

NIMS NOW

NATIONAL INSTITUTE FOR MATERIALS SCIENCE

2023

No. 6

磁性・スピントロニクス材料研究センター

磁力が未来を書き換える



磁力が 未来を書き換える

データ流通量の爆発的な増加、消費電力量の増大……。

電気自動車のモーターにおいて駆動力を生み出す磁性材料や、

ストレージでの読み書きや情報保持を担うスピントロニクス素子は

常にそれら社会課題のただなかにあり、世界各国が高性能化に向けしのぎを削っている。

さらに、「磁石」ならではの性質、

すなわち、磁気の源“電子スピン”に由来する多彩な物理現象は

既存のデバイスからエネルギーマネジメントの在り方まで、

未来像を大きく変える可能性を秘めている。

それら物理現象を材料の“機能”として昇華し、デジタルイノベーションにつなげること、

ひいては、持続可能な社会を導くという決意を新たに、

「磁性・スピントロニクス材料研究センター」は、磁気応用のフロンティアへと挑み続ける。

Data：磁性・スピントロニクス材料研究センター

センター長：三谷 誠司

Seiji Mitani

定年制研究職員 24 名



■磁気機能デバイスグループ

■磁気記録材料グループ

■スピントロニクスグループ

■スピン物性グループ

■スピンエネルギーグループ

■ナノ組織解析グループ

■磁性理論グループ

■グリーン磁性材料グループ

□データ創出・活用型磁性材料研究拠点 (DXMag)

Cover Story

「熱電永久磁石」

大きな磁気熱電効果を示す「ビスマス・アンチモン合金 ($\text{Bi}_{10}\text{Sb}_{10}$)」と、永久磁石である「ネオジム磁石」とを交互に積層・接合し、斜めに切断した複合材料。電流を流すと、電流と直交した方向に温度勾配が生じ、片面を冷却できる。単一の複合材料において、斜めの積層に由来する「非対角ペルチェ効果」を含む3種の現象が同時に発現し、熱電変換特性を増強している。ネオジム磁石は、 $\text{Bi}_{10}\text{Sb}_{10}$ 合金に磁場をかけ続けることで熱電変換効率を引き上げる役割を担うとともに、永久磁石として磁力も活用が可能だ。これらの物質の組み合わせは一例であり、複合材料の設計・最適化により更なる特性向上が期待できる。(P.6参照)



〈関連記事〉

プレスリリース (2023.11.30)

<https://www.nims.go.jp/news/press/2023/11/202311300.html>

Key Projects

磁性・スピントロニクス材料研究センターが推進するプロジェクトをご紹介します。

持続可能社会のための 磁性・スピントロニクス材料の基盤研究



Project leader
三谷 誠司
Seiji Mitani

磁石でエネルギーの制御に革新を グリーン磁性材料

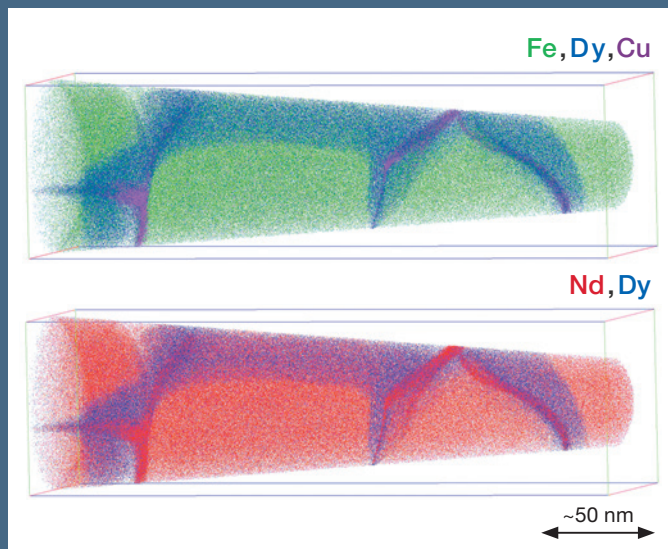
永久磁石として知られ、電気自動車 (EV) のモーターにおいて駆動力を生む「高性能ネオジム磁石」。化石燃料からの脱却に向け社会の気運が高まる中、その需要は増大する一方だ。本プロジェクトでは、往年の課題である重希土類元素によらない高性能ネオジム磁石の実現を目指すほか、使用済みの製品に含まれるネオジム磁石から希少性の高い元素を分離・回収するリサイクル技術の開発にも着手した。また、磁気によって熱を操る新たなエネルギー材料群「磁性熱動体」の創製にも挑む。さらに、グリーンエネルギーと言われる水素を社会に普及させる上でも、磁性材料は貢献が見込まれる。「磁気冷凍材料」は、磁場をかけると吸発熱する「磁気熱量効果」を示す物質であり、水素を液化温度まで下げる冷却材としての応用に期待がかかる。現在、室温から極低温までの冷却を可能とする磁気冷凍材料の研究開発を推進中だ。

RESEARCH1 … P.6参照

RESEARCH2 … P.7参照



微細組織の制御で高性能化が進む「ジスプロシウムフリーネオジム磁石」



熱間加工ネオジム磁石の結晶粒界を含む3次元アトムマップ

材料開発を大幅に加速！ ナノ解析・理論計算という共通基盤

NIMSはこれまで、とりわけ重希土類フリー永久磁石の研究開発において先駆的な成果を示してきた。その強力な後ろ盾となったのが、材料の微細組織をミクロ・ナノ・原子スケールで解析する技術である。電子顕微鏡や3次元アトムプローブなど最先端解析装置を組み合わせ、結晶粒界や薄膜の界面をマルチスケールに観察することにより、材料設計の指針が得られてきた。また、実験結果と、理論計算に基づくコンピュータシミュレーション結果との比較も、微細組織と特性との関係を理解する上で不可欠だ。本センターではナノ解析・理論計算のグループが材料の研究開発を担うグループと並走するとともに、今期はデータ駆動型研究との融合を深め、研究開発の効率化・高速化を図る。

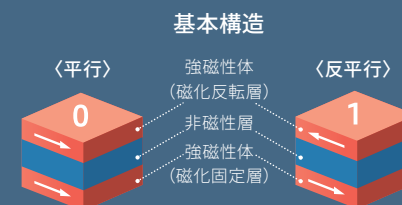
RESEARCH7 … P.13参照

RESEARCH8 … P.14参照

NOTE

「磁気抵抗素子」

2枚の強磁性体に非磁性体 (絶縁体あるいは金属) を挟んで重ね合わせた3層構造が、機能発現の要だ。強磁性体の一方の磁化は固定 (磁化固定層)、もう一方は磁化反転を生じる (磁化反転層)。強磁性体の磁化の相対的な向きが平行・反平行のときで電気抵抗が変化する。その変化をデジタル信号の“0・1”と対応させ、情報を記録する仕組み。メモリ素子の場合、電気抵抗の変化率 (磁気抵抗比) が高いほど、センサやメモリ素子として高い性能が得られる。



トンネル磁気抵抗 (TMR) 素子は、非磁性層に絶縁体を用いたもの。巨大磁気抵抗 (GMR) 素子の場合には、金属を用いる。

磁気応用の新たなフロンティア デジタルイノベーション

磁気の起源である、電子のスピン。磁性体におけるスピンの向き (磁化の方向) の効率的な制御は、省エネルギー化に直結すると同時に、デバイスの処理速度向上に資する命題だ。高容量化の要請が強まるハードディスク (HDD) のディスク表面には強磁性体の微粒子が分散され、磁化の方向に応じてデジタル信号の“0・1”を記録している。本プロジェクトでは、NIMSが見出した鉄・白金 (FePt) 系媒体の高記録密度化に挑むほか、新規記録方式の開発にも取り組む。一方、媒体材料が進化すれば、そこから情報を読み取るリードヘッドにも鋭敏な応答が求められる。リードヘッドの核を成すのが「磁気抵抗素子」 (上囲み参照) である。これは、次世代メモリとして期待値の高い「磁気抵抗メモリ (MRAM)」の記憶素子としても使われており、高性能化が実現すれば大きな波及効果が見込める。NIMSは素子の性能を最大化するため、異種材料の積層界面の最適化や新材料探索に取り組んでいる。



HDD用FePt-C媒体 (P.8参照)



折り曲げ可能な「フレキシブル熱流センサ」 (P.10参照)

既存の素子・デバイスの高性能化はもちろん、磁性・スピントロニクス材料の応用先の開拓もNIMSの重要な使命だ。そのために、スピン由来の物理現象の探究や原理実証にも力を注ぐ。応用例としては、ビッグデータの収集を可能にする新原理のセンサや、生物の脳をモデルとした「ニューラルコンピューティング」用の次世代演算素子など、低消費電力ながらも高速に動作するデジタルデバイスを見据えている。片や、探索サイクルの高速化を効率的に進めるためには、研究現場の“スマートラボラトリ化”が欠かせない。現在、1枚の基板上に組成や膜厚の条件を変えた膜を積層できるコンビナトリアル成膜装置をはじめ、素子化や特性計測プロセスも次々と自動化。解析にはデータ科学を積極的に導入するなど、最先端手法を結集させていく。

RESEARCH3 … P.8参照

RESEARCH4 … P.10参照

RESEARCH5 … P.11参照

RESEARCH6 … P.12参照

RESEARCH 1

磁気で熱を制御する
「磁性熱動体」を創製！

内田 健一

Ken-ichi Uchida

スピンエネルギーグループ
上席グループリーダー

熱電永久磁石の熱電変換特性評価などに用いる、独自に発展させたロックインサーモグラフィ装置。

磁気の起源である電子のスピンを使い、熱を自在に制御する「スピнкаロリトロニクス」。
この分野を牽引してきた内田健一は、これまでの成果を礎に应用研究へと乗り出している。

物理から、物質・材料へ

磁気・電気・熱のエネルギーは、相互に変換可能だ。とはいえ、熱は身近なエネルギーでありながら制御が難しい。そのような中、内田は電子のスピンを利用して熱を自在に制御する「スピнкаロリトロニクス」分野を切り拓いてきた。2023年5月には、当分野の国際ワークショップをNIMSが拠点を置くつくば市で開催するなど、国際的な発展を牽引している。そして今、自身の研究の方向性を「物理から、物質・材料への転換」と形容する。

「これまで、スピнкаロリトロニクス分野は基礎研究の域を出ず、我々のグループでも、物理現象の観測や解明までが研究の中心でした。基盤的な実験技術と理解が整った今、本腰を入れて応用を目指す時期が来たと捉え、物質・材料開発に邁進しています」（内田）

2022年10月には、科学技術振興機構（JST）の戦略的創造研究推進事業ERATOにおいて「内田磁性熱動体プロ

ジェクト」が始動。磁気によって熱を制御する機能性材料を総称して「磁性熱動体」と銘打ち、「熱変換」「熱制御」「熱移送」の3本柱*で推進中だ。

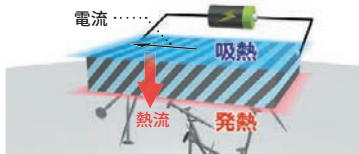
ミクロの物性をマクロへ。
「熱電永久磁石」を実現

「熱変換」では早速、応用への足がかりと言える成果が生まれている。2023年11月に発表した「熱電永久磁石」だ（表紙、P.2写真）。永久磁石でありながら、電流と熱流をそれぞれ直交する方向に変換する“横型”熱電変換の機能を持つ（図）。

「従来、スピンに起因する熱電変換の性能指数は市販のゼーベック素子と比べると何桁も低く、実用面では見向きもされない技術でした。それが、現在我々が開発している材料の熱電性能指数は市販のゼーベック素子の数分の1にまで迫り、ようやく応用の可能性が見えてきたと言えます。基礎研究では、物理現象を観測するため、素性がよく分かっている均質な薄膜や単結

晶物質が主な研究対象でした。ですが、熱電発電・冷却応用のためには出力が求められることからバルク材料への転換が必要であり、あえて不均質な微細構造や複合材料をつくることでエネルギー変換効率を向上させることも可能です。その上で、複合材料中で複数の物理現象を同時に発現させ、高い性能を発揮させていく。この熱電永久磁石は1つの実施例です」と内田。挑戦的な研究の先に、持続可能な社会が拓く。

*「熱変換」では「熱電永久磁石」の開発に取り組むほか、「熱制御」では、磁化方向や磁場強度に応じて熱伝導率が劇的に変化する「磁性複合熱スイッチ材料」を、「熱移送」では、磁場を印加した際に吸熱・発熱を効率良く熱媒体に伝える「相界面制御磁気冷凍材料」の創製を進めている。



図「熱電永久磁石」として機能する複合材料の一例
既存のゼーベック素子は、電流と熱流が同じ方向に変換される“縦型”熱電効果によるもので、p型・n型半導体を集積して接続させた複雑な構造をとる。一方、横型熱電効果を用いれば素子構造が簡略化されるため、熱電変換素子の高効率化・低コスト化・耐久性向上につながると期待できる。（P.2にも解説）

カーボンニュートラルの実現に向け、持続可能で環境に優しい磁性材料のニーズが高まっている。
バルク磁性材料開発において高い実績を持つホセイン・セペリ-アミンに、研究開発の現状を聞いた。

エネルギー問題に資する磁性材料

磁性材料は、電気自動車（EV）、風力発電などのグリーンエネルギー変換に応用され、カーボンニュートラルを達成する上で重要な役割を果たしている。さらに、これらの用途に使用される材料は、希少元素に依存せず低消費電力で高性能を発揮すること、すなわち“グリーン”であることが重要だ。それらの実現には、磁性材料の革新が欠かせない。

ホセイン・セペリ-アミン率いる「グリーン磁性材料グループ」では、主に「永久磁石」「軟磁性材料」「磁気熱量効果材料」の研究開発に取り組んでいる。永久磁石は、EVや風力発電用タービンのモーターにおいて駆動力を生み出す一方で、磁石の保磁力を高めるために添加されている希少元素の削減が課題だ。軟磁性材料は、パワーエレクトロニクスデバイスの中で電気の直流-交流変換を担う機器に組み込まれており、材料の改良によるエネルギー損失の低減が望まれている。また、磁気熱量効果材料は「磁気冷凍材料」とも呼ばれるもので、環境に優し

い冷却システムの実現を担っている。

複数の手法を高いレベルで統合

グリーン磁性材料グループの強みは、複数の手法を組み合わせたコンビナトリアル研究アプローチにある。

「我々はバルク磁性材料の作製だけでなく、電子顕微鏡、アトムプローブトモグラフィ、磁区観察などを駆使したマルチスケール解析により、微細構造と磁気特性との相関を解明しています。さらには、計算シミュレーションを組み合わせることで、磁性材料の微細構造を設計し、所望の磁気特性を実現しているのです。実際、永久磁石の分野ではこれらのアプローチにより、高い保磁力をもつ高性能なDyフリー永久磁石の開発に成功しています（P.4写真）。また、内田健一（左ページ参照）が率いるプロジェクトのもと、“横型”の巨大な熱電変換特性を示す永久磁石の開発にも携わっています」（セペリ-アミン）。

しかし、希少元素によらず高性能バルク磁性材料を設計するには複数のパラメーター

を同時に最適化しなければならず、複雑な作業となる。そこで有用なのが、データ科学だ。セペリ-アミンらは2022年にスタートしたDXMag（P.9に脚注）に参画し、高性能バルク磁石の開発、さらにはハードディスク（HDD）で情報保持を担う磁気記録媒体の開発にデータ科学を活用している。

「機械学習の援用による微細構造設計は、DXMagプロジェクトにおける我々の研究アプローチの1つです。また、材料の作製プロセスを最適化するため『プロセスインフォマティクス』を適用しています。さらに、鉄・白金（FePt）から成る磁気記録媒体に対し、電子顕微鏡像の深層学習と欠陥や磁気異方性の機械学習に基づいて評価を行う『媒体シミュレータ』を、『磁気記録材料グループ』（p.8参照）と共同開発しています。これらのアプローチにより、HDD業界と共同でのFePt媒体のハイスループット特性評価が可能になりつつあります」（セペリ-アミン）

最先端技術とデータ駆動型手法の融合により、研究開発は日々加速している。

RESEARCH 2

グリーンイノベーションを導く
バルク磁性材料を

ホセイン・セペリ-アミン

Hossein Sepehri-Amin

グリーン磁性材料グループ
グループリーダー

集束イオンビーム（FIB）と走査型電子顕微鏡（SEM）を複合化した「FIB-SEM」では、材料の微細組織を3次元画像で取得できる。

高速なエネルギー変化を測定できることから、円偏光に適した微細組織の解明に活用しています」（高橋）

実用化をまっすぐに見据え、多角的な挑戦を続ける高橋。高橋らの研究成果が実装され、データセンターの様相が一変する日を待ち望む。

*1 出典: IDC Global DataSphere, Nov. 2018
*2 データ創出・活用型磁性材料研究拠点 (DXMag) …文部科学省が推進する「データ創出・活用型マテリアル研究開発プロジェクト (DxMT)」の一課題、磁性材料開発を担う研究拠点として、磁性・スピントロニクス材料研究センター内に設置された。(代表研究者: 大久保忠勝)

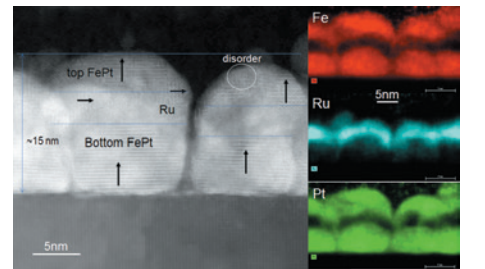


図2 3D媒体の透過型電子顕微鏡 (TEM) 像
Ruの上下をFePtで挟んだサンドイッチ構造を作製し、その断面をTEMで観察した。FePtとRuがそれぞれエピタキシャル成長している。

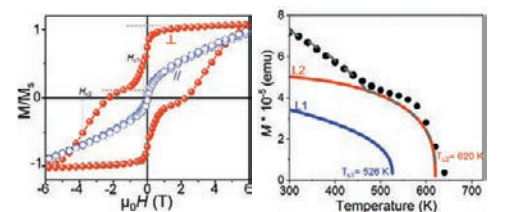


図3 3D媒体の磁気特性
左のグラフは磁化曲線で、FePtに与えた外部磁場の大きさと、磁化の強さとの関係を示す。上段のFePtは H_{C1} において磁化反転し、下段は H_{C2} において磁化反転している。右のグラフは、磁化の温度依存性を示したもので、キュリー温度 (TC) を比較すると、上段のFePt (青) と下段 (赤) とでは約100Kの差がある。これらの結果から、作製した上下のFePtがそれぞれ異なる磁気特性を持ち、レーザーの出力強度に応じて個別に磁化の方向を制御可能であることが分かる。

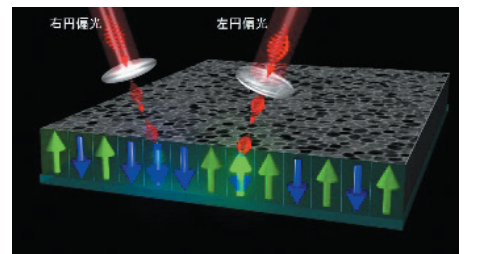


図4 円偏光誘起磁化反転方式のイメージ
照射する円偏光を右回り、左回りと切り替えることにより、ディスクに並ぶ強磁性微粒子の磁化の向き（上向き・下向き）を制御できる。

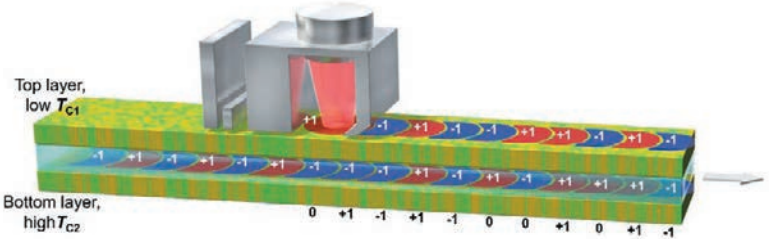


図1 多値記録のイメージ図
多値記録用の記録媒体は、あらかじめ、上段よりも下段のキュリー温度が高くなるよう材料設計しておく。上段を書き換える際は、下段に影響を及ぼさない程度の弱いレーザーを照射し磁化反転させる。一方、下段に書き込む際には、レーザーで高温に熱する必要があるため、同時に上段も磁化反転を生じる。そのため、上段に再び弱いレーザーを照射して磁化の方向を戻す。

材料開発の推進を目的に「データ創出・活用型磁性材料研究拠点 (DXMag)」^{*2}を発足。高橋も同拠点の主任研究者として名を連ねている。

「プロジェクトではNIMSのデータ科学の専門家と『グリーン磁性材料グループ』が主体となって、物性や作製プロセスの予測システム『媒体シミュレータ』の構築を進めています (P.7参照)。一方、私たち実験研究者は、実験データを効率よく蓄積する仕組みの導入を進めています。各装置から『RDE (Research Data Express)』というNIMS開発のシステムを使って、実験データを自動で構造化した上でDICEへと蓄積する仕組みです。さらに電子ラボノートの導入などにより、データセット取得の効率化を進めているところです」と高橋。スマートラボトリー化は着実に進み、高効率な磁性材料探索の素地が整いつつある。

目指すは10Tb/in²超！ 省エネに有利な「多値記録」とは

高橋らはHDDの記録密度向上に、新規材料の開発とは別角度からもアプローチしている。

「HDDを大容量化する方法としては単純にプラッタの枚数を増やす方法もありますが、製造エネルギーの面からみても、持続可能な社会実現に向けた解決策とはいえません。それに対して私たちのグループでは、プラッタ1枚あたりの磁性層を多層化した『3D媒体』を作製し、各層でそれぞれの情報を記録する『多値記録』の実現を目指しています(図1)」(高橋)

多値記録に関する研究開発は2021年に科学技術振興機構 (JST) の戦略的創造推進事業CRESTに採択され研究を進めている。

RESEARCH 3

データ駆動で加速！ HDD大容量化への挑戦最前線



高橋 有紀子
Yukiko Takahashi

磁気記録材料グループ
グループリーダー

品化。高橋らの研究成果は大きな波及効果をもたらした。

データ駆動で挑む 次世代磁性材料の探索

HDDメーカー大手3社が共同発表したロードマップによると、目下、2028年までの記録密度の達成目標は1インチあたり4テラビット (4Tb/in²)。この目標値をクリアするためには、革新的な材料の探索が欠かせない。「これまでFePt-Cのほかにも、FePt-AlF₃やFePt-Cr₂O₃などいろいろな組成を試してきました。ただ、いずれの媒体でも4Tb/in²超えは実現できていません。行き詰まった状況を打ち破るため、データ駆動型研究に取り組んでいます」

データ駆動型とは、データを活用し高効率・高速な材料探索を行う研究手法である。昨今、NIMSは世界最大級の材料データベース「DICE」の構築・運用を進めており、2022年11月にはこれを活用した磁性

NIMS・早稲田大学連携大学院の教授も務める高橋。共同研究先からの研修生も含め、研究室では多くの学生が実験を行っている。写真は大学院生のアンガヤラニ・ラマヌティ・ディリバン(右)とテン・ユ・ヘン(中)。奥に見える装置はFePt-C媒体の作製に成功したスパッタリング成膜装置。

IoT社会の進展に伴い、世界中でデータ量が急増している。膨大なデジタルデータを保存するのはデータセンターであり、メインストレージはハードディスクドライブ (HDD) だ。高橋有紀子はHDDの大容量化や革新的な磁気記録技術の開発による電力消費の削減を通じて、持続可能な社会の実現に取り組んでいる。

微細構造の最適化を実現

2025年に世界の年間流通データ量は175ゼタバイト (ZB=10億テラバイト) に達すると言われている^{*1}。これは世界の総電力量のおよそ10%にも匹敵する莫大な電力がデータセンターにおいて消費されてしまう計算になる。省エネルギー化実現のために欠かせないのがHDDの大容量化だ。

HDDのディスク (プラッタという) は、ナノサイズの強磁性微粒子が非磁性体の母相中に均一に分散された構造 (グラニューラ構造) を有する。微粒子の磁化の方向 (上向き・下向き) をデジタル情報の「0・1」と対応させることにより情報を記録する仕組みだ。HDDの大容量化とはすなわち、1ビットあたりの体積を低減し、密度を高めることを意味する。だが、現在主力のHDDのプラッタで使われているコバルト・クロム・白金 (CoCrPt) 微粒子の場合、微細化していくと周囲の熱により磁化のゆらぎが生じてしまい、記録された情報を保持できなくなる

という課題があった。「ゆらぎを抑えるには、磁化の方向によって内部エネルギーに大きく差が生じる材料、すなわち磁気異方性の高い材料が有用です。2000年ごろ、私たちはその候補として鉄・白金 (FePt) に注目し、研究開発をスタートしました。FePtは磁気異方性が高いがゆえにデータの書き換えに強い磁場が必要で、私たちは『熱アシスト磁気記録 (HAMR)』と呼ばれる書き込み方式に着目しました。書き換える際にレーザーで微粒子をキュリー温度まで熱し、磁力を失ったわずかな瞬間に磁化反転させるのです。この方式に適した薄膜をつくるため、微細構造の観察とそれに基づく特性発現メカニズムの解明に取り組んだ結果、2008年にFePtと炭素 (C) を組み合わせた理想的な微細構造の作製に世界で初めて成功しました」と高橋はこれまでの成果を語る。

これを受けて世界中のHDDメーカーが試作に乗り出し、2020年に米・シーゲイト社がFePt媒体を搭載したHAMR-HDDを製

磁性薄膜材料で生じる、さまざまな磁氣的相互作用や稀有な物理現象。

葛西伸哉はそれらの活用に向けた基礎研究の推進と同時に、高効率な探索体制を築いている。

磁化の高効率な制御を求めて

スピントロニクス技術の代表的な応用例である「磁気抵抗メモリ（MRAM）」[＊]。その高性能化には、磁気の源である電子のスピンの振る舞いをより深く理解し、適切に制御することが不可欠だ。

MRAMの中で情報保持を担う「トンネル磁気抵抗（TMR）素子」は、ナノメートル（nm）オーダーの超薄膜を幾重にも積層したものだ。中でも、2枚の強磁性体で絶縁体を挟んだ構造が機能発現の要である（P.5に解説）。

「MRAMの目下の課題は、書き込みの低消費電力化と読み取りの高効率化です。我々『スピン物性グループ』は、さまざまな物理現象や磁氣的相互作用を活用することで、高効率な磁化の制御手法の検討を行っています」（葛西）

磁化を制御するためには、電子の流れに付随して生じる電子スピンの流れ、いわゆる「スピン流」をいかに高効率に生成する

か、また、生成されたスピン流の向きをどのように制御するかが重要な課題となる。

「私たちは、強磁性体とさまざまな材料からなる接合系において、より高効率な電流－スピン流変換と、それを用いた磁化制御の低消費電力化を追求しています。また最近では、強磁性体に変わる材料として『フェリ磁性体』『反強磁性体』のスピン制御についても検討を行っています」（葛西）

ニューラルネットワークの新たな担い手「磁気スキルミオン」

一方、次世代エレクトロニクスデバイスの開拓には、基礎研究による新たな動作原理の確立が欠かせない。現在、葛西らが注目しているのが「磁気スキルミオン」だ。これは強磁性体に現れる磁区構造の1つで、ナノスケールでも安定という特徴から、新たな情報担体として脚光を浴びている（図）。磁気スキルミオンの生成・消滅は、デジタル情

報の“0・1”の書き込みに対応する。葛西らは、この制御を電流や電圧で実現するとともに、より低消費電力で書き込みを実現するための新規材料の探索を進めている。

「磁気スキルミオンの生成・消滅現象は高い非線形性を有しており、ニューラルネットワークの一種『物理リザバーコンピューティング』における時系列情報処理の担い手としても有力視されています。我々はその原理実証に成功しており、今後はデバイスとしての機能実現と、その特性向上に向け邁進していきます」（葛西）

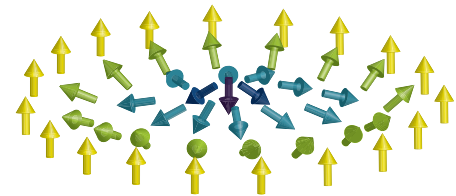


図 スキルミオンの模式図
外側は上向きスピン、内側は下向きスピンで、全体として放射状に並んだ、トポロジカルなスピン構造を持つ

RESEARCH 4

薄膜の磁性材料で挑む デジタルイノベーション



桜庭 裕弥

Yuya Sakuraba

磁気機能デバイスグループ
グループリーダー

2つの「多元コンビナトリアルスパッタリング室」と搬送ロボット室から成る全自動成膜装置は、組成を連続的に変化した「組成傾斜膜」を含め、多様な積層デバイス膜を作製できる。さらに、自動レーザー加工装置および電気抵抗/磁気抵抗の自動計測システムの活用により、効率的な材料探索とデバイス最適化が可能となる。

ハードディスクドライブ（HDD）の大容量化や、ビッグデータ創出をもたらす新規センサの開発。

桜庭裕弥は薄膜材料を主軸に、それらの実現へとつながる材料研究を進めている。

「ハーフメタル」で挑む 次世代リードヘッドの実現

桜庭が率いる「磁気機能デバイスグループ」は長年、HDDの読み書きヘッドに用いる「面直通電型巨大磁気抵抗（CPP-GMR）素子」の研究開発を推進してきた（P.5に解説）。CPP-GMR素子は、現行のリードヘッドに使われているトンネル磁気抵抗（TMR）素子と比べて、電気抵抗が低く、より微細化しても高速に応答できるといった特長から次世代リードヘッドとして有望視されているものの、感度の低さが課題になっている。

感度を高める戦略として、桜庭らは「ハーフメタル^{*}」と呼ばれる磁氣的に特異な性質を持った材料系を中心に、素子の構成材料の探索から、微細組織の構造制御まで取り組んでいる（P.15 図2に例）。

「素子は厚さわずか数ナノメートルの薄膜から成り、同じセンターの『ナノ組織解析グループ』と『磁性理論グループ』との強い連携のもと、原子スケールでの制御と理解に挑んでいます」（桜庭）

^{*}ハーフメタル……一般的な強磁性体では上向きのスピンと下向きのスビンの分極の度合い（スピン分極率）が50％程度であるのに対し、スピン分極率 100％（スピンの向きがすべて同じ）を示す強磁性体。

世界初、 フレキシブルな熱流センサ誕生

そうした薄膜材料の知見をもとに、現在、桜庭はCPP-GMR素子と並行して「熱流センサ」の研究開発を進めている。熱流は人体や機器などから絶えず発生し続けており「実は有用な情報源でもある」と桜庭は言う。「例えば、センサを使って建物内のあらゆる場所の熱流をデジタル情報化できれば、いち早く空調の出力を制御したり、より効果的なエネルギーマネジメントが実現するでしょう。ほかにも、熱流の発生によって機器の故障を検知するといった使い道もあります」とその有用性を語る。

熱流センサは、すでに市販されている。ただし、それらは「ゼーベック効果」を利用したもの。電流と同じ方向に熱流が変換されるため、原理的にセンサの構造が複雑になる。それゆえ、熱抵抗が高く、汎用的な利用は困難だ。

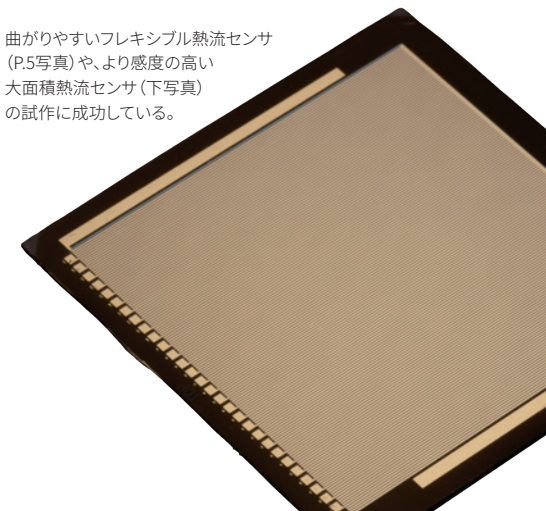
そこで桜庭が着目したのが、磁性材料が示す熱電現象の1つ「異常ネルンスト効果」だ。電流と熱流がそれぞれ直交する方向に変換されることから、磁性体の薄膜を

使ったシンプルな構造が実現でき、熱抵抗も低い。

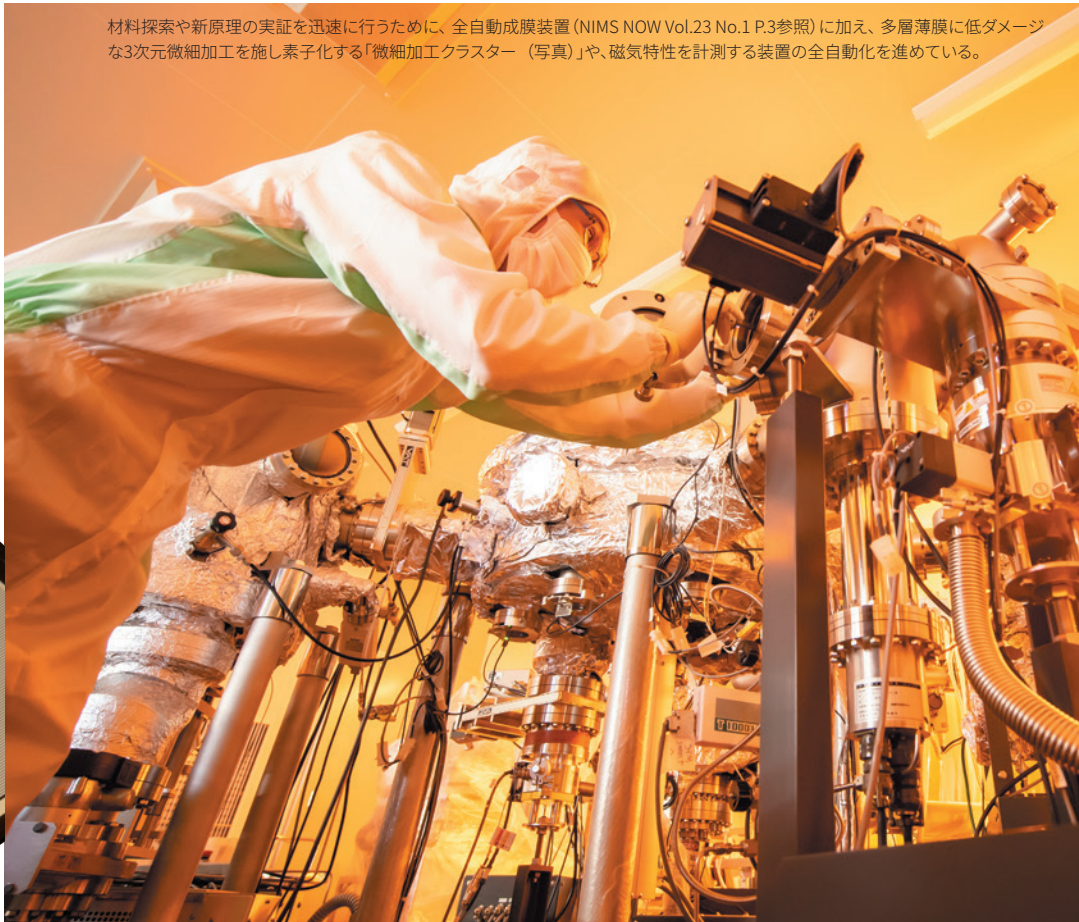
桜庭は試行錯誤の末、フィルムの上に磁性体の薄膜を素子化（P.5写真）。2018年、異常ネルンスト効果の活用によって、フレキシブルな熱流センサが動作することを世界で初めて実証した。

「薄膜なのでフレキシブルな点や、ゼーベック素子より製造コストが安価な点は、IoT社会において大きな強みとなるでしょう。現在の感度は1ワット毎平方メートル（W/m²）の熱流密度に対して1マイクロボルト（μV）程度で、実用化に向けてはさらに感度を高めていく必要があります。今後も解析・理論を担うグループとの強い連携を活かし、社会実装を目指します」（桜庭）

曲がりやすいフレキシブル熱流センサ（P.5写真）や、より感度の高い大面積熱流センサ（下写真）の試作に成功している。



材料探索や新原理の実証を迅速に行うために、全自動成膜装置（NIMS NOW Vol.23 No.1 P.3参照）に加え、多層薄膜に低ダメージな3次元微細加工を施し素子化する「微細加工クラスター（写真）」や、磁気特性を計測する装置の全自動化を進めている。



RESEARCH 5

スピンの基礎物性に迫り 新原理のコンピューティングを



葛西 伸哉

Shinya Kasai

スピン物性グループ
グループリーダー



世界最高のTMR比を示したTMR素子の作製において中心的な役割を果たした、グループの一員トーマス・シャイケNIMS特別研究員(右)と。

次世代メモリ「不揮発性磁気抵抗メモリ (MRAM)」の中で情報保持を担う「トンネル磁気抵抗 (TMR) 素子」。介川裕章らは、その性能の指標となる値 (TMR比) の世界最高記録を樹立。MRAMの大容量化や安定動作の実現に向け、TMR素子の品質を追求し続けている。

記録更新を支えた自動成膜装置と 独自設計の成膜プロセス

磁場による電気抵抗の変化を利用し、MRAMにおいてデジタルデータの“0・1”を記録している「TMR素子」(P.5に解説)。その電気抵抗の変化率、「トンネル磁気抵抗 (TMR) 比」が大きいほど、MRAMの高速化や省電力化、大容量化につながる。そのため、世界中の研究者がTMR比の向上を目指してしのぎを削っている。2008年には東北大学がTMR比604%を叩き出した。ところがその後、記録の更新は途絶えていた。

2023年4月、15年ぶりに世界最高記録を更新したのが介川らのグループだ。TMR比631%を示すTMR素子の開発という快挙を成し遂げた。

「TMR素子の性能のほとんどが、異種材料同士の『界面』の精度で決まります。今回、我々は磁性層にコバルト・鉄合金を、絶縁層に酸化マグネシウム (MgO) を用い、それらすべてを単結晶にしました。また、NIMS独自開発の自動成膜装置 (右写真) を用いて、磁性層は『スパッタリング法』、絶

縁層は『電子蒸着法』で成膜しました。それぞれの材料に適した成膜手法を選択することで、高品位で平坦な界面を実現させたわけです」(介川)

加えて、介川らは絶縁層MgOの下に、わずか0.6ナノメートルの金属マグネシウムの層を挿入。MgO界面の余分な酸素を吸収させることで、構造を安定化させた。さらに、MgOの上側の界面には、磁性層の積層直前にごくわずかな量の酸素ガスを吹き付けるなど、独自の工夫を幾重にも凝らしたという。

現象を突き詰め、革新的なデバイスを

TMR比631%という記録は、単結晶かつさまざまな成膜手法を駆使して界面の構造を極めるという、いわば理想的な条件を整えたことで到達した最高値だ。実用化に向けては、より製造コストの低い多結晶かつ、産業界で普及しているスパッタ法でも再現できることが望まれ、手法の置き換えを模索している最中だ。

「加えて今回、TMR比の値をプロットした

ところ、約500～600%の間で値が大きくゆらぐ現象が現れました。この現象自体は以前から知られていましたが、界面の欠陥が低減すれば消えると思われていました。ところが高品質化の結果、むしろゆらぎは増幅した——。TMR比の追求だけでなく、そうした未解明の現象を突き詰めることで、革新的なデバイスを実現していきたいですね」(介川)



介川らが独自開発した自動成膜装置。4つの「スパッタリング室」と搬送ロボット室で構成され、スパッタ室の1つには電子線蒸着源も組み込まれている。あらかじめ設定したプログラムに基づき、搬送ロボットが基板を各種材料の成長に適した成膜装置に自動搬送していく仕組み。「例えば、微量の酸素ガスを送り込むために供給シャッターをごくわずかな時間だけ解放する、人手では難しいそうした作業を正確かつ再現性高く実施することがこの装置では可能です」(介川)

数値計算は、開発した材料特性の理論的な裏付けや、新材料開発の指針をもたらす極めて重要なものだ。

三浦が率いる磁性理論グループは、磁性・スピントロニクス材料開発の“頭脳”として、材料の性能向上や新材料探索を支えている。

磁気センサの 性能低下の要因を解明

量子力学に基づいて、物質の構造や電気・磁気的性質、安定性などを予測する「第一原理計算」。コンピュータ上で、あらゆる物性を実験とは独立して厳密に予測できる。「いま扱っている材料の1つが、磁気メモリや磁気センサ用の『磁気抵抗素子』です(P.5に解説)。この素子は温度に非常に敏感で、常温では素子の性能を左右する『磁気抵抗比』の値が急激に下がってしまいます。その要因を特定してほしい、という材料研究者からの依頼を受けて、第一原理計算を行いました」(三浦)

磁気抵抗素子は複雑な多層膜構造を持つが、その機能発現の要となるのは、2層の強磁性体の間に非磁性体を挟み込んだ3層構造だ。三浦はその界面に着目し、計算を実施することにした。本来、第一原理計算では、絶対零度(−273.15℃)での物性しか予測できない。これを、材料が実際に使われる常温、いわゆる有限温度のもとでの物性予測を可能にするため、三浦は第一原理計算に他の理論を組み合わせた。

「有限温度領域では、物性には磁化の熱ゆらぎが大きく影響しますので、計算においても、熱統計力学に基づく熱ゆらぎの効果を電流の計算に加えることで、補正を行いました。計算の結果、実際に性能低下の原因が界面にあること、そして界面の原子構造を変えれば、温度上昇による性能低下を抑制できることを突き止めました(図)。これを材料研究者に伝えたことで、現在、材料の改良が進んでいます。もちろん、計算結果通りに材料をつくることは決して簡単ではありませんが、我々としては、まず指針を示すことが重要だと考えています」(三浦)

データ駆動による 磁性材料開発にも貢献

加えて昨今、データ駆動型の材料開発は研究現場において当たり前のものとなり、三浦のグループのメンバーもさまざまなプロジェクトに参画している。

「データ駆動型手法の開発を専門とするNIMS研究者との共同研究では、我々が第一原理計算で求めた結果を機械学習にかけてもらい、計算を高速化するためのモデル

構築を進めています」(三浦)

ほかにも、既存の磁気抵抗素子の強磁性体に含まれる希少元素、イリジウム(Ir)の価格急騰を背景に、Irを使わず性能の維持・向上が図れる磁性材料の提案を目指す。時代が求める磁性材料の開発に向け、その取り組みも進化を続けている。

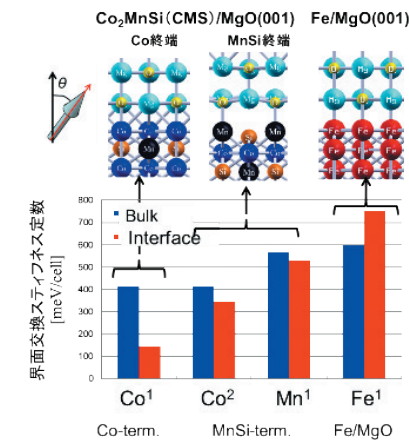


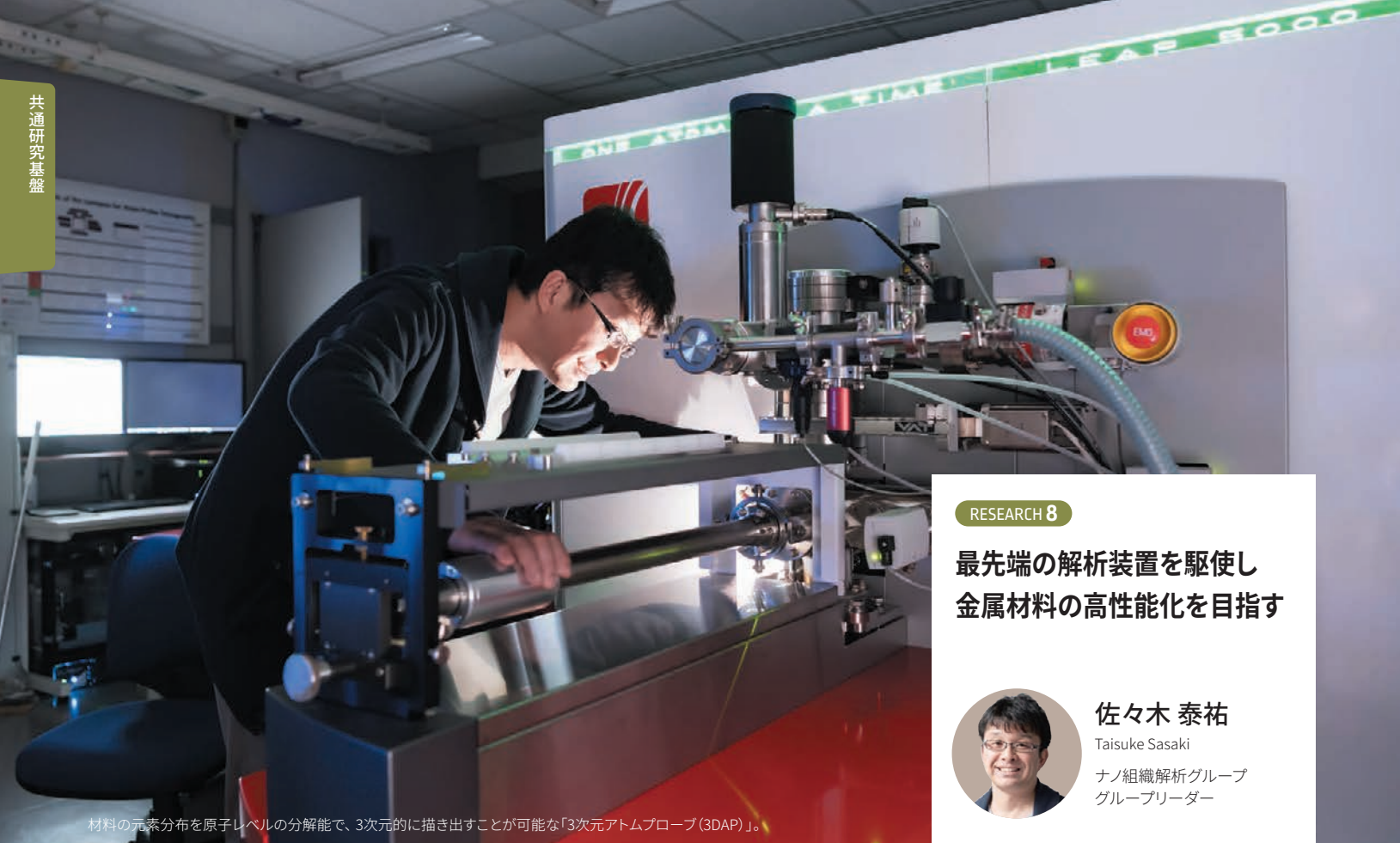
図 強磁性層にコバルト・マンガン・シリコン (Co₂MnSi) 合金を、絶縁層に酸化マグネシウム (MgO) を用いたTMR素子をターゲットに、常温下における界面の性質を第一原理計算で求めた。グラフ縦軸の「界面交換スティフネス」とは、界面でのスピンの堅さの指標。スピンの堅いほど、熱ゆらぎに強くなる。計算の結果、Co₂MnSi合金の界面がCo原子で終端されている場合(グラフ左端・赤)、熱ゆらぎが顕著に表れることが明らかになった。そこで、界面に鉄(Fe)の層を挟んだ場合を計算したところ(グラフ右端・赤)、常温でもスピンの堅い状態が保たれ、熱ゆらぎが生じにくくなることを見出した。

RESEARCH 7

数値計算で寄与！ 磁性材料開発の指針を示す



三浦 良雄
Yoshio Miura
磁性理論グループ
グループリーダー



材料の元素分布を原子レベルの分解能で、3次元的に描き出すことが可能な「3次元アトムプローブ (3DAP)」。

RESEARCH 8

最先端の解析装置を駆使し
金属材料の高性能化を目指す

佐々木 泰祐

Taisuke Sasaki

ナノ組織解析グループ
グループリーダー

電子顕微鏡や3次元アトムプローブなど、ナノ組織の詳細な観察が可能な高度解析装置。ナノ組織解析グループでは、これらを駆使したマルチスケール解析により金属材料の研究開発を支えている。グループリーダーの佐々木泰祐に話を聞いた。

マルチスケール解析で
金属材料を多面的に観る

材料の特性は、それを構成する元素だけでなく、作製の過程で形成される微細組織とも密接に関係している。しかも特性に影響を及ぼす組織は、ナノスケールからミクロスケールまで広範にわたる。だからこそ、微細組織をマルチスケールで多面的に解析する必要がある。佐々木が率いる「ナノ組織解析グループ」では、目的に応じて複数の装置を併用することで、磁性材料をはじめとする各種金属材料を対象に、微細組織と特性との関係解明を進めている。

主に、佐々木らが解析に用いている装置は、透過型電子顕微鏡 (TEM)、集束イオンビーム (FIB) と走査型電子顕微鏡 (SEM) の複合装置、そして3次元アトムプローブ (3DAP) だ。

TEMは、試料を透過した電子線を捉えることにより材料の構造を原子レベルの分解

能で解析できる。SEMは、TEMに比べると分解能では劣るものの、材料のミクロ～ナノスケールの微細組織を詳細に解析可能だ。さらにFIBによる微細加工を用いれば、試料表面の加工とSEM観察を繰り返すことで3次元画像が得られるだけでなく、TEM観察用の試料を任意の場所から削り出すこともできる。他方、3DAPは、材料の3次元の元素分布を原子レベルの分解能で解析し“元素マップ”を描くことができる最先端のナノ組織解析装置だ。

「3DAPはナノ領域における元素分布などの解析を得意とする一方で、結晶構造やミクロレベルの元素分布などは解析できません。その場合にはTEMやSEMを併用するというように、それぞれの装置で弱点を補完し合いながら解析を行っています」(佐々木)

HDDの次世代リードヘッド研究に貢献

ナノ組織解析グループは、磁性・スピントロニクス材料研究センターで研究開発が進むあらゆる材料の解析を担当し、材料の設計指針を提示している。実際に「ナノ組織解析グループの解析データあってこそ」と、その貢献を評価する声は大きい。

一例に、ハードディスクドライブ (HDD) のリードヘッド用途等で研究開発が進む「面直通電型巨大磁気抵抗 (CPP-GMR) 素子」がある。強磁性層と非磁性金属層から成る3層構造が、機能発現の要だ。

「あるとき『磁気機能デバイスグループ』の桜庭裕弥 (P.10参照) から、自らが作製したCPP-GMR素子について『磁気抵抗比をさらに向上させるためのヒントを得たい』と相談を受けました。そこで、走査透過電子顕微鏡法 (STEM) やエネルギー分散型X線分光法 (EDS) を組み合わせ、強磁性層と非磁性金属との界面構造やその元素分布を

解き明かしていききました(図)」(佐々木) さらに、この解析結果を「理論磁性グループ」の三浦良雄 (P.13参照) と共有し、第一原理計算の結果と比較。どのような微細組織をつくれれば磁気抵抗比が向上するか、考察を深めていった。

これらの結果が礎となり、磁気機能デバイスグループでは、低温下では世界最高性能を示すCPP-GMR素子の開発を実現。さらなる記録更新に向け、共に歩みを続けている。

自ら材料開発も。

高性能磁石に含まれる希少元素を削減

佐々木らは、微細構造の解析を通して材料の研究開発を下支えする役割を担うだけでなく、解析結果に基づき自らも材料開発を行っている。ここ10年ほど取り組んでいるのが「ネオジム磁石」だ。ネオジム磁石とは、ネオジム (Nd) ・鉄 (Fe) ・ホウ素 (B) を主原料とした最強の磁石だ。電気自動車 (EV) の駆動モーターに使われていることから、近年需要が急増している。

ネオジム磁石は元来、高温になると保磁力が減少してしまう性質を持つ。一方、EVの駆動モーターの動作環境は150℃以上にも達するため、重希土類金属元素のジスプ

ロシウム (Dy) などを添加することで耐熱性を高めたネオジム磁石が使われている。

しかし、Dyは希少元素であり、その使用量削減は喫緊の課題である。そこで、NIMSでは長年、磁石の微細組織を原子スケールで詳細に解析し、保磁力との関係について解明を進めてきた。実際に、磁石の設計指針となる数々の重要な知見が得られている。

「かつては、ネオジム磁石の結晶と結晶の境界 (結晶粒界) にはNdが濃縮していて、これが耐熱性を発現させるカギとなっていたと考えられていました。ところが、2012年にホセイン・セペリ-アミン (P.7参照) らが、結晶粒界には相当量のFeが存在することを見出し、粒界のFeを減らせばさらなる耐熱性向上の可能性があることを示しました。そこで私は市販の磁石と、元素 (Ga) の添加によって耐熱性を高めた磁石について、微細組織や結晶粒界の磁気特性をSEMやTEMで詳しく解析しました。すると、確かに耐熱性を高めた磁石の方が、結晶粒界に存在するFeの量が少ないことが確認できました」(佐々木)

次いで佐々木らは、ネオジム磁石の改良に取り組んだ。組織制御法として2010年にセペリ-アミンらが確立した「共晶合金拡散法」を取り入れ、Dyの添加量を減らす代わ

りにプラセオジウム (Pr) や銅 (Cu) といった他の元素を結晶粒界に拡散させた。

「その結果、Dyを合金化したネオジム磁石と比べて、わずか10分の1程度のDy添加量で、優れた耐熱性を発揮させることに成功しました。SEMやTEM、3DAPによる解析結果から、確かに結晶粒界に存在するFeを低減できていること、そして磁石の結晶粒の表面のみに局所的にDyを配置したことが、成功の要因であることが明らかになりました(図2)」(佐々木)

ほかにもナノ組織解析グループでは、3DAPによる水素のナノスケール3次元イメージングのほか、解析用の試料作製の自動化にも取り組むなど、解析技術の高度化にも取り組んでいる。解析目的に応じて的確な領域から試料を削り出すいわば“匠の技”を、装置が全自動で遂行できるよう制御プログラムを開発中だ (NIMS NOW Vol.23 No.1 P.15参照)。

「NIMSの強みは、材料研究者が『この材料の組織構造が見たい』と思ったら、我々がすぐにそれを解析できる体制にあります。また、我々自身も可能な限り材料の開発に取り組むことで材料の開発スピードを加速できるのです」と語る佐々木。これからも同センターの材料研究を支えるとともに、自らもたゆまず進化を遂げていく。

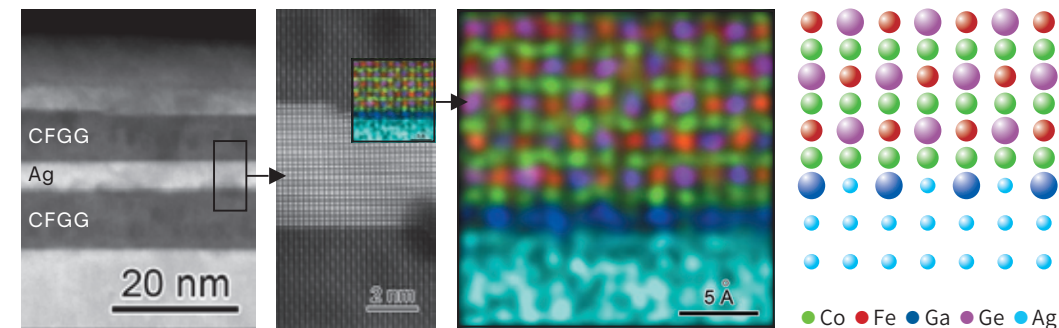


図1 ホイスラー合金系ハーフメタルを用いたCPP-GMR素子の界面構造と元素分布
まずは、走査型透過電子顕微鏡 (STEM) で試料表面の構造を広範囲に観察。強磁性層と非磁性金属層の厚さや界面の平坦性を評価した後、STEM、EDSにより元素分布を詳細に分析した。その結果、強磁性層にホイスラー合金系ハーフメタルの $\text{Co}_2\text{FeGa}_{0.5}\text{Ge}_{0.5}$ (CFGG) を、非磁性金属層にAgを用いた場合、ハーフメタルの終端がCo層となるとともに、Ag層との間にGaとAgが交互に並んだ層が存在することが明らかに。磁気抵抗比の向上の指針が得られた。

● Co ● Fe ● Ga ● Ge ● Ag

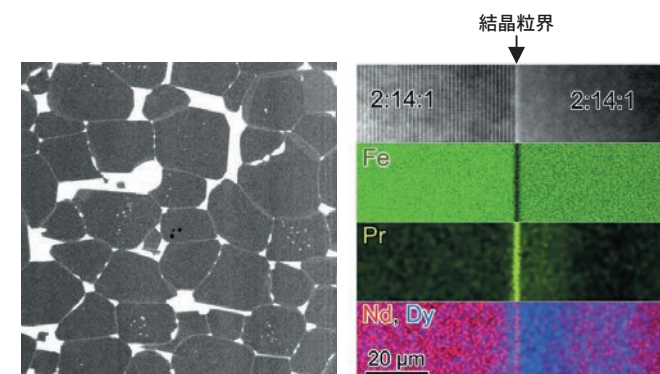


図2 左は、粒界拡散処理を施した「省Dyネオジム磁石」のSEM像。右は、結晶粒界付近のSTEM-EDS像。色のついた部分が元素の存在を表す。結晶粒界ではFeの濃度が低い一方、Ndや拡散させたPrが濃縮している。また、結晶粒の表面のみにDyが存在していることもわかる。

エンジニア職のお仕事、大公開。

研究を躍進させるのは
あなたの熱意と技術力

学生向け

オンラインで気軽に参加！
業務説明会第1回
1/31第2回
2/21職場を実際に体験！
職場見学会 & 座談会

3/5

【対象】材料系、化学系、物理系、電気・電子系、機械系、情報系等を専攻の方
2025年卒業見込みの学生（既卒・'26以降卒の方も参加可能）〈事前申し込み制 先着順〉 詳細・申し込みは
右のQRコードから

NIMS NOW vol.23 No.6 通巻203号 2024年1月発行

国立研究開発法人 物質・材料研究機構

〒305-0047 茨城県つくば市千現1-2-1 TEL 029-859-2026 FAX 029-859-2017 E-mail inquiry@nims.go.jp Web www.nims.go.jp

定期購読のお申し込みは、上記FAX、またはE-mailにて承っております。 禁無断転載 © 2023 All rights reserved by the National Institute for Materials Science

表紙：熱電永久磁石（P.2に解説） 撮影：塚田直寛（STASH）（表紙、P.2）、石川典人（P.6-15） 文：山田久美（P.6、P.10-15）、竹林篤美（P.8-9）、ロバート・キャメロン（P.7） デザイン：Barbazio 株式会社

R270

古紙配合率 70% 再生紙を
使用しています

植物油インキを使用しています

ISSN 2436-3502