CoFe₂O₄-フッ化物系ナノグラニュ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 CoFe₂O₄-fluoride nanogranular films Nobukiyo Kobayashi, Tadayoshi Iwasa, Kenji Iked, Ken-Ichi Arai (Research Institute for Electromagnetic Material, DENJIKEN)

<u>はじめに</u>

我々は、強磁性金属から成るナノ粒子が、フッ化物などの透光性セラミック中に分散した微細構造を有す るナノグラニュラー膜において、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が得 られることを明らかにした⁽¹⁾。ナノグラニュラー膜は、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、ナノグラニュラー膜は、膜中に磁性金属から成るグラニュールを含むために、透過光が膜中の金 属に吸収され光透過率が減少する。本研究では、光透過率の高いナノグラニュラー膜を得ることを目的とし、 グラニュールが酸化物磁性体である CoFe₂O₄フェライトから成るナノグラニュールの作製を試み、その光透 過特性とファラデー効果を検討した。

<u>実験方法</u>

薄膜試料は、RFスパッタ装置を用いタンデム法によって作製した。 2つのターゲットホルダーの一方に、FeCo合金ターゲット(76 mm φ)、 他方に CaF₂もしくは BaF₂(76 mm φ)のフッ化物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~ 700℃に設定し、成膜後には希薄な酸素雰囲気にて 400~800℃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(XRD)を用いた。

<u>結果</u>

Fig.1 には、700℃に加熱した基板上に作製した Fe44Co32Ba13F11 膜に ついて、成膜状態とガス圧 30mTorr の Ar+1%O2 ガス中で 600℃に加熱 後の、光透過率の波長依存性を示す。成膜状態ではほとんど光を通さ ないが、希薄な酸素中の熱処理によって、透過率は大幅に大きくなっ ていることが分かる。Fig.2 には、Fig.1 に示した熱処理後のファラデ ーループを示す。ループは760、1550nm で反転しており、膜はナノグ ラニュラー構造であることが示唆される。また、XRD の結果から、 熱処理後では膜中に CoFe2O4 ナノ粒子が存在することが分かった。



Fig.1 Wavelength dependence of transmittance in $Fe_{44}Co_{32}Ba_{13}F_{11}$ film as deposited state and after annealing in $Ar + 1 \%O_2$.



Fig.2 Faraday loops of Fe₄₄Co₃₂Ba₁₃F₁₁ film after annealing in Ar + 1 %O₂.

謝辞

本研究の一部は、JSPS 科研費 JP20H02468、JP20K03843、JST-CREST JPMJCR19T1 の助成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)

等方性 Co-MgF2 グラニュラー膜の作製と磁気光学特性

宮本光教*、久保利哉*、須江聡*,**、曽根原誠**、佐藤敏郎** (*シチズンファインデバイス、**信州大学)

Fabrication of isotropic Co-MgF2 granular films and their magneto-optical properties.

M. Miyamoto, T. Kubo, S. Sue, M. Sonehara, T. Sato

(*Citizen Finedevice Co.,Ltd., Shinshu University)

<u>はじめに</u>

近年,省エネルギーや脱炭素社会の構築が望まれ,電子機器の高効率化が求められている。特にパワエレ 機器はSiC/GaNパワー半導体の普及により高周波化・小型化が進み、機器内部に流れる高周波電流を正確且 つ*in-situ*計測したいという要求が高まっている。著者らが提案するファラデー効果を利用した光プローブ電 流センサ¹⁾は、これらの要求を満たすことが可能である。本センサの磁界感応素子に用いるグラニュラー膜 は磁気共鳴周波数が数百 MHz~GHz 帯にあり、広帯域で動作が期待できる材料²⁾であるが、外部磁界に対す る感度は十分ではない。本実験では、外部磁界に対する感度向上を目指し、膜面内および膜垂直方向に対し て三次元的に等方性のグラニュラー膜を作製し、その磁気光学特性を測定し性能評価した。

<u>実験方法</u>

共蒸着法により Co と MgF₂を別々の蒸発源から 蒸発させ、ガラス基板 (SCHOTT 製: D263Teco) 上にグラニュラー膜を成膜した。成膜中のガラス 基板温度は 450 ℃とし、Co と MgF₂の体積比率を Co: MgF₂ = 1:2、1:3、1:4 に制御し、およそ 1~2 μ m の厚さになるように成膜した。作製した試料は TEM 像から Co ナノ粒子の分散状態観察を行い、 膜面内および膜垂直方向の磁化曲線から異方性 を評価した。また、波長 1550 nm における透過率 とファラデー効果の測定値から、ファラデー素子 としての性能指数を求めた。

実験結果

これまでの研究で、共蒸着法で作製される Co-MgF2グラニュラー膜は、Co濃度が高いほど、 高温で成膜するほど Coナノ粒子径が増大し、超



Fig. 1. Magnetization curves and faraday-loop of $Co-MgF_2$ granular film deposited at 450 °C, volume ratio of 1:4.

常磁性から強磁性的な性質に変化することが分かっている。また、粒子間距離が近いほどナノ粒子間の磁気 双極子相互作用が強く、ファラデー効果が増加し、透過率が低下する傾向がある。相互作用が強く働く場合、 得られる膜は反磁界の影響で形状磁気異方性を有し、膜面内方向が磁化容易軸、膜垂直方向が磁化困難軸に なる。Fig.1に、体積比 Co: MgF₂=1:4 で作製した試料の磁化曲線とファラデーループを示す。この結果か ら膜面内および膜垂直方向に対して等方性であることを確認した。これは、Co ナノ粒子同士の粒子間距離が 十分に離れたことで、Co ナノ粒子が磁気的に孤立したことが要因と考えられる。この影響で、透過率と低磁 界におけるファラデー効果が向上し、ファラデー素子としての性能指数が向上することを確認した。

参考文献

- M. Miyamoto, T. Kubo, Y. Fujishiro, K. Shiota, M. Sonehara and T. Sato: *IEEE Trans. Magn.*, 54, 11, #2501205, 2018.
- 2) Y. Shimada: IEEJ Journal, 4, 2, pp.93-100, 2009.

蛋白質 PfV 結晶中に合成した超常磁性 Co-Pt ナノ粒子の交流帯磁率

田形翔¹,神田大輔¹,小林直登¹,市川 聡²,岸田憲明¹,

東浦彰史³,中谷亮一^{1,4,5},中川敦史⁶,白土 優^{1,4,5}

(1大阪大学大学院工学研究科,2大阪大学超高圧電子顕微鏡センター,3広島大学医学系研究科

4 大阪大学 CSRN, 5 大阪大学先導的学際研究機構, 6 大阪大学蛋白質研究所)

AC magnetic susceptibility of superparamagnetic Co-Pt nanoparticles synthesized in *Pyrococcus furiosus* virus-like particle crystal

Kakeru Tagata¹, Daisuke Kanda¹, Naoto Kobayashi¹, Satoshi Ichikawa², Noriaki Kishida¹,

Akifumi Higashiura³, Ryoichi Nakatani^{1,4,5}, Atsushi Nakagawa⁶, and Yu Shiratsuchi^{1,4,5}

(1 Grad. Sch. Eng., Osaka Univ. 2 UHVEM, Osaka Univ. 3 Grad. Sch. Med., Hiroshima Univ. 4 CSRN, Osaka Univ. 5 OTRI, Osaka Univ., 6. Institute for Protein Research, Osaka Univ.)

はじめに 磁性ナノ粒子を 3 次元に規則配列させた構造体は,その粒子間の距離やサイズを制御することで強磁性共鳴周波数を制御することが期待されている.我々は,ナノ構造体のテンプレートとして蛋 白質 *Pyrococcus furiosus* virus-like particle(PfV)の結晶を用いた研究を進めている.本研究では,PfV 結 晶中に合成した Co-Pt 超常磁性ナノ粒子の交流帯磁率測定を基に,粒子間相互作用を検討した結果について報告する.

実験方法 PfV および PfV 結晶の作製方法, PfV 結晶への磁性ナノ粒子の合成方法については, 我々の既報 [1]を参照されたい. PfV 結晶中に合成した Co-Pt ナノ粒子の構造評価には透過型電子顕微鏡(TEM)を用いた. PfV 結晶に合成させた Co-Pt ナノ粒子に対して交流帯磁率測定を行った. 交流磁場の測定周波数は 100 から 10000 Hz へと変化させた. 測定温度は 10~300 K とした. 交流帯磁率測定には, PPMS を用いた.

実験結果 合成濃度を 33.3 mM とした場合,ナノ粒子が凝集 した.これに対して,合成濃度を 5.55 mM まで低下させると, 孤立したナノ粒子が形成された.図1に,合成濃度を 5.55 mM として作製した Co-Pt ナノ粒子の交流帯磁率の温度依存性を示 す.交流帯磁率は温度変化に対してピークを示した.ピーク温度 は,交流磁場の周波数に対して指数関数的に上昇し,緩和時間 $\tau = \tau_0 \exp(K_u V/k_B T)$ で表される磁気緩和機構で記述できること が分かる.また,ナノ粒子間の磁気的相互作用の評価指標として、 周波数 50 Hz における Δ T/ TΔ(log f) を用いたところ,合成濃 度により Δ T/ TΔ(log f)が小さくなり,粒子間の相互作用の上昇



図1 合成濃度を11.1 mM とした Co-Pt ナノ粒子の交流帯磁率の温度依存性.

が示唆される. TEM による構造評価結果と比較すると、合成濃度を 33.3 mM としたナノ粒子は、凝集 により単一粒子のように振る舞うため粒子間相互作用が小さく、合成濃度を 5.55 mM とした場合には孤 立粒子が形成されるため、粒子間相互作用が上昇したものと考えられる.

[1] M. Taniguchi, K. Tagata, Y. Shiratsuchi et al., J. Phys. Chem. Solid, accepted.

数珠状 Fe-B アモルファス微粒子の高周波磁気特性

村田啓太, 宮崎孝道, 青木英恵, 増本博, 遠藤恭(東北大) Study on High-frequency Magnetic Properties of Amorphous Fe-B Chain Particles K. Murata, T. Miyazaki, H. Aoki, H. Masumoto, Y. Endo (Tohoku Univ.)

はじめに

5G およびポスト 5G といった携帯端末の高周波化にともない,不要輻射によるデバイス間・内での 電磁干渉が問題となっている.この問題を解決するために,新たな電磁ノイズ抑制シート(NSS)の 創製に向けた磁性材料の研究開発が盛んに行われている.我々の研究グループでは,分散した球形 状のアモルファス Fe-B 微粒子に着目し,その高周波磁気特性を検討してきた.その結果,1-3 GHz の周波数帯において強磁性共鳴が観測され,磁気損失が 0.5-10 GHz と幅広い周波数帯に及ぶもの の,磁気損失が反磁界の影響により低いことが課題であることを報告した¹⁾.本研究では,この課 題を解決して磁気損失の更なる向上を目指して,球形微粒子を数珠状に配列させたアモルファス Fe-B 微粒子を合成し,それらの高周波磁気特性について検討した.

実験方法

微粒子の合成には、磁界中で Fe 系水溶液(前駆体)中に B 系水溶液(還元剤)を滴下しながら攪 拌させて微粒子を析出させる水溶液還元法を用いた.なお、微粒子合成時の磁界印加時間は 0-90 min の範囲で変化させた.また、磁気特性評価用として、合成した微粒子を樹脂に分散させた状態 で、3 kOe の外部磁界中で一方向に配向させたコンポジット材を合成した.

合成した試料の構造評価には SEM と TEM を用いた. SEM 像からわかるように,合成した微粒 子の形状は主に球状微粒子がつながって数珠状となった.磁気特性評価用に合成したコンポジット 材に関しては,外部磁界印加方向に配向した.また,合成した試料の磁気特性評価には,VSM,短 絡型マイクロストリップ線路と VNA を組み合わせた複素透磁率測定法を用いた.

結果および考察

数珠状 Fe-B 微粒子コンポジット材と球形 Fe-B 微粒子コンポ ジット材における複素透磁率の周波数特性を FIG.1 に示す.透 磁率の実部に関しては、微粒子合成時の磁界印加時間に依存せ ず、いずれも増加した.これらは磁界配向方向での反磁界の減 少によるものである.また、得られた透磁率の実部の値とコン ポジットの充填率を Bruggeman による式²⁾に代入して固有透磁 率の値を算出すると、数珠状の場合には およそ 33 となり、球 形の場合に比べて 3.5 倍程度高くなった.また、透磁率の虚部 に関しては、1-3 GHz において強磁性共鳴に由来するピーク が観測され、ピーク値は磁界配向させると反磁界の減少によ り増加した.さらに、ピーク周波数に関しては、数珠状微粒子 の数の増加にともない低下する傾向を示した.充填率の増加, 鎖状粒子を均一に形成・配向させることにより、更なる透磁率 の増加が可能であるものと考えられる.以上の結果から、数珠



FIG. 1. Frequency dependence of complex permeability for amorphous Fe-B particle composites. Solid lines and dotted lines represent the results of Fe-B chain particles and those of Fe-B spherical particles, respectively.

状 Fe-B アモルファス微粒子は新規 NSS を構成する材料候補の一つとして期待できる.

謝辞

本研究の一部は, JSPS 科研費 JP19K21952 の助成, 文科省革新的パワーエレクトロニクス創出基盤 技術研究開発事業 JPJ009777, 東北大学 CIES, 東北大学 CSIS の支援のもとで行われました.

参考文献 1) KM et al., T. Magn. Soc. Jpn, (Special Issues), 5, 1 (2021)., 2) D.A.G. Bruggeman, Annalen der Physik., 416, 636 (1935).

微結晶化した Fe-Ga-C 膜における磁気特性の膜厚依存性

村松省吾, 宮崎孝道, 遠藤恭(東北大)

Thickness Dependence of High-frequency Magnetic Properties for Fe-Ga-C films with Fine Crystalline Shogo Muramatsu, Takamichi Miyazaki, Yasushi Endo (Tohoku Univ.)

はじめに 新規高周波磁気デバイスへの応用を目指して,巨大な飽和磁歪を有する Fe-Ga 合金薄膜の研究開 発が行われている.これまでに,我々のグループでは,軽元素を添加した Fe-Ga 多結晶薄膜における構造と 磁気特性の軽元素組成による変化について検討してきた.その結果,軽元素を10 at.%以上 Fe-Ga 多結晶膜に 添加すると,それらの結晶構造に関してはアモルファスもしくは微細化し,また磁気特性に関しては保磁力 とダンピング定数が低くなることを報告した¹⁾.その一方で,10 at.%以上の軽元素添加により Fe-Ga 多結晶 膜における磁気特性の膜厚による変化については十分に検討されていない.本研究では,軽元素として C を 選択し,微結晶化する Fe-Ga (Fe-Ga-C)薄膜における磁気特性の膜厚依存性について検討・議論する.

実験方法 試料作製には DC マグネトロンスパッタリングを用いた.作製した試料の構成はガラス基板上に 製膜した 5-100 nm 厚の(Fe_{0.75}Ga_{0.25})_{84.5}C_{15.5} (Fe-Ga-C) 薄膜である.なお,試料の組成に関しては, EPMA と VSM 測定より決定した飽和磁化値とから算出した.

作製した試料の構造に関しては, XRD, TEM, AFM を用いて評価した. なお, XRD パターンおよび TEM 観察の結果から, 作製した試料は膜厚に関係なく, いずれも微結晶状態となった. また, それらの磁気特性 に関しては, VSM, 高感度薄膜磁歪測定法(光てこ法), ブロードバンド強磁性共鳴(B-FMR)測定法を用 いて評価した.

結果および考察 FIG. 1 は Fe-Ga-C 薄膜における容易軸方向の保磁力(H_c), 飽和磁歪(λ_c)と有効面内ダンピン グ定数(α_{eff})の膜厚依存性である. H_c は膜厚の増加にとともに緩やかに増加した. また, これらの値はおよそ 5~20 Oe 程度となり, Fe-Ga 多結晶膜(50 Oe)²⁾の場合に比べて十分に低くなった. λ_c 値は膜厚の増加とともに 15 から 65 ppm まで増加し, 30 nm 以上の膜厚領域ではおよそ 55 ppm 程度とほぼ一定となった. 20 nm 以上 の膜厚領域における λ_c 値は Fe-Ga 多結晶膜(55 ppm)²⁾とほぼ同程度であった. α_{eff} は膜厚の増加とともに 0.02 から 0.006 へ減少し, 30 nm 以上の膜厚領域ではおよそ 0.01 で一定となった. この挙動は λ_c の膜厚による変 化と類似している. また, いずれの α_{eff} 値も Fe-Ga 多結晶膜(0.04)²⁾と比べて低く, 異方性分散等の磁気的不均 一性が抑制されたことによるものと考えられる. これらの結果から, 微結晶化した Fe-Ga-C 多結晶膜では膜 厚に関係なく磁気特性を向上させることが可能であることを示唆している.

謝辞本研究の一部は、東北大学 CIES、東北大学 CSIS および ASRC の支援のもとで行われました.

参考文献 1) 遠藤恭, マグネティックス研究会資料, MAG-20-111 (2020)., 2) 川辺泰之ら, T. Magn. Soc. Jpn, (Special Issues), 3, 34-38 (2019).



FIG. 1. Change in coercivity (H_c), saturation magnetostricion (λ_s), and effective damping constant (α_{eff}) of Fe-Ga-C film with film thickness.

スキルミオンに対する移動エントロピーとその緩和時間の評価

森弘樹¹、後藤穣^{1,2}、石川諒³、三木颯馬¹、野村光^{1,2}、鈴木義茂^{1,2} (大阪大学¹、大阪大学 CSRN²、アルバック協働研³) Evaluation of transfer entropy and its relaxation time for skyrmions H.Mori¹, M.Goto^{1,2}, R.Ishikawa³, S.Miki¹, H.Nomura^{1,2}, Y.Suzuki^{1,2} (Osaka Univ.¹, CSRN-Osaka², ULVAC, Inc.³)

<u>はじめに</u>

近年、ブラウニアン計算機や確率 bit (p-bit)デバイスのようにランダム性や確率的な特性を利用した計算機の研究が進められている。これらの系では情報が伝搬する様子が必ずしも明瞭ではないため、それらの定量評価が重要である。そこで、我々は移動エントロピー¹⁾に着目した。移動エントロピーは2つの確率的な時系列データ間の情報の伝搬を表す。さらに、その緩和時間から情報が保持される時間を評価できる。このような確率的なふるまいを固体中かつ室温で観察できる系の一つにスキルミオンがある。スキルミオンはトポロジカルに安定な粒子状のスピン構造である。さらに、スキルミオン同士が持つ斥力相互作用を利用し、多数のスキルミオンを用いた演算や情報伝達の実現が期待されている。本研究では、正方形の箱に閉じ込めた2つのスキルミオンのブラウン運動の様子から移動エントロピーとその緩和時間を評価した。

<u>解析方法</u>

サンプル構造は SiO₂ 基板|Ta (5.0 nm)|Co₁₆Fe₆₄B₂₀ (1.26 nm)|Ta (0.23 nm)|MgO (1.5 nm)|SiO₂ (3.0 nm)である。さらに正方形のパターンで SiO₂ (0.5 nm)を追加成膜すると、パターンの形にスキルミオンが閉じ込めら れる²⁾。Fig.1 は磁気光学カー効果顕微鏡にて観察した、箱に閉じ込め られた 2 つのスキルミオンである。黄線はブラウン運動するスキルミ オン A の位置の軌跡を表す。この軌跡を 2 値の時系列データとして用 い、得られた確率分布から移動エントロピーを評価した。

解析結果

Fig.2 は時間経過に対する移動エントロピーを片対数表示した図で

ある。桃点(青点)は、n - jステップ目のスキル ミオンA(B)からnステップ目のスキルミオンB に流れた移動エントロピーを表す。 a_{n-j} (b_{n-j}) はスキルミオンA(B)の位置の確率変数を、n,jは離散時間を表す。茶点は相関の無い2つの乱 数列から求めた移動エントロピーを表し、雑音 等価信号に相当する。 $b_{n-j} \rightarrow b_n$ の移動エント ロピーは時間経過と共に減衰し、一方、 $a_{n-j} \rightarrow$ b_n の移動エントロピーはピークを持つ。これは 情報伝達にかかる時間遅れを表現している。ま た、各結果に対する移動エントロピーの緩和時 間は1秒程度のオーダーであり、スキルミオン が情報を保持できる時間がわかった。本研究は JSPS 科研費 JP20H05666 と JST、CREST、 JPMJCR20C1の助成を受けた物である。

参考文献

1) T. Schreiber, Phys. Rev. Lett. 85, 461 (2000)

Fig.1, The moving trajectory

of skyrmion A

Skyrmion



Fig.2, The transfer entropy between skyrmion A and skyrmion B

2) Y. Jibiki et al., Appl. Phys. Lett. 117, 082402 (2020)

傾斜電界によるスキルミオンの分布と運動の制御

石川諒、後藤穣*、野村光*、鈴木義茂* (アルバック協働研、*阪大基礎工、*阪大 CSRN) Control of distribution and motion of skyrmions by sloped electric field R. Ishikawa, *M. Goto, *H. Nomura, *Y. Suzuki (ULVAC Inc., *Osaka Univ., *CSRN-Osaka)

<u>研究背景</u>

スキルミオンはトポロジカルに保護された磁極粒子であり、固体中に安定に存在する^{1,2)}。スキルミオンは 次世代の情報担体としての応用が期待されており、スキルミオンを利用したレーストラックメモリ³⁾やロジ ック⁴⁾が提案されている。これらの応用とは別に、スキルミオンが固体中でブラウン運動する性質を利用し た確率的計算や省エネルギー計算といった応用も提案されている。我々のグループでは磁性連続膜上でスキ ルミオンを任意の位置に閉じ込める回路⁵⁾やブラウン運動するスキルミオン間の反発的な相互作用を利用し たセルラーオートマトン型素子⁶⁾などをこれまでに開発してきた。ブラウン運動するスキルミオンを利用し た計算機において、情報の入力部分にはスキルミオンの運動を外部から制御する方法が必要である。本研究 では、スキルミオンが生じる接合上に配置した電極に電流を流し、電極内の電圧降下により傾斜した電界を 生じさせることでスキルミオンを外部から制御する手法を実験的に検討した。

実験方法

スパッタリング法により Ta/CoFeB/Ta/MgO/SiO₂ 接合を作製した。この接合に追加で SiO₂ を 50 nm 成膜し、 その上に電極を形成した。Fig.1 に示すように電極は 100 nm の厚い Ru 層と 2 nm の薄い Ru 層から成る。面 内方向に電流を流すとき、二つの電極間には電位差が生じている。この電位差により、傾斜した電界が形成 される⁷⁾。2 つの電極間に電圧をかけながら 2 nm の Ru 電極下の磁気構造を磁気光学カー効果(MOKE)顕微鏡 により観察することで、傾斜電界下における磁壁構造およびスキルミオンの分布と運動について調べた。

<u>実験結果</u>

Fig. 2 はスキルミオンの運動を MOKE 顕微鏡により観察した像である。Fig. 2(a)は電圧をかける前の像であ り、スキルミオンは等方的に分布している。Fig. 2(b)、(c)および(d)はそれぞれ、シグナル(s)側に+5.5 V の電 圧をかけてから 0.5 秒、1.5 秒および 5.0 秒後の像である。スキルミオンの分布は徐々に右側に偏っていき、 5.0 秒後には観察視野内にスキルミオンはほぼ存在しなくなっている。これは、傾斜した電圧により垂直磁気 異方性の傾斜が形成されることで、スキルミオンが安定して存在する領域が変化すると同時に、垂直磁気異 方性の傾斜に沿ってスキルミオンがブラウン運動により移動しているためであると考えられる。電圧の極性 を切り替える実験等を含めて講演当日は報告する。

本研究は、JSPS 科研費 20H05666、及び JST、CREST、JPMJCR20C1 の助成を受けたものである。

参考文献

- 1) T. H. R. Skyrme, Nucl. Phys. **31**, 556 (1962)
- 3) A. Fert, *et al.*, Nat. Nanotechnol. **8**(3), 152 (2013).
- 5) Y. Jibiki, et al., Appl. Phys. Lett. 117, 082402 (2020)
- 7) H. Kakizakai et al., Jpn. J. Appl. Phys. 56 050305 (2017)



Fig. 1(a) Cross sectional view and (b) top view of sample configuration (c) Optical microscope image of the sample

- 2) U. K. Rößler, et al., Nature 442, 797 (2006)
- 4) X. Zhang, et al., Sci. Rep. 5, 9400 (2015).
- 6) R. Ishikawa, et al., Appl. Phys. Lett. 119, 072402 (2021)



Fig. 2 MOKE microscope images of the sample with applying (a)0V or (b)–(d) +5.5 V

(b), (c) and (d) show MOKE images 0.5 s, 1.5 s and 5.0 s after applying +5.5 V respectively.

Observed region is indicated by dashed square in Fig. 1(c).

磁気スキルミオンのブラウン運動を用いた 同期回路素子のシミュレーション

 三木颯馬、石川諒*、田村英一、野村光、後藤穣、鈴木義茂 (阪大基礎工、阪大 CSRN、*アルバック協働研)
Micromagnetic simulation of the conservative-join circuit operated by the Brownian motion of skyrmions
S. Miki, R. Ishikawa*, E. Tamura, H. Nomura, M. Goto, Y. Suzuki (Osaka Univ., CSRN-Osaka, *ULVAC, Inc.)

はじめに

磁性薄膜中に発現する磁気スキルミオンはトポロジカルに安定なスピン構造で粒子としてふるまい、電流 やエネルギー勾配、熱揺動などで駆動できることから磁気メモリや確率計算機などへの応用が期待されてい る。スキルミオンは固体中でありながら液体中同様のブラウン運動をすることから、我々はスキルミオンを トークンとしたブラウニアン計算機¹⁾への応用を目指している。このブラウニアン計算に必要な3つの回路 素子のうち Hub と Ratchet の2つに対しては既にその動作を確認した^{2,3)}。しかしながら2つの同時入力に対 し2つの出力を行う同期回路素子の Conservative-join (C-join)は実証されていない。本研究ではスキルミオン を用いたブラウニアン計算機の実現に向けて、マイクロマグネティックシミュレーションによる C-join 回路 の動作確認を目的とする。

シミュレーション方法

シミュレーションは室温(300K)を仮定して行う。磁気異方性エネルギー障壁によって描かれた回路中に スキルミオンを閉じ込め^{2,3}、回路中に小さなエネルギー差(ポケット)を導入してスキルミオンの運動をコ ントロールする、Fig. 1(a)。出力となるスキルミオンを待機させるため出力回路に浅いエネルギーポケットを 設定し、さらにスキルミオン間に働く反発相互作用を大きくし待機させたスキルミオンが発出できるよう入 力ポケットのエネルギーを調節する。

シミュレーション結果

Fig. 1(b)は 130 ns 経過後のシミュレーション結果である。入力を担う2つのスキルミオンがブラウン運動に より回路を探索した後、エネルギーポケットに落ち、入力スキルミオンが膨張する。その後待機している2 つのスキルミオンが入力スキルミオンとの反発相互作用によりエネルギーポケットから発出される。発出さ れた後、入力スキルミオンを電圧印加により消去し、回路を初期化する。また、入力スキルミオンが1つの 場合では反発相互作用が小さいために、待機しているスキルミオンは発出されないことを確認した。本発表 では実験における、本素子を実現するために必要な要素技術についても議論する。本研究は株式会社アルバ

ック、JSPS 科研費 20H05666、 及び JST、CREST、JPMJCR20C1 の助成を受けたものである。

参考文献

- 1) J. Lee, and F. Peper, ACRI, Ascoli Piceno (2010)
- Y. Jibiki, <u>S. Miki</u>, et al. Appl. Phys. Lett. **117**, 082402 (2020)
- 3) <u>S. Miki</u>, *et al.* JSAP Spring meeting, Kanagawa (2022).





講演取消

絶縁性強磁性体を用いた磁気層間結合の電圧制御

日高 温志、柳原 英人

(筑波大学)

Voltage control of magnetic interlayer coupling using insulating ferromagnets

Atsushi Hidaka¹, and Hideto Yanagihara¹

(University of Tsukuba)

【背景】

磁気層間結合(IEC)の電圧制御(VCIEC)は、これまでに様々な試みがなされているものの未 だ明確な実証に至っていない[1]。強磁性金属薄膜の IEC が一般的であるが、絶縁性強磁性 体を用いた系では容易に大きな電圧を印加することができるため、我々は VCIEC を検証す る系として負の IEC が確認されている Fe/Co_{0.75}Fe_{2.25}O₄(CFO)/MgO(001)[2]に電圧印加する ことを考えている。CFO の下部電極層には、逆位相境界の発生を抑えるためスピネル構造 を有し、かつ CFO に適切な歪を導入するために MgO (*a* = 4.212Å)との格子不整合が小さい ものが望ましい[3]。導電性スピネル型酸化物のなかで、我々はCoV₂O₄(CVO)について着目し た。CVO は室温で 65 mΩcm であり、その格子定数は 8.407 Å[4]であることから、上記の系 の下部電極層として期待できる。そこで本研究では Fe/CFO/CVO/MgO(001)における VCIEC の測定を目指し、IEC の結合強度評価を試みた。

【実験・結果】

試料構造は Pt(2 nm)/Fe(1 nm)/CFO(30 nm)/NiO(0, 5 nm)/ CVO(50 nm)/MgO(001)とした。NiO 層は CVO の過酸化を防ぐ ための緩衝層として挿入した。CFO, NiO, CVO は反応性 RF マグネトロンスパッタリング法、Fe, Pt は DC スパッタリング 法によりそれぞれ作製した。作製した積層膜に対して XRD に よる結晶構造解析、VSM による磁気特性評価を行った。

図1に CFO/NiO/CVO/MgO(001)に対する面内方向の XRD 結果を示す。74°付近に1つのピークのみ観測されたことか ら、CVO, CFO にはいずれも引っ張り歪みが生じ、面内の格 子定数が MgO 基板に拘束されていることが示唆される。図2 に同試料の M-H 曲線を示す。この結果から、作製された膜は CFO 単層と同様に PMA を示すことが分かり、NiO/CVO 挿入 に伴う CFO の磁気特性への影響は小さいことが確認できる。 講演では IEC の結合強度評価など詳細な実験結果について議 論する。



Fig.1 X-ray diffraction patterns of the films.



【参考文献】

- [1] D. Zhang, et.al., Nano. Lett. 22, 622-629 (2022) [2] H. Koizumi et.al., AIP Adv. 10, 015108 (2020)
- [3] A. Kismarahardja, et al., Phys. Rev. Lett. 106, 056602 (2011)
- [4] S. Mesoraca, et.al., J. Phys.:Condens. Matter. 30, 015804 (2018)

06pB - 1

電圧制御磁気異方性測定に向けた Fe/NiO(001)薄膜の作製

嶋山潤、日高温志、柳原英人 (筑波大学)

Fabrication of Fe/NiO(001) thin films for voltage-controlled magnetic anisotropy measurements.

J. Shimayama, A. Hidaka, and H. Yanagihara

(Univ. of Tsukuba)

はじめに

スピントロニクスデバイスの低消費電力化を実現しうる新たな界面現象として、電圧制御磁気異方性 (VCMA) が報告されている[1]が、電圧印加時の磁気異方性の変化効率(単位電界あたりの異方性エネルギー 変化量)の低さが課題として挙げられている。実用的には少なくとも 300 fJ/Vm 以上が必要とされているが、 これまでに多くの研究が行われている Fe/MgO 構造や CoFeB/MgO 構造の変化効率は 100 fJ/Vm に留まってお り[2]、より大きな変化効率を示す材料が求められている。そこで、最近本研究グループによって垂直磁気異 方性の発現が確認された Fe/NiO(001)界面に着目し、NiO(001)上の Fe 極薄膜における磁気異方性の電圧制御 の検証を目指している。電圧印加に向けて、下部電極層には基板である MgO と格子ミスマッチが小さく、導 電性を示すスピネル型酸化物である CoV₂O₄(CVO)に注目した。本研究では、下部電極層に CVO を用いた Fe/NiO(001)薄膜を作製し、結晶構造および磁気特性について検討した。

(b) In-plane direction

実験方法

CVO 薄膜を MgO(001)基板上に Co と V の金属ターゲットを用いた 2 元同時反応 性 RF マグネトロンスパッタリング法によ り作製した。その後、CVO(50 nm)/MgO 薄 膜上に Cr cap(2 nm)/Fe(0.6 nm)/NiO(10 nm) 多層膜を成膜し、X 線回折法(XRD)により 結晶構造解析、振動試料型磁力計(VSM)に より試料の磁化過程を評価した。Cr cap 層 成膜後、Fe 層の平坦化をするために 450°C で 1 時間の熱処理を施した。



実験結果

Fig.1(a)に多層膜試料の膜面垂直方向の XRD、(b)に膜面内方向の XRD の結果を示す。(a)から CVO の膜面垂直方向の格子定数が小さく なっていることがわかった。一方、(b)ではピークが一つしか現れなか ったことから、膜面内方向の格子定数が MgO 基板に拘束されている ことが確認された。

次に、Fig.2 に多層膜試料の VSM の結果を示す。膜面垂直方向に 磁場を印加した際にすぐに飽和していることから、膜面垂直方向に磁 化容易軸を持つことが確認された。このことから、CVO を下部電極層 として用いることで、垂直磁化膜である Fe/NiO(001)薄膜に電圧印加 が可能になることが示唆される。講演では試料作製条件や電圧印加に 向けた詳細な実験結果について報告する。



Fig.2 Magnetic hysteresis loop of multilayer sample.

<u>参考文献</u>

[1] T. Maruyama, et al., Nat. Nanotechnol., 4, 158 (2009).

[2] W. Skowronski, et al., Appl. Phys. Exp., 8, 053003 (2015).

水素吸蔵による CoPd 合金薄膜の磁気特性変調

河野佑二¹、小嶋隆幸²、宮町俊生¹、水口将輝¹ (¹名古屋大、²信州大)

Modulation of magnetic properties of CoPd alloy thin films by hydrogen absorption Yuji Kono¹, Takayuki Kojima², Toshio Miyamachi¹, Masaki Mizuguchi¹ (Nagoya Univ.¹, Shinshu Univ.¹)

<u>はじめに</u>

パラジウム、白金、ロジウムなどの貴金属はアルケンの水素化反応に優れた触媒作用を示すこ とが知られている。これまでの研究でもこの性質を利用した水素センサーを開発しようという 試みはなされてきたが、水素吸収によるパラジウムの体積の変化を利用したものが多く、パラジ ウムの磁化過程を利用した水素センサーに関する報告はあまりない。そこで、本研究では強磁性 体の磁化変化を用いた水素センサーの開発を目的として、CoPd 合金薄膜を用い、その水素吸着 による磁気特性の変調を目指した。

<u>実験方法</u>

スパッタリング法により、熱酸化膜付き Si 基板上に CoPd 合金薄膜を成膜した。Co は DC マ グネトロン方式で、Pd は RF マグネトロン方式でスパッタし、それぞれのターゲットに印加す るパワーを調整することにより、組成を変化させた試料を室温で作製した。Co:Pd=65:35、Co:Pd = 70:30、Co:Pd = 75:25 の組成となるように作製した。試料の結晶構造を X 線回折 (XRD) によ り調べた。アルゴンに水素を 3%混合したガスを試料に暴露することにより、水素吸着処理を行 った。作製後および水素吸着後の試料の磁気特性を、振動試料型磁力計 (VSM) により測定した。 また、それぞれの試料の電気抵抗も測定し、水素吸着が CoPd の物性に与える影響を調査した。

結果

VSM による磁気特性の評価の結果、全ての組成の試料 で水素吸着処理をした試料としていない試料の間で磁化 曲線に差異が見られた。図1に、Co:Pd=70:30の組成比を 有する試料の磁化曲緯線を示す。飽和磁化および保磁力の 大きさは、水素を吸着した試料で大幅に減少した。この結 果から、水素の吸着により CoPd 合金の磁気状態が変化し たことが示唆され、同合金の水素センサーへの応用に向け た手がかりが得られた。講演では、水素吸着による結晶構 造の変化や、電気伝導特性などについても詳細に議論す る。

謝辞

本研究の一部は、名古屋大学未来材料・システム研究 所の2022年度共同利用・共同研究による助成を受けて行 われた。



Fig. 1 Magnetization of a CoPd thin film (Co:Pd = 70:30) as a function of magnetic field before and after H₂-absorption.

参考文献

[1] Jaw-Yeu Liang et al., Appl. Phys. Lett., 111, 023503 (2017).

MgO/CoFe/Pt 積層膜の磁気異方性とダンピング定数の 熱処理による変化

小西愉真,加藤剛志,大島大輝 (名古屋大)

Effect of annealing on magnetic anisotropy and damping constant of MgO/CoFe/Pt trilayer films

Y. Konishi, T. Kato, D. Oshima

(Nagoya Univ.)

<u>はじめに</u>

磁気ランダムアクセスメモリ(MRAM)は、不揮発性、高速書き込み、高い書き換え耐性といった特徴を有 し、DRAMを置き換えるユニバーサルメモリとして期待されているが、書き込み時の消費電力の低減が課題 となっている。電圧トルク磁化反転¹⁾は、電界印加時の磁性薄膜の磁気特性変化を利用した磁化反転方式で、 現在主流であるスピン移行トルク(STT)磁化反転と比べて大幅に消費電力を低減できると注目されている。電 圧トルク磁化反転は磁化の歳差運動を利用した反転方式であり、安定した書き込みの実現には磁性膜のダン ピング定数が重要であると報告されている²⁾。本研究では、垂直磁気異方性を示す MgO/CoFe/Pt 積層膜の磁 気異方性とダンピング定数の CoFe 層厚およびアニールによる変化を、時間分解磁気光学 Kerr 効果(TRMOKE) を用いて調べた。

<u>実験方法</u>

RF マグネトロンスパッタリング装置を用いて,SiN(50 nm)/MgO(10 nm)/Co₈₀Fe₂₀(0.8~1.2 nm)/Pt(3 nm)/Ta(10 nm)/熱酸化膜付きSi基板 を成膜した。また,真空アニール装置を用いて同サンプルを200°C, 300°Cで熱処理した。熱処理時間は30 min とした。積層膜の実効異方 性磁界 H_{keff} は,交番磁界勾配型磁力計(AGM)により測定したM-Hル ープより算出した。また,ダンピング定数評価のためのTRMOKE で は、中心波長1040 nm,パルス幅500 fsec.,繰り返し周波数100 kHz のファイバーレーザを光源とした。pump光として波長1040 nm, probe 光として520 nm のレーザー光をそれぞれ試料に入射した。測定の際は 外部磁界をサンプル膜面法線方向から60°の角度で,10–14 kOe の範 囲で印加した。測定した磁化の歳差運動を減衰振動関数 exp($-\tau/t$)sin(ωt) でフィッティングし、角周波数 ω と緩和時間 τ の関係から実効ダンピ ング定数 α_{eff} を算出した。

<u>実験結果</u>

Fig. 1 は、AGM から算出した成膜後、熱処理後の MgO/CoFe/Pt の H_{keff} の CoFe 層厚依存性である。CoFe 層厚減少に伴い垂直磁気異方 性が増加しているほか、熱処理によって垂直磁気異方性が増加して いる。Fig. 2 は成膜後、熱処理後の MgO/CoFe/Pt の a_{eff} の CoFe 層厚 依存性である。 H_{keff} 同様、 a_{eff} も CoFe 層厚減少に伴い増加してい る。また、アニールにより a_{eff} は増加したが、CoFe 層厚 1.1 nm で は磁気異方性が大きく上昇したのに対し、 a_{eff} は 25%程度の上昇と なった。これは磁気異方性が界面由来なのに対し、 a_{eff} はバルク由 来の効果が大きいためと考えられる。

参考文献

- 1) W. Wang, et al., Nat. Mater. 11, 64 (2012).
- 2) R. Matsumoto, et al., Appl. Phys. Express 12, 053003 (2019).



Fig.1 CoFe thickness dependence of effective magnetic anisotropy field of MgO/Co₈₀Fe₂₀/Pt trilayer films



Fig.2 CoFe thickness dependence of effective damping constant of MgO/Co₈₀Fe₂₀/Pt trilayer films

超短パルス光により励起した FeCo/Cu/GdFeCo 三層膜の 磁化ダイナミクス

瀬口和也,大島大輝,加藤剛志 (名古屋大) Magnetization dynamics of FeCo/Cu/GdFeCo trilayers triggered by ultrashort pulse laser K. Seguchi, D. Oshima, T. Kato (Nagoya Univ.)

はじめに

近年、磁性薄膜に超短パルス光を照射することによるスピン流生成が報告されている¹⁾. この超短パルス 光誘起スピン流は短時間に巨大なスピン流を生成できる可能性があり、高効率で高速な磁化反転手法となる ことが期待される.本研究では、FeCo/Cu/GdFeCo 三層膜において、FeCo 層を超短パルス光励起させること で生成されたスピン流によるフェリ磁性 GdFeCo 層の磁化ダイナミクスを光学的に観察した.

実験方法

超高真空マグネトロンスパッタ装置により,SiO2 基板 / FeCo (2) / Cu (t_{Cu}) / Gd₂₁(Fe₉₀Co₁₀)₇₉ (10) / SiN (5) (膜厚は nm) を成膜した.Cu 層厚は t_{Cu}=40,80,120,160 nm と変化させ た.試料の磁化ダイナミクスは、パルス幅 500 fs の超短パル スファイバレーザを用いた時間分解磁気光学 Kerr 効果 (TRMOKE) により観測した.probe 光は GdFeCo 膜面側か ら,pump 光はその逆側から入射(裏面 pump)し,GdFeCo 膜 の歳差運動周波数,振幅などを調べた.

実験結果

Fig. 1 は FeCo / Cu (80) / GdFeCo, および Cu (80) / GdFeCo の裏面 pump の TRMOKE の結果である. 印加磁界は膜法線 から $\theta_{\rm H}$ =15°の方向に $H_{\rm ext}$ =5kOe を印加した. pump 光のパワ ーは, 4.4 mJ/cm²とした. Fig.1より, FeCo 層の存在により, GdFeCoの歳差運動振幅が大きくなることが分かる.また,歳 差運動周波数が FeCo 層がない場合の 17 GHz から 14 GHz 程 度に低下した. Fig.2は, FeCo/Cu(80,120)/GdFeCoおよび Cu (80, 120) / GdFeCo について, 裏面 pump の TRMOKE 測定 から見積った歳差運動角周波数ωの外部磁場印加角度の依存 性を示している. なお, $H_{\text{ext}}=5 \text{ kOe}$, pump 光は 1.5 mJ/cm^2 で ある. Cu/GdFeCo ではθηの増加とともに、ωが単調減少し、 膜法線方向を容易軸とする磁気異方性が存在していることが 分かる. 一方, FeCo/Cu/GdFeCo 三層膜では, θ_H ~ 30°におい て,ωが最大を示した.この傾向は Cu 層厚が薄い場合により 顕著となる.この原因として、超短パルス光で誘起された FeCo の歳差運動から生じたスピン流が GdFeCo 層に注入さ れたことにより生じる有効磁界が考えられる.

<u>参考文献</u>

1) T. Kampfrath et al., Nat. Nanotech. 8, 256 (2013).



Fig. 1 TRMOKE waveforms of FeCo / Cu(80) / GdFeCo and Cu(80) / GdFeCo.



Fig. 2 External field angle $\theta_{\rm H}$ dependence of the precession angular frequency ω of the GdFeCo layer.

L10-FePt 薄膜における磁化ダイナミクスの温度依存性

佐々木 悠太¹, 鈴木 一平¹, Ruma Mandal^{1,2}, 葛西 伸哉¹, 高橋 有紀子¹ (¹物材機構, ²WPI-AIMR) Temperature dependence of magnetization dynamics in *L*1₀-FePt thin film Y. Sasaki¹, I. Suzuki¹, R. Mandal^{1,2}, S. Kasai¹, Y. K. Takahashi¹ (¹NIMS, ²WPI-AIMR)

<u>はじめに</u>

ハードディスクドライブ(Hard-Disk-Drive: HDD)は製造コスト・記録容量の観点からデータセンター におけるメインストレージとして採用されている.高速・大容量通信や Society5.0 の実現にあたりデー タ使用量のさらなる増大が見込まれるため, HDD の記録密度の向上が求められている. *L*1₀-FePt は,高い 結晶磁気異方性を有するため, HDD の記録密度向上に必須な磁気記録媒体材料として研究・開発が進め られている.[1,2] 一方で,高い結晶磁気異方性のために磁場印加による磁化反転が困難であることか ら,熱アシスト磁気記録方式(Heat assisted magnetic recording: HAMR)を用いた磁化反転が検討されてい る.しかしながら,高温加熱時の磁化ダイナミクスに関する実験的研究はほとんどなく,特にダンピン グ定数の温度依存性はこれまで報告されていなかった.そこで本研究では,全光学的手法を用いて *L*1₀-FePt 薄膜における磁化ダイナミクスの温度依存性を調べた.

<u>実験方法</u>

MgO(001)基板上にマグネトロンスパッタ法を用いて試料を作製した. 薄膜構成は基板側から, FePt(30)/C(5) (膜厚単位 nm)である. 基板加熱温度を 400℃として FePt 層を成膜した. 構造及び規則度は XRD, 磁気特性は SQUID-VSM を用いてそれぞれ評価した. 磁化ダイナミクスの測定には全光学的ポン プ・プローブ法による時間分解分光法(TRMOKE)を用いた. 光源には中心波長 1030 nm, 繰り返し周波数 10 kHz, パルス幅 230 fs の Yb:KGW レーザーを用いた. ポンプ光を 365 Hz に変調し, ウォラストンプリ ズムを用いた差動方式でプローブ光のカー回転角 Δφ_K を測定した. 測定時には膜面垂直方向から 80°の 角度で外部磁場μ₀Hを印加した. また, セラミックヒーターを用いて試料を加熱し, 試料表面温度*T*は熱 電対を用いて計測した.

実験結果および考察

図 1(a), 1(b)に試料表面温度 T=530 K とした際の TRMOKE 測定結果と磁化歳差シグナルの周波数スペクトルをそれぞ れ示した.いずれの μ_0 H においても磁化歳差シグナルを観 測できている.図 1(a)の実験結果を解析すると、特に μ_0 H= 7.0 T では実効的なダンピング定数 α_{eff} が 0.034 であった.既 に報告されている, $L1_0$ -FePt における室温での α_{eff} が 0.05 程 度であるため, [3] 加熱することで α_{eff} の値が小さくなるこ とが示唆された.発表ではダンピング定数の温度依存性に ついてその詳細を議論する.

本研究はJSPS科研費(21K14218, 18H03787)およびIDEMA -ASRC の助成を受けて行われた.

<u>参考文献</u>

- [1] J. Wang, et al., Acta Mater. 166, 413-423 (2019).
- [2] I. Suzuki, et al., J. Magn. Magn. Mater. 500, 166418 (2020).
- [3] X. Ma, et al., Phys. Rev. B 91, 014438 (2015).



図 1. (a)磁場角度を 80°とした際の TRMOKE 測定データおよび(b)磁化歳 差シグナルの周波数スペクトル.外部 印加磁場 µ0H を変化させて測定を行っ た.図中の実線は解析結果を示す.

人工反強磁性三層構造における表面弾性波の非相反伝搬

松本啓岐、川田拓弥、石橋未央、河口真志、林将光 (東大理)

Nonreciprocal propagation of surface acoustic waves in a tri-layer synthetic antiferromagnet H. Matsumoto, T. Kawada, M. Ishibashi, M. Kawaguchi, and M. Hayashi (Dept. of Phys., The Univ. of Tokyo)

<u>はじめに</u>

表面弾性波は固体表面に局在する振動モードであり、強誘電体基板上にくし型電極を作製したデバイスに 交流電圧を印加することで励起できる。表面弾性波の遅延線上へ作製された強磁性体薄膜へ表面弾性波を印 加すると、磁気弾性結合により強磁性体中にスピン波が励起される^{1,2)}。このような系では、表面弾性波とス ピン波のヘリシティミスマッチ³⁻⁶⁾や、スピン波の非対称な分散関係⁶⁻¹⁰⁾により、表面弾性波の振幅が正方向 と負方向で異なる非相反伝搬が生じることが報告されている。中でも、強磁性体/非磁性体/強磁性体から成る 三層構造では、層間磁気双極子相互作用によりスピン波の分散関係に顕著な非対称性が現れ、これを利用し た表面弾性波の巨大な非相反伝搬が報告されている⁸⁻¹⁰⁾。本研究では、CoFeB/Ru/CoFeB から成る人工反強磁 性三層構造において表面弾性波の非相反伝搬を観測し、その起源について解析的に考察した。

<u>実験方法</u>

128°Yカットニオブ酸リチウム基板上へ、Ta/Cu(50nm)/Ptからなるくし型電極をリフトオフ法によって作 製した。その後、電極間に長方形のパターンを作製し、そこへTa/Ru/CoFeB(5 nm)/Ru(*t*_{Ru})/CoFeB(5 nm)/Ru と いう構造をリフトオフ製膜した。製膜には rf マグネトロンスパッタリングを、パターニングにはフォトリソ グラフィを用いた。ベクトルネットワークアナライザによる散乱行列測定から、5次高調波である 2.3 GHz の表面弾性波が励起され電極間を伝搬していることを確認した。試料へ外部磁場を印加し、磁場を掃引しな がら 2.3GHz の表面弾性波における正方向・負方向の透過率をベクトルネットワークアナライザによって測定 した。外部磁場は表面弾性波の正方向と 45 度をなす方向へ印加した。

<u>実験結果</u>

Figure に、*t*_{Ru} = 0.5 nm の試料における測定結果を示す。縦軸は表面弾性波の透過パワーの変化率をプロットしており、正方向及び負方向において顕著な吸収ピークが現れている。正方向と負方向で透過パワーの磁場依存性が異なっており、非相反伝搬が確認できた。ピークにおける磁場の大きさが表す共鳴磁場も異なっており、人工反強磁性三層構造における非対称なスピン波の分散関係を反映している。マクロスピンモデルとランダウ-リフシッツ-ギルバート方程式を用いた記述^{2,11)}に基づき、表面弾性波の吸収パワーを数値計算で求めた結果、実験結果と同様の曲線が得られた。

参考文献

- 1) M. Weiler et al., Phys. Rev. Lett. 106, 117601 (2011).
- 2) L. Dreher et al., Phys. Rev. B 86, 134415 (2012).
- 3) R. Sasaki et al., Phys. Rev. B 95, 020407(R) (2017).
- 4) S. Tateno and Y. Nozaki, Phys. Rev. Appl. 13, 034704 (2020).
- 5) A. Hernández-Mínguez *et al.*, *Phys. Rev. Appl.* **13**, 044018 (2020).
- 6) M. Xu et al., Sci. Adv. 6, eabb1724 (2020).
- 7) M. Küß et al., Phys. Rev. Lett. 125, 217203 (2020).
- 8) P.J. Shah et al., Sci. Adv. 6, eabc5648 (2020).
- 9) M. Küß et al., Phys. Rev. Appl. 15, 034060 (2021).
- 10) H. Matsumoto et al., Appl. Phys. Express. 15, 063003 (2022).
- 11) Y. Shiota et al., Phys. Rev. Lett. 125, 017203 (2020).



Figure: External magnetic field $\mu_0 H_{\text{ext}}$ dependence of normalized SAW transmission for each direction.

アンモニアガス窒化により作製した FeCo 窒化物の

結晶構造と磁気特性

小高千洋、岸本幹雄、喜多英治、柳原英人

(筑波大学)

Crystal structure and magnetic properties of FeCo nitrides prepared by ammonia gas nitrification C. Kodaka, M. Kishimoto, E. Kita, and H. Yanagihara

(Univ. of Tsukuba)

はじめに

L1o-FeNi¹⁾規則合金は、次世代永久磁石材料として高いポテンシャルを有する磁性体である。この規則相は、 規則化温度が低いため従来の冶金的なプロセスでは作製が困難であったが、最近 FeNi 窒化物を経由すること で高規則度のL1o-FeNi 規則合金が合成可能となった²⁾。この方法により規則化が難しかった物質や、準安定 相としての規則相を合成する可能性があるが、現時点では FeNi 以外での研究報告がない。そこで我々は、磁 化の大きな FeCo を対象としてまず FeCo 窒化物を合成し、それを経由することで新たな FeCo 規則合金の合 成を検討することとした。今回は、前駆体となる FeCo 窒化物の結晶構造と磁気特性について報告する。

実験方法

前駆体を得るために Fe²⁺、Fe³⁺、 Co²⁺イオンをそれぞれ 0.0135mol、0.0225mol、0.036mol 含む水溶液に NaOH 水溶液を混 合することで共沈させた。沈殿物を数回水洗し中性にした後、乾 燥させて 550℃で 2 時間、水素還元することで組成比が Fe/Co:1/1 の微粒子状の FeCo を作製した。次に FeCo 微粒子を 400℃で 20 時間、アンモニアガス中で反応させ FeCo 窒化物微粒子を得た。 作製した試料の評価として、透過型電子顕微鏡(TEM)での粒子形 状観察、X 線回折(XRD)による結晶構造解析、振動試料型磁力計 (VSM) による磁気測定、そしてメスバウワー分光測定を行った。

実験結果

Fig.1 に FeCo 微粒子および FeCo 窒化物微粒子の XRD パターンを示す。それぞれ FeCo は bcc 構造、FeCo 窒化物 は六方晶 Fe₃N 構造の回折線が観測された。これは FeCo 窒化物が Fe と Co が hcp 格子をつくり、その八面体サイ トに N が侵入したような構造をもつことを示す。Fig.2 に FeCo 窒化物の磁化と逆磁化率の温度変化、10 K での磁化 曲線を示す。これらから室温では非磁性でありキュリー温 度が 100 K 付近にあることがわかった。また 10 K での飽 和磁化は 76.9 emu/g であり、FeCo 窒化物は低温では強磁 性を示すことがわかった。講演では合成条件や結晶構造、 磁気特性について詳細な実験結果を報告する。

参考文献

- 1) P.Wasilewski, Phys. Earth Planet. Inter. 52, 150(1988).
- 2) S.Goto et al., Sci. Rep. 7, 13216(2017)



Fig.1 XRD patterns of FeCo and FeCo nitride.



Fig.2 Magnetization and inverse magnetic susceptibility of FeCo nitride as a function of temperature. Insert: Magnetization as a function of applied magnetic field at 10 K.

トポタクティック反応を用いた Fe 基合金磁性材料の作製

平松健史¹、岸本幹雄²、柳原英人²、宮町俊生¹、水口将輝¹ (¹名古屋大、²筑波大)

Synthesis of Fe-based magnetic alloy materials using topotactic reaction Takeshi Hiramatsu¹, Mikio Kishimoto², Hideto Yanagihara², Toshio Miyamachi¹, Masaki Mizuguchi¹ (Nagoya Univ.¹, Tsukuba Univ.²)

<u>はじめに</u>

高機能磁石材料は自動車産業、電子産業、医療など様々な分野で需要が高まっている。しかし、現在主流 となっている永久磁石材料は希土類を含み、資源の枯渇問題や価格の高騰問題に直面している。そこで希土 類を含まない新たな永久磁石材料が求められている。我々はこれまでに、窒化処理とトポタクティック反応 による脱窒素処理を利用した L1⁰型 FeNi 規則合金を作製し、高い長距離規則度と保磁力の発現に成功してい る[1]。本研究では、理論上 L1⁰型 FeNi より高い磁気異方性を持つことが予測される FeCo 規則合金に注目し [2]、トポタクティック反応を用いた新たな高機能磁石材料の開発に取り組んだ。また、水素吸蔵の性質を持 つ Pd を FeCo に第三元素として添加することによる物性の変化についても調べた。

<u>実験方法</u>

均一性の高い粉体を合成できる共沈法と、水素還元を用いて FesoCoso、(FesoCoso)、Pd100-x (x=90.0, 92.5, 95.0, 97.5)の前駆体を作製した。原料として FeCla・6H2O、FeCla・4H2O、CoCla・6H2O、PdCl2を用いた。前駆体をア ンモニアガスによって 5 L/min、325 ℃、30 時間の条件下で窒化処理をした。得られた窒化物を水素ガスに よって 2 L/min、250 ℃、4 時間の条件下で脱窒素処理をした。各試料の結晶構造と磁化曲線をそれぞれ X 線 回折 (XRD)装置と振動試料型磁力計を用いて室温で測定した。

実験結果

XRDにより結晶構造を解析した結果、窒化後の試料は(Fe, Co)₃N構造となっていることが分かった。この 材料はこれまでに作製の報告例が無い非磁性体であり、全く新規な窒化物が創製できたことを示唆している。 また、脱窒素処理後の試料は bcc ベースの Fe₅₀Co₅₀ であったが、XRD のピーク半値幅に変化が見られた。

一方、Pdを添加した窒化後の試料では、Pdの元素置換によると考えられる XRD のピークシフトが見られたが、一部、FePd が析出し、Pd の添加量の増加に伴い析出量も増加する振る舞いも確認された。また、Pd を添加したことにより(Fe, Co)₃N 構造の XRD ピークの半値幅が減少した。これは、結晶子サイズあるいは粒子径の分散が変化している可能性を示している。

講演では、磁気特性の測定結果についても紹介し、本材料のポテンシャルを議論する。

<u>謝辞</u>

本研究の実験に協力頂いた筑波大学 関戸尊子技術補佐員に感謝申し上げる。

参考文献

 S. Goto, Hiroaki Kura, Eiji Watanabe, Yasushi Hayashi, Hideto Yanagihara, Yusuke Shimada, Masaki Mizuguchi, Koki Takanashi, and Eiji Kita, Scientific Reports, 7, 13216 (2017).

[2] 長谷川崇, 電気学会論文誌 A, 141, 105 (2021).

有機磁性金属ナノ粒子の金属表面成長と電子状態の研究

根本諒平¹, クリューガー ピーター^{1,2}, 西野史¹, 王祺嫻³, 堀江正樹³, 細貝拓也⁴, 長谷川友里⁵, 解良聡⁵, 山田豊和^{1,2}

(1.千葉大院工 2. 千葉大キラル研 3. 台湾清華大 4. 産総研 5. 分子研)

Growth and electronic structures of organic magnetic-metal nanoclusters prepared on metal surfaces R. Nemoto¹, P. Krüger^{1,2}, F. Nishino¹, Chi-Hsien Wang³, M. Horie³, T. Hosokai⁴, Y. Hasegawa⁵,

S. Kera⁵, and T. K. Yamada^{1,2}

(1&2. Chiba Univ., 3. Taiwan Tsing Hua Univ. 4. AIST, 5. IMS)

<u>はじめに</u>

有機スピントロニクスは、有機分子を新たな磁気材料として使用する。有機分子は炭素や窒素などの軽元素からなるため、既存の無機材料によるスピントロニクス素子と同等以上の磁気特性が発現すれば、次世代の代替材料になりうる。特に、有機分子のπ電子状態は磁性金属 3d 電子状態と強く混成し、新たなスピン偏極電子結合状態を生み出す。これまで主に単一有機分子の研究が盛んに行われてきた。一方で、有機分子膜と磁性金属膜を積層した際の、界面での成長プロセスは未だによくわかっていない。

<u>目的</u>

本研究では二種類の有機分子膜ヘコバルト(Co)原子を吸着した際の、磁性膜および磁性金属ナノクラスターの成長過程を研究した。基板として、超高真空中で清浄化(不純物量 0.001 原子層(ML)以下)と平坦化(原子テラス幅 50nm 以上)した貴金属 Cu(111)表面を使用した。

有機分子(1):耐久性が高く有機 EL 等の素子にも広く使用されている、座布団の形をしたフタロシアニン分子・ポルフィリン分子を使用した¹⁾。有機分子(2):溶液やバルク結晶で"ホスト"分子として知られているクラウンエーテル分子を使用した²⁾。柔軟性が高く分子中央にリングを持つ。"ゲスト"である原子・分子・イオンを、ホスト分子のリングで補足する機能がある。

<u>実験手法</u>

本研究は全て不純物の少ない超高真空環境で実施した。磁性金属の有機分子膜上での成長過程を、 原子分解能を有する低温・走査トンネル顕微鏡(STM)と、その場での試料の局所電子状態密度 (LDOS)が測定できる走査トンネル電子分光法(STS)を用いた。さらに界面の電子状態を観察するた め、紫外光電子分光装置を使用した。さらに、第一原理計算を用いてコバルト原子の最安定位置を 探った。

実験結果

超高真空環境中、Cu(111)基板表面上の規則配列した有機分子単層膜に Co 原子を約 0.01ML 吸着した。その結果、有機分子と磁性金属は単純な積層構造を作らないことが判明した。インターカレーション、ナノクラスター形成、多様でありながら秩序だった規則によって有機分子と磁性金属界面が形成されることが分かってきた。

参考文献

- 1) The Journal of Physical Chemistry C 124, 3621-3631 (2020); Scientific Reports 8, 353 (2018).
- 2) The Journal of Physical Chemistry C 123, 18939-18950 (2019).

ポーラスターゲットを用いたホットカソード RF スパッタリングによる

MgO 薄膜の高速成膜

°宮崎 大輝^a),廣川 祐生^a),Seong-Jae Jeon^a),清水 章弘^a),岩谷 幸作^b),
日向 慎太朗^a),小川 智之^a),斉藤 伸^a)(^a)東北大学,^b豊島製作所)

High rate RF sputtering for MgO thin film by hot cathode method with porous target

°Daiki Miyazaki^{a)}, Yuki Hirokawa^{a)}, Seong-Jae Jeon^{a)}, Akihiro Shimizu^{a)}, Kosaku Iwatani^{b)},

Shintaro Hinata a), Tomoyuki Ogawa a), and Shin Saito a) (a)Tohoku University, b)Toshima Manufacturing Co.)

はじめに 酸化物や窒化物絶縁体薄膜の形成は、半導体メモリ、磁気記録・スピントロニクスデバイス等の先端電 子デバイスを実現する上で必須な基盤技術である。特に高い耐熱性、熱伝導特性、電気絶縁性、2次電子放出能を 有する MgO はその特長を活かして様々なデバイスで重要な機能を担っている。MgO の成膜技術としては、緻密・ 高密着性の観点から RF マグネトロンスパッタリング法が好適であり、成膜速度を一般の金属材料程度まで高速化 することが実用上期待されている。一般に RF スパッタリングにおいて成膜速度を向上させるにはカソードへの投 入電力を増加させればよいが、その場合 ① Ar イオンの衝撃エネルギーによってターゲットの温度が上昇し、ター ゲットとバッキングプレート (BP) とを接着している In (融点: 157 ℃) が溶けて BP が外れてしまうこと ② Ar イ オンの衝撃やターゲット内の温度分布によりターゲットが破断してしまうこと等が危惧され、現実的には投入電力 をあまり高められない。今回我々は BP や In ボンディングを使用せず MgO 素材のみで構成される高破断耐性ター ゲットを開発し、カソードプレートからの冷却を断熱するホットカソード法¹を用いて高速スパッタリングを実施 できたので報告する。

実験結果 実験にはプレーナー配置式スパッタリング装置を用いた。ターゲット素材の断熱のため、Cu 製の水冷 カソードプレートとターゲットとの間に厚さ2mmのSiO2プレートを挿入した。プレートおよびターゲットの形状 は4インチ¢、ターゲットー基板間距離は60mm、マグネトロン用の磁石には中心と外周の2極の一般的なサマリ ウムコバルト磁石を用いた。Fig.1に投入電力のタイムチャートとMgO焼結ターゲットをRF放電させた状況を示 す。タイムチャートの上側にはプラズマの発光状態、下側にはその投入電力でプラズマ放電を停止した直後のター ゲット表面の赤熱状態を付した。プラズマ発光は、投入電力増大にともない薄いArに起因する赤紫色からMgに 起因する緑色(主として518.4 nm)へと変化している。ターゲットは中央部から赤熱しており、投入電力増大にと もない赤熱強度が強くなっていることがわかる。1000 W放電時に薄膜を作製すると 2.0 nm/sの成膜速度が実現さ れていた。これは通常の冷却カソード成膜に比べ 10 倍程度の成膜速度である。ただし成膜後にはターゲットが破 断した。高破断耐性ターゲットの開発の発想は、熱応力をターゲット内各所で緩和させるポーラス構造である。Fig. 2 に一例として 230 μm 径の増孔材樹脂と MgO 粉を混練して焼成するポーラスターゲットの作製模式図と実際の ターゲット表面の走査電子顕微鏡像を示す。増孔材の素材、径、焼成温度を適切に選定することにより焼成後の素 材内に空孔を残すことができる。例示したターゲットでは焼成後のポア径は150 μm 程度、密度は 2.60 g/cm³ (MgO の理論密度: 3.58 g/cm³)であった。講演では開発したポーラス MgO ターゲットで高速成膜できることを紹介し、 焼成諸条件と、RF 放電状態、ターゲットの破断耐性との関係について説明する。

参考文献 1) M. Terauchi et al., Terauchi et al., J. SID, 16/12, 1995, (2008).





Fig. 1 Process flow of hot cathode RF sputtering. Upper photos are plasma discharge, and lower photos are red heat of MgO target surface just after discharge.

Fig. 2 (Upper) Schematics of fabrication of MgO target with high fracture resistance during sputtering. (Lower) SEM image of surface of porous MgO target.

N添加が Fe-Al 合金薄膜の構造と磁気・磁歪特性に及ぼす影響

佐藤公泰¹• 今村光佑¹• 前田悠良¹• 大竹充¹• 川井哲郎¹• 二本正昭¹• 桐野文良²• 稲葉信幸³ (¹横浜国大,²東京藝大,³山形大)

Influences of N Atom Addition on the Structural, Magnetic, and Magnetostrictive Properties of Fe-Al Alloy Thin Film Takayasu Sato¹, Kosuke Imamura¹, Yura Maeda¹, Mitsuru Ohtake¹,

Tetsuroh Kawai¹, Masaaki Futamoto¹, Fumiyoshi Kirino², Nobuyuki Inaba³

(¹Yokohama Nat. Univ., ²Tokyo Univ. Arts, ³Yamagata Univ.)

はじめに Fe-Al 合金は高い透磁率を示す軟磁性材料であり,磁気コアへの適用可能性を有しているが,磁歪が大きいことが技術課題となっている. Fe-Al 合金の特性制御を行うひとつの方法として,Nなどの軽元素添加が考えられる.これまで,Fe-Al 合金を窒化させる試みは行われているが¹⁻³,bcc 格子の Fe-Al 合金にNを固溶させて形成した報告は殆ど無い.このような試料の作製には,物理的気相エピタキシャル薄膜成長法の活用が有効である.本研究では,MgO(110)単結晶基板上に,反応性スパッタリング法により Fe-Al-N 薄膜を形成し,N添加量が構造と磁気・磁歪特性に及ぼす影響を調べた.

実験方法 製膜には超高真空 RF マグネトロン・スパッタリング装置を 用いた.400 °C の MgO(110)単結晶基板上にAr と N₂の混合ガス雰囲気下 で Fe_{100-x}Al_x合金ターゲット (予稿掲載データは x = 10 at.%) をスパッタ することにより,40 nm 厚の Fe-Al-N 膜を形成した.構造評価には RHEED, XRD, EDS, XPS, AFM, 磁化曲線測定には VSM, 磁歪測定には片持ち 梁法を用いた.

実験結果 MgO(110)基板上に形成した Fe-Al および Fe-Al-N 膜に対して MgO[001]方位から観察した RHEED パターンを Fig. 1(a-1)および(b-1)に 示す. N₂ 分圧比 0%で形成した Fe-Al 膜は, A: Fe-Al(211)[111]_{bec} || MgO(110)[110]および B: Fe-Al(211)[111]_{bec} || MgO(110)[110]の結晶方位 関係でエピタキシャル成長している. N₂ 分圧比 0.5%で形成した Fe-Al-N 膜についても,同様の回折パターンを観察することができ,エピタキシャ ル成長していることが分かる. XRD パターンを Fig. 1(a-2)および(b-2)に 示す. いずれの膜に対しても bcc(211)面からのみの反射を確認すること ができ, bcc 単相であることが分かる. また,N1sの光電子スペクトル を Fig. 1(a-3)および(b-3)に示す. Fe-Al 膜ではピークが見られないが, Fe-Al-N 膜では 397 eV 付近に N1s ピークが現れており,N 原子が bcc 格 子に固溶していることが分かる. 当日は,磁気・磁歪特性に加え,他の 組成で形成した膜についても報告する.

- W. D. Li, O. Kitakami, Y. Shimada, and Y. Takeno: J. Magn. Soc. Jpn., 19, 429 (1995).
- 2) S. Kikkawa, M. Fujiki, M. Takahashi, and F. Kanamaru: J. Jpn. Soc. Powder Powder Metall., 44, 674 (1997).
- 3) A. S. Kamzin, S. A. Kamzin, F. Wei, and Z. Yang: Tech. Phys., 50, 129 (2005).





Fig. 1 (a-1, b-1) RHEED, (a-2, b-2) XRD, and (a-3, b-3) XPS data of (a) Fe-Al and (b) Fe-Al-N films formed on MgO(110) substrates.

単結晶基板上にエピタキシャル成長した β-Mn型 CoZnMn 薄膜

大島、大輝、三橋 良祐、五十嵐 信行、加藤 剛志、長尾 全寛 (名古屋大学) β-Mn type CoZnMn thin film epitaxially grown on single crystal substrate D. Oshima, R. Mitsuhashi, N. Ikarashi, T. Kato, M. Nagao (Nagoya University)

はじめに

β-Mn 型の CoZnMn は反転対称性の破れたカイラル磁性体の一種であり,室温以上で Bloch 型の磁気スキル ミオンが観測されている¹⁾. β-Mn 型 CoZnMn 薄膜においては,多結晶膜の報告はあるものの²⁾,単結晶基板 上へエピタキシャル成長させたという報告はない.そこで本研究では,MgO(001)単結晶基板上の β-Mn 型 CoZnMn エピタキシャル膜の作製を試みた.

実験方法

サンプルは RF マグネトロンスパッタ法を用いて作製した. 成膜中の Ar ガス圧は 0.5 Pa とし, Co-Zn 複合 ターゲットおよび Mn ターゲットを用い, MgO(001)単結晶基板上に交互成膜することで総膜厚が 150 nm と なるよう [Co-Zn(10-t)/Mn(*t* nm)]_{15×}積層膜を形成した. なお,シード層およびキャップ層に W を 10 nm 堆積 した. Co-Zn 層の組成はエネルギー分散型 X 線分光法により計測し,その組成比は Co:Zn=44:56%である ことを確認している. 成膜後,別の真空チャンバ内で熱処理を行った. 磁気特性は交番磁界勾配型磁力計, 結晶構造は X 線回折 (XRD) を用いて評価した.

実験結果

Mn 膜厚を *t*=2 nm とし, 熱処理温度を 300°C と したサンプルの逆格子マッピングの結果を図1(a) に示す. MgO(130)面に平行な面で測定したもの で、QyはMgO[310]方向、QzはMgO[001]方向に平 行なベクトルである. 図中に β-Mn 型の CoZnMn の 103, 104, 204 スポットが見られており, β-Mn 型 CoZnMn が単結晶基板上に(001)配向して成長して いることがわかる.図1(b)は103スポットを含む ように¢スキャンを行った結果であるが,計8本の ピークが見られている. これは, CoZnMn[100]方向 がそれぞれMg0[310]およびMg0[310]に平行な双 晶となっていることを示唆している. 今回作製し た CoZnMn は双晶を有しているものの、単結晶基 板上の β-Mn 型 CoZnMn エピタキシャル膜の作製 に成功したと言える.講演では、Arガス圧や熱処 理温度の違いについても述べる.

参考文献

- 1) Y. Tokunaga et.al., Nat. Comm. 6, 7638 (2015).
- 石川他,第66回応用物理学会春季学術講演 会,9p-PB1-15 (2019).



Fig. 1 (a) Reciprocal space mapping of the CoZnMn film in the plane parallel to MgO(130). (b) ϕ scan for the film including **\beta**-Mn type CoZnMn 103 diffractions.