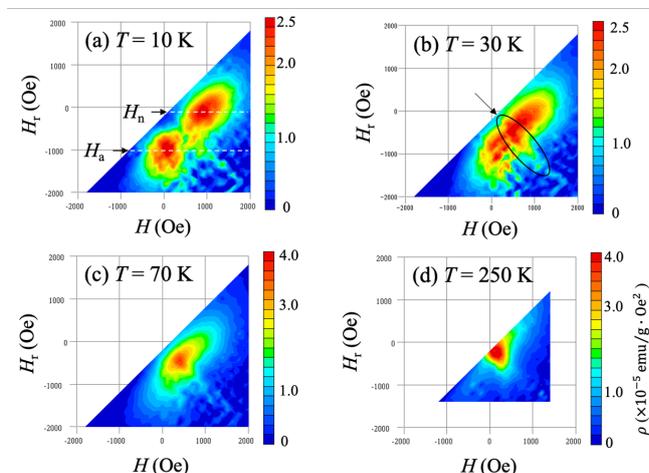
## 2 実験方法

立方体形状を有した  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  微粒子 (一辺  $265 \pm 34$  nm) について、SQUID 磁化測定装置を用いて FORC 測定を実施した。印加磁場範囲  $H = \pm 3$  kOe、 $H$  と反転磁場  $H_r$  のステップ幅 100 Oe、測定温度  $T = 10 \sim 300$  K の条件で測定を行い、FORC 分布  $\rho$  を求めた<sup>2)</sup>。

## 3 結果および考察

Fig.1 に FORC 分布の温度依存性を示す。(a) に示す  $T = 10$  K では FORC 分布の強いダブルピークが現れた。 $T = 30$  K では、ダブルピークは接近し、新たなピークが発生した (Fig.1(b) 矢印)。 $T = 70$  K 以上でダブルピークは消滅し、シングルピークとして観測された。シングルピークは、 $T = 30$  K から見られた新しいピークが昇温につれてシャープに成長したものである。 $T = 70$  K まで観測されたダブルピークは、磁化状態が flower 状態から SV 状態への不可逆的な発生消滅過程に起因すると考えられる。発生消滅を示すピークの反転磁場をそれぞれ  $H_n$ 、 $H_a$  とする。

中空粒子では、立方体粒子において  $T = 30$  K 以上で見られた単一のピークは観測されず、 $T = 300$  K までの広い温度領域で明瞭なダブルピークが観測された。さらに、中空粒子における  $H_n$ 、 $H_a$  は立方体粒子よりも高い値を得た。以上より、立方体粒子の SV は中空構造より形成しにくく、また立方体粒子で新たに観測されたシングルピークは、渦のコアの反転が不可逆的な磁化過程に大きな変化を与えると推定される。



**Fig. 1** Temperature dependence of the FORC diagram. (a)  $T = 10$  K.  $H_n$  and  $H_a$  denote the nucleation and annihilation field of the SV state, respectively. (b)  $T = 30$  K. (c)  $T = 70$  K and (d)  $T = 250$  K.

## References

- 1) N. A. Usov et al., *Scientific Reports*, **8**, 1224 (2018)
- 2) M. Chiba et al., *AIP Adv.*, **9**, 035235 (2019)

# C11<sub>b</sub> Cr<sub>2</sub>Al 薄膜の結晶構造評価および Néel 温度の決定

豊木研太郎, 濱口峻祐, 白土優, 中谷亮一  
(大阪大学大学院工学研究科)

The evaluation of crystal structure and Néel temperature of C11<sub>b</sub> Cr<sub>2</sub>Al thin films

Kentaro Toyoki, Shunsuke Hamaguchi, Yu Shiratsuchi, Ryoichi Nakatani

(Graduate school of engineering, Osaka University)

**【研究背景】** トンネル磁気抵抗効果, 巨大磁気抵抗効果といった磁気抵抗(MR)効果はスピントロニクスデバイスの基幹をなす. 近年では, 双方ともに単結晶膜において高い MR 比が実現されることが報告されている. これに対して, 交換バイアスを通じて上下強磁性層間の反転磁場の差を生じしむための反強磁性層に関しては, 単結晶からなる膜構成を考慮すると, 未だ検討の余地があると言える. すなわち, 従来から主として用いられてきた Ir-Mn(111)系を代替し, 高 MR 比の Co-Fe(-B)/MgO(001)/Co-Fe(-B)系<sup>1)</sup>や Co<sub>2</sub>MnSi/Ag/Co<sub>2</sub>MnSi(001)系<sup>2)</sup>に対して格子整合の良い反強磁性体に関して検討する必要がある. そこで我々は単結晶 MR 積層膜に適合した反強磁性体として C11<sub>b</sub> Cr<sub>2</sub>Al に関して検討している. C11<sub>b</sub> Cr<sub>2</sub>Al は 600~700 K の高い Néel 温度や, MgO に対して 0.7%程度の低いミスフィットとなる格子定数などが報告されている<sup>3)</sup>. 我々は, これまでに C11<sub>b</sub> Cr<sub>2</sub>Al 膜における組成および製膜温度に対する相構成やエピタキシャル方位関係などに関して報告した. 本研究では, C11<sub>b</sub> Cr<sub>2</sub>Al 膜における Néel 温度および規則度の組成依存性に関して検討した.

**【実験方法】** 試料作製には分子線エピタキシー法を用いた. 基板は MgO(001)とした. Cr-Al 薄膜の設計膜厚および成長温度はそれぞれ 50 nm, 1073 K とした. 薄膜の Cr-Al 組成は製膜レート比によって変化させ, 製膜後波長分散型蛍光 X 線分析を用いて組成を同定した. 作製した試料の Al 組成は, 0~44at.%の範囲であった. 結晶構造評価には X 線回折を用いた. Néel 温度は電気抵抗率の温度依存性によって決定した.

**【実験結果】** Figure 1(a)に Al 組成を 44at.%とした試料の電気抵抗率の温度微分  $d\rho/dT$  の温度依存性を示す. 480 K 以下と 710 K 以上の領域では,  $d\rho/dT$  はほぼ一定であった. その間のおおよそ 653 K で  $d\rho/dT$  は極小値をとった. この極小値は Cr-Al の反強磁性秩序によって生じた擬ギャップが, Néel 温度を超えた際に消失し, キャリア密度が変化したこと起因すると考えられる. すなわち, この  $d\rho/dT$  が極小となる温度が Néel 温度に対応する.

Al 組成に対する Néel 温度の変化を Fig. 1(b)に示す. 図中の黒丸および白丸はそれぞれ本研究で得られた C11<sub>b</sub> Cr-Al 薄膜の Néel 温度およびバルクにおける報告値<sup>3)</sup>に対応する. C11<sub>b</sub> 相の単相領域 (Al 組成 28.6~34.5at.%) では Cr 組成の増加に伴い, Néel 温度増加する傾向および, その範囲外では Néel が概ね一定となる傾向に関して, 報告値と本研究とでは一致した結果が得られたと言える. また, Néel 温度の絶対値に関してもバルクの報告値と概ね合致した結果が得られた. 規則度に関しては特に Cr リッチ側組成では大きく低下する傾向が得られた. これらのことから, C11<sub>b</sub> Cr-Al の規則度は Néel 温度に対して比較的影響を与えないと推測される.

## 参考文献

- 1) K. Yakushiji *et al.*, Appl. Phys. Lett., **115**, 202403 (2019).
- 2) Y. Sakuraba *et al.*, Phys. Rev. B, **82**, 094444 (2010).
- 3) W. Köster and K. Grube, Z. Metallkund., **54**, 393 (1963).

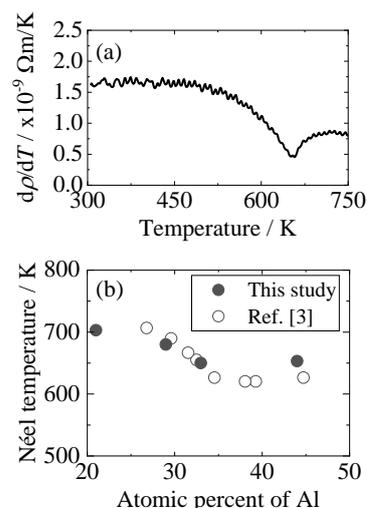


Fig. 1. (a) Cr-Al 薄膜(44at.%-Al)の抵抗率における温度微分  $d\rho/dT$  の温度変化. (b) Al 組成に対する C11<sub>b</sub> Cr-Al の Néel 温度の変化.

# MgO および SrTiO<sub>3</sub>(001)単結晶基板上における Fe-N 薄膜のエピタキシャル成長

今村光佑<sup>1</sup>・前田悠良<sup>1</sup>・大竹充<sup>1</sup>・二本正昭<sup>1</sup>・川井哲郎<sup>1</sup>・桐野文良<sup>2</sup>・稲葉信幸<sup>3</sup>  
(<sup>1</sup>横浜国大, <sup>2</sup>東京藝大, <sup>3</sup>山形大)

Epitaxial Growth of Fe-N Thin Films on MgO and SrTiO<sub>3</sub> Single-Crystal Substrates of (001) Orientation  
Kosuke Imamura<sup>1</sup>, Yura Maeda<sup>1</sup>, Mitsuru Ohtake<sup>1</sup>, Masaaki Futamoto<sup>1</sup>, Tetsuroh Kawai<sup>1</sup>, Fumiyoshi Kirino<sup>2</sup>, Nobuyuki Inaba<sup>3</sup>  
(<sup>1</sup>Yokohama Nat. Univ., <sup>2</sup>Tokyo Univ. Arts, <sup>3</sup>Yamagata Univ.)

**はじめに**  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N はスピン偏極率が大きいことから、スピントロニクス分野での応用が検討されている。これまで、スパッタリングや MBE 法を用いて、形成条件を変えて磁気特性などが調べられている<sup>1-3</sup>。本研究では、反応性スパッタリング法により(001)基板上に Fe-N 薄膜を形成し、基板材料、基板温度、N<sub>2</sub>分圧が構造と磁気特性に及ぼす影響を系統的に調べた。

**実験方法** 超高真空 RF マグネトロンスパッタリング法を用いて、Ar と N<sub>2</sub> の混合ガス雰囲気下（全圧  $7 \times 10^{-1}$  Pa）で、Fe と N を反応させることにより MgO および SrTiO<sub>3</sub>(001)基板上に 40 nm 厚の Fe-N 膜を形成した。このとき、N<sub>2</sub>分圧比を 0~5%、基板温度を RT~600 °C の間で変化させた。評価には、結晶構造の解析に RHEED および XRD、表面形態の観察に AFM、磁気特性の測定に VSM を用いた。

**実験結果** MgO 基板上に形成した膜に対して観察した RHEED パターンを Fig. 1 に示す。N<sub>2</sub>分圧比 0%で基板温度 RT~600 °C では、 $\alpha$ -Fe(001)[110]||MgO(001)[100]の結晶方位関係で  $\alpha$ -Fe 膜が、N<sub>2</sub>分圧比 2.5~5%で基板温度 200~600 °C では、 $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N(001)[100]||MgO(001)[100]の結晶方位関係で  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 膜がエピタキシャル成長したことが分かる。N<sub>2</sub>分圧比 2.5~5%で基板温度 RT では、多結晶のリングパターンが現れている。 $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 単結晶薄膜に対して測定した XRD パターンの例を Fig. 2 に示す。RHEED 解析結果と同様に  $\gamma'$ 相からの回折を確認することができる。また、Fig. 3 に  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N および  $\alpha$ -Fe から構成される膜の磁化曲線を示す。いずれの膜も[100]方向が磁化容易となっていることが分かる。当日は、SrTiO<sub>3</sub> 基板上に形成した Fe-N 膜の結果も報告する。

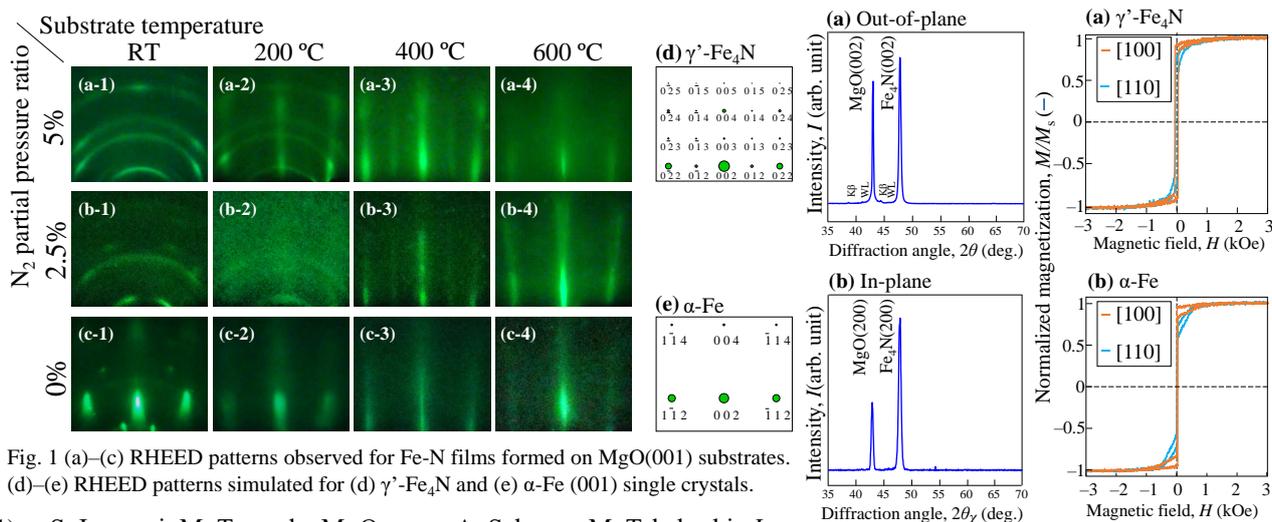


Fig. 1 (a)–(c) RHEED patterns observed for Fe-N films formed on MgO(001) substrates. (d)–(e) RHEED patterns simulated for (d)  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N and (e)  $\alpha$ -Fe (001) single crystals.

- 1) S. Isogami, M. Tsunoda, M. Oogane, A. Sakuma, M. Takahashi, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **38**, 162, (2014).
- 2) K. Ito, S. Higashikozono, F. Takata, T. Gushi, K. Toko, T. Suemasu, *J. Cryst. Growth*, **455**, 66, (2016).
- 3) D. Gölden, E. Hildebrandt, L. Alff, *J. Magn. Magn. Mater.*, **422**, 407, (2017).

Fig. 2 (a) Out-of-plane and (b) in-plane XRD patterns of Fe<sub>4</sub>N film formed on MgO(001) substrate at 400 °C. N<sub>2</sub> partial pressure ratio is 5% (Fig.1 (a-3)).

Fig. 3 Magnetization curves measured for films consisting of (a)  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N (Fig.1 (a-3)) and (b)  $\alpha$ -Fe (Fig.1 (c-3)) single crystals.

# 電解めっき法により作製した Co-Ni 合金膜の構造と磁気特性

明田俊祐<sup>1</sup>・中村優太<sup>1</sup>・近藤輝<sup>1</sup>・大竹充<sup>1</sup>・川井哲郎<sup>1</sup>・二本正昭<sup>1</sup>・桐野文良<sup>2</sup>・稲葉信幸<sup>3</sup>  
(<sup>1</sup>横浜国大, <sup>2</sup>東京藝大, <sup>3</sup>山形大)

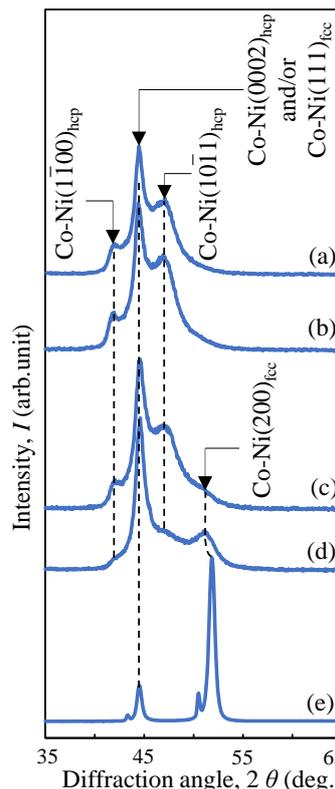
Structural and Magnetic Properties of Co-Ni Alloy Films Prepared by Electroplating

Shunsuke Aketa<sup>1</sup>, Yuta Nakamura<sup>1</sup>, Hikaru Kondo<sup>1</sup>, Mitsuru Ohtake<sup>1</sup>,  
Tetsuroh Kawai<sup>1</sup>, Masaaki Futamoto<sup>1</sup>, Fumiyoshi Kirino<sup>2</sup>, Nobuyuki Inaba<sup>3</sup>  
(<sup>1</sup>Yokohama Nat. Univ., <sup>2</sup>Tokyo Univ. Arts, <sup>3</sup>Yamagata Univ.)

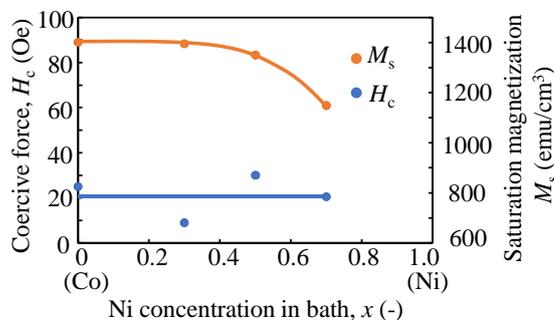
**はじめに** 軟磁性薄膜は、磁気センサや電磁シールドなどの幅広い分野で活用されており、用途によりマイクロメートル・オーダーの膜厚が要求される。厚膜形成には、めっき法が有効である<sup>1,2)</sup>。しかしながら、代表的な磁性元素である Fe は耐薬品性が低く、めっき浴中に含まれる酸や塩基と反応しやすい。そのため、めっき法により Fe 基合金の膜を形成することは容易ではない。一方、同じく磁性元素の Co や Ni は比較的安定性が高く、Co-Ni 合金膜の結晶構造を fcc に制御することができれば、軟磁性特性を得ることができる。本研究では、電解めっき法により Co-Ni 合金膜の形成を試み、構造と磁気特性を調べた。

**実験方法** 膜形成には揺動機構を備えた電気めっき装置を使用した。陽極には純度 99.98% の Ni 板を使用し、陰極には銅基板を使用した。また、浴温度を 50 °C、pH を 2.2、陰極電流密度を 0.95 A/cm<sup>2</sup> とした。浴構成試薬には、Co、Ni イオンの供給源としてそれぞれ硫酸コバルト (CoSO<sub>4</sub>・7H<sub>2</sub>O)、硫酸ニッケル (NiSO<sub>4</sub>・6H<sub>2</sub>O)、pH 緩衝剤としてクエン酸 (C<sub>6</sub>H<sub>8</sub>O<sub>7</sub>・H<sub>2</sub>O)、陽極溶解促進剤として塩化ナトリウム (NaCl)、応力緩和剤としてサッカリンナトリウム (C<sub>7</sub>H<sub>4</sub>NNaO<sub>3</sub>S・2H<sub>2</sub>O) を用いた。Co と Ni イオンの合計の濃度を 0.20 mol/L とし、これらのイオンの比率を変えることにより膜組成を変化させた。構造評価には XRD を、磁気特性評価には VSM を使用した。

**実験結果** Fig. 1 にめっき浴の Co と Ni イオンの濃度比  $x$  を変化させた際の膜の XRD パターンを示す。Co リッチ組成の膜では、hcp(1100), (0002), (1011) 反射が現れていることから、hcp 相が形成されており、Ni リッチ組成では、fcc(111), (200) 反射を確認することができることから、fcc 相が得られていることがわかる。Fig. 2 に  $x$  と  $M_s$ ,  $H_c$  の関係を示す。 $x=0$  では、 $M_s=1400$  emu/cm<sup>3</sup> となり、バルクの Co の値と近い値になった。また  $x=0.5$  付近までは  $M_s$  が緩やかに減少し、 $x=0.5$  を超えると大きく減少している。このことは、浴組成と膜組成が異なっていることを示唆している。 $H_c$  は Ni イオンの割合との相関的な関係は顕著には現れなかった。



**Fig. 1** XRD patterns of Co-Ni thick films grown in Plating bath; (a)  $x=0$  (b)  $x=0.3$ , (c)  $x=0.5$ , (d)  $x=0.7$ , (e)  $x=1.0$



**Fig. 2** Coercive force,  $H_c$  and Saturation magnetization,  $M_s$  vs Ni concentration in bath,  $x$

- 1) T. Yanai, K. Koda, J. Kaji, H. Aramaki, K. Eguchi, K. Takashima, and H. Fukunaga: *AIP Adv.*, **8**, 056127 (2018).
- 2) A. Nakamura, M. Takai, K. Hayashi, and T. Osaka: *J. Surf. Finish. Soc. Jpn.*, **47**, 934 (1996).

# Fe-Ga-C 薄膜における 構造と静的・動的磁気特性の C 組成依存

村松省吾、宮崎孝道、遠藤恭

(東北大学)

Dependence of structure and static and dynamic magnetic properties of Fe-Ga-C thin films on C composition

Shogo Muramatsu, Takamichi Miyazaki, Yasushi Endo

(Tohoku Univ.)

## はじめに

巨大な飽和磁歪を有する Fe-Ga 合金薄膜は高速かつ小型な高周波磁気デバイスへの応用が期待されている。我々はこれまでに Fe-Ga 多結晶薄膜における静的・動的磁気特性の Ga 組成による変化を検討し、それらの保磁力とダンピング定数が高くなることを報告した<sup>(1)</sup>。この結果は Fe-Ga 多結晶薄膜を高周波磁気デバイスへ応用するためには、それらの磁気特性を改善する必要があることを示している。そこで本研究では、Fe-Ga 膜の軟磁性化および高周波磁気特性の改善を目指して、C を添加した Fe-Ga-C 薄膜を作製し、C 組成の異なる Fe-Ga-C 薄膜の構造と静的・動的磁気特性について検討・議論する。

## 実験方法

50 nm 厚の  $(\text{Fe}_{0.75}\text{Ga}_{0.25})_{100-x}\text{C}_x$  ( $x=3.7-15.5$ ) をガラス基板上に DC マグネトロンスパッタリングを用いて製膜した。作製した試料の組成に関しては飽和磁化値から算定した。表面形状については AFM を、結晶構造については XRD および TEM を用いて評価した。また、静的・動的磁気特性については VSM、光てこ法を用いた高感度薄膜磁歪測定装置およびブロードバンド FMR(B-FMR)測定法を用いて評価した。

## 実験結果

Fe-Ga-C 薄膜における容易軸方向の保磁力 ( $H_c$ ) およびダンピング定数 ( $\alpha$ ) の C 組成依存性を図 1 示す。 $H_c$  に関しては C 組成 7.5 at.% を除いて、C 組成の増加にともない減少する傾向であった。これらの値は先行研究で見られた Fe-Ga-C 膜 (10–30 Oe)<sup>(2)</sup> に比べて少し高い値となった。この違いは製膜方法の違いに由来すると考えられる。また、これらの値は C 組成が 8 at.% 以上の領域において、Fe-Ga 多結晶膜 (50 Oe)<sup>(1)</sup> に比べて低い値となった。 $\alpha$  に関しては C 組成の増加にともない 0.02 から 0.01 まで減少したのち、8 at.% 以上の C 組成領域では 0.01 程度でほとんど一定となった。これらの値は、C 組成の高い領域において Fe-Ga 多結晶膜 (0.04)<sup>(3)</sup> と比べて 4 分の 1 程度と低く、高周波磁気特性を著しく改善できたことを提案している。8 at.% 以上の C 組成領域では他の軟磁性材料と同等の値となることがわかった。

以上の結果は Fe-Ga 合金への C の添加により Fe-Ga 多結晶膜の軟磁気特性および高周波磁気特性を改善できることを表している。

**謝辞** 本研究の一部は、JSPS 科研費 JP17H03226 の助成と、東北大学国際集積エレクトロニクス開発センター (CIES)、東北大学先端スピントロニクス研究開発センター (CSIS)、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) および情報ストレージ研究推進機構 (ASRC) の支援のもとで行われました。

**参考文献** (1) 川辺泰之ら, T. Magn. Soc. Jpn, (Special Issues), **3**, 34-38 (2019). (2) Xianfen Liang et al, IEEE MAGNETIC Lett. **10**, 5500705 (2019). (3) Daniel B. Gopman et al., IEEE TRANSACTIONS, VOL. 53, NO.11, (2017).

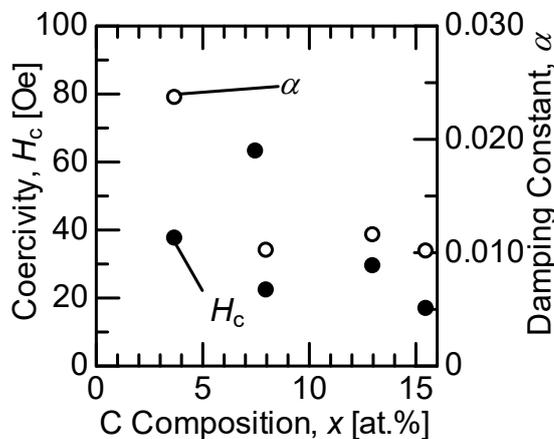


Fig.1 Dependence of coercivity and damping constant on the C composition for the Fe-Ga-C thin films

## Co 組成の異なる Co-Fe-B 薄膜における 静的・動的磁気特性に関する研究

田中治憲, 宮崎孝道, 栢修一郎\*, 遠藤恭 (東北大学, \*東北学院大学)

Study on Static and Dynamic Magnetic Properties of Co-Fe-B Thin Film with Various Co Compositions

H. Tanaka, T. Miyazaki, S. Hashi\*, Y. Endo (Tohoku Univ., \*Tohoku Gakuin Univ.)

### はじめに

STT-MRAM, スピンロジック素子, スピン MEMS センサなどの新規スピントロニクスデバイスの創製に向けて, これらのデバイスを構成する Co-Fe-B 薄膜の静的・動的磁気特性に関する研究が盛んに行われている. なかでも, 飽和磁気ひずみ ( $\lambda_s$ ) とダンピング定数 ( $\alpha$ ) は, デバイス創製に直結する主要な磁気パラメータの一つであり,  $\lambda_s$  と  $\alpha$  を詳細に理解する必要がある. 従来の研究では, Co-Fe-B 薄膜における  $\lambda_s$  と  $\alpha$  の B 組成による変化<sup>1)</sup>などについて報告されている. 一方で, これらのパラメータの相関の有無について報告された例はない. 本研究では, Co 組成の異なる Co-Fe-B 薄膜における静的・動的磁気特性について詳細に検討を行い,  $\lambda_s$  と  $\alpha$  の性質および相関について議論する.

### 実験方法

5, 10, 30 nm 厚の  $\text{Co}_x\text{Fe}_{80-x}\text{B}_{20}$  (Co-Fe-B) 薄膜を, 145  $\mu\text{m}$  のガラス基板上に RF スパッタ装置を用いて作製した. 作製した Co-Fe-B 薄膜の Co 組成 ( $x$ ) は, 0 ~ 80 at.% と変化させた. 作製した薄膜の構造は, XRD および AFM を用いて評価した. また, 静的・動的磁気特性は VSM, 光てこ法による高感度薄膜磁歪測定装置および VNA と伝送線路からなるブロードバンド FMR 測定法を用いて評価した.

### 結果および考察

図 1 は膜厚の異なる Co-Fe-B 薄膜における飽和磁気ひずみ ( $\lambda_s$ ) の Co 組成依存性である. いずれの膜厚においても,  $\lambda_s$  は Co 組成の増加にともないいったん増加しその後単調に減少した. これらの結果は, バルクにおける  $\lambda_s$  の Co 組成に対する変化<sup>2)</sup>と類似している. また, いずれの膜厚および Co 組成においても,  $\lambda_s$  値はバルク値に比べておおむね高くなった. この原因は, 製膜時に膜と基板の間に応力が誘起されたことによるものと考えられる. 面内有効ダンピング定数 ( $\alpha_{||}$ ) は, いずれの膜厚においても, Co 組成 ( $x$ ) の増加にともない, Co 組成リッチ側で増加する傾向が見られた (図 2). これらの傾向は, 異方性分散等の磁気的不均一性に由来するものと考えられる. また,  $\lambda_s$  と  $\alpha_{||}$  の相関に関しては, 膜厚により異なっていて, その原因は現在検討中である. 以上の結果より,  $\lambda_s$  と  $\alpha_{||}$  は膜厚によらず Co 組成に大きく依存することがわかった.

### 謝辞

本研究の一部は, 科研費基盤研究 (B) (No. 17H03226) の補助と, 東北大学 CSRN, 東北大学 CSIS, 東北大学 CIES および ASRC の支援のもので行われた.

**参考文献** 1) C. L. Platt et al., IEEE Trans. Magn. 37, 2302 (2001)., 2) R. C. O'Handley, PRB 18, 930 (1978).

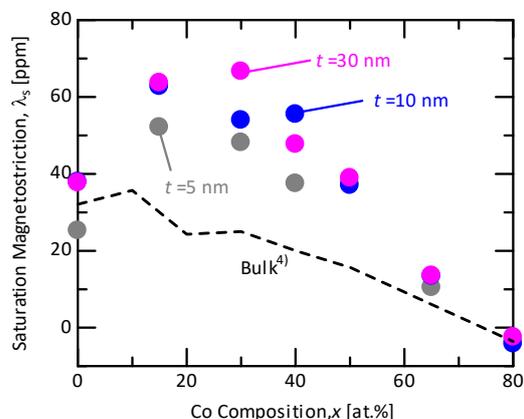


FIG. 1. Relationship between  $\lambda_s$  vs  $x$  for various thick  $\text{Co}_x\text{Fe}_{80-x}\text{B}_{20}$  thin films.

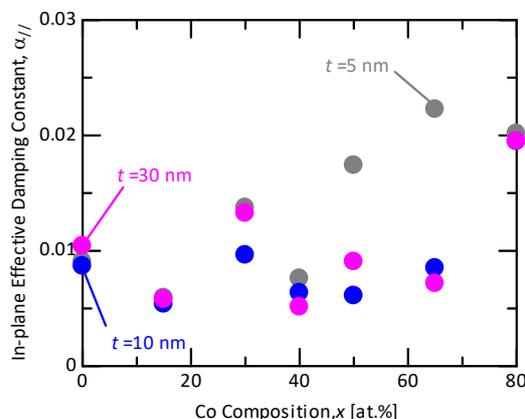


FIG. 2. Change in  $\alpha_{||}$  of various thick  $\text{Co}_x\text{Fe}_{80-x}\text{B}_{20}$  thin films with Co compositions ( $x$ ).