

イオン注入法による Fe 及び Cu 超微粒子形成と GMR 特性

Formation of Fe and Cu Nano-Cluster by Ion Implantation and the GMR Properties

森脇 隆行^{*1}(学生員), 林 伸行^{*2}, 坂本 勲^{*3}, 鳥山 保^{*4}, 若林 英彦^{*4}, 谷脇 雅文^{*5}Takayuki MORIWAKI (Stu. Mem.), Nobuyuki HAYASHI, Isao SAKAMOTO, Tamotu TORIYAMA,
Hidehiko WAKABAYASHI, Masafumi TANIWAKI

The formation of iron and copper nano-clusters in crystalline SiO₂ by ion implantation is studied. The implantation of ⁵⁷Fe and Cu ions was performed at room temperature up to a total dose of 1.9×10^{17} ions/cm² with projectiles energy of 74 keV and 80 keV, respectively. It is shown by the measurements of conversion electron Mössbauer spectroscopy (CEMS) and glancing angle X-ray diffraction (GXR) that Si atoms are dissolved into the precipitated iron nano-clusters in the Fe/SiO₂. Moreover, the implantation of Fe ions formed the iron nano-clusters precipitates rapidly and effectively in SiO₂ matrix. Furthermore, it is indicated that the addition of Cu ions into Fe/SiO₂ promotes the transition from superparamagnetic to ferromagnetic states, suggesting the formation of metastable Fe-Cu alloy nano-clusters.

Keywords: ion implantation, nano-cluster, Fe-Si, Fe-Cu, SiO₂, Mössbauer spectroscopy, GMR effect

1 緒言

ナノ微粒子が、特殊な物理的及び化学的特性を示すことはよく知られている。近年、酸化物絶縁体中に埋め込まれた金属ナノクラスターの複合組織が、それら特有の光学的、電気的及び磁気的特性を有するという理由で多くの注目を集めている[1,2]。絶縁性高融点酸化物中への磁性金属イオン注入は、グラニューラ膜形成に用いられ、それらは磁気記憶メディア、磁気冷凍などの分野において重要な応用の可能性を示している。中でも、トンネル型磁気抵抗 (Tunneling-type Magneto Resistive : TMR) 効果は、それぞれ厚さ数 nm の強磁性薄膜と酸化物薄膜のサンドイッチ構造 (多層膜) や、磁性微粒子を構成要素とするグラニューラ膜等において実現されていてナノ材料技術として注目されている。後者では、非磁性酸化物絶縁体中に分散された強磁性金属微粒子に外部磁場を印加することによって微粒子の磁化方向が揃い電子のトンネルリング確率が増加し、電気抵抗の減少が起こり巨大磁気

連絡先: 森脇 隆行, 〒782-5802 高知県 土佐山田町 宮ノ口 185, 高知工科大学大学院 工学研究科 基盤工学専攻
e-mail: 086103f@gs.kochi-tech.ac.jp ^{*1} 高知工科大学大学院
^{*2} 久留米工業大学 ^{*3} 産業技術総合研究所 ^{*4} 武蔵工業大学
^{*5} 高知工科大学

抵抗 (Giant Magneto Resistive : GMR) 効果が発現されている。TMR 効果は、磁気ランダムアクセスメモリー (Magnetic Random Access Memory : MRAM) や HDD の再生磁気ヘッドとしての応用も視野に入れた研究開発が活発に進められている。

林らは、 α -Al₂O₃ 及び MgO 単結晶基板中への Fe イオン注入によって製作された磁性を有するグラニューラ層が、顕著な TMR 効果を示すことを見出した[3,4]。さらに、著者らはイオン注入法において今まで明確にされていなかった合金微粒子作製の可能性を調べる研究も行っており、Fe-Co 微粒子形成についての知見も得てきた[5]。本研究では、特に新規なナノサイズの磁性合金微粒子が絶縁性酸化物中に分散する合金系グラニューラ材料を開拓することを目的とし、更なる多様なグラニューラ層を創製するために SiO₂ 絶縁基板に着目した。SiO₂ は、現代の電子工学の観点から金属ナノクラスターを分散させるのに魅力的な基板材料である。そして、イオン注入は、粒子サイズ及び組成をコントロールして合成することができるナノクラスター作製技術でシリコンデバイス技術に適している。そこでこの報告では、Fe イオンを crystalline SiO₂ (c-SiO₂ : 水晶) 並びに amorphous SiO₂ (a-SiO₂ : 石英) 基板に注入し、構造及び電気・磁気物性を評価した。

その結果, Fe/Al₂O₃ に比べて低いドーズ量で超常磁性緩和のブロックが引き起こされることと Fe-Si 合金微粒子が形成されていることが明らかになった。また, SiO₂ 基板の結晶・非結晶による差異は見られなかった。さらに加えて, Fe/c-SiO₂ に Cu イオンを追加注入した場合に TMR 特性の改善をもたらすか否かについて調べた結果についても報告する。

2 実験方法

⁵⁷Fe⁺イオンを 1.0~2.5×10¹⁷ ions/cm² のドーズで高純度水晶 (c-SiO₂) 基板 (0001) 面並びに石英 (a-SiO₂) 基板へ注入してサンプル作製を行った。この中の 1.0×10¹⁷ 及び 1.2×10¹⁷ ions/cm² の Fe/c-SiO₂ サンプルについては, さらに続けて ⁶³Cu⁺イオンをそれぞれ 0.7×10¹⁷ ions/cm² ずつ追加注入して微粒子を形成しグラニュー層を作製した。Table 1 に本研究に用いたサンプルをまとめた。ターゲットは, イオンビームに対して傾き 5° で取り付け, そしてこのターゲットに対する ⁵⁷Fe⁺ 及び ⁶³Cu⁺イオンの入射エネルギーは, それぞれ 74 keV 及び 80 keV であり, ビーム電流は数 μA/cm² である。⁵⁷Fe⁺ 及び ⁶³Cu⁺イオンの投射飛程は, TRIM code のシミュレーションから約 50 nm であると計算された。

グラニュー層中の結晶構造については, 低入射角 X 線回折法 (Glancing Angle X-Ray Diffraction : GXRD) によってその特性を測定した。GXRD は, Cu ターゲットを用い入射角 $\theta=2.5^\circ$ で測定した。得られた GXRD 回折ピークについては, ガウス曲線を仮定して最小二乗法によるフィッティングを行い, ピーク位置や半値幅などのパラメータを求めて構造解析を行った。また, Fe と Cu を注入した Fe-Cu/c-SiO₂ サンプルに対しては, bcc 鉄 (110) ピークと fcc 銅の (111) ピークを二つのガウス関数を用い, 最小二乗法によって解析を行った。

イオン注入でマトリクス中に形成された微粒子の物性と集積状態を明らかにする目的で, 内部転換電子メスバウアースペクトル法 (Conversion Electron Mössbauer Spectroscopy : CEMS) を用いて超微細相互作用を調べた。CEMS 法は, 注入イオンである ⁵⁷Fe 自身がその測定プローブとなることと, 内部転換電子の飛程が表面層から約 100 nm (注入イオンの深さとほぼ同程度) であることによって, イオン注入層の超微粒子の物理状態を原子スケールで高感度にかつ効率よく解明するのに非常に有力な手法であり, 我々の研究法の最大の特徴である。CEMS は, He+4%CH₄ ガスフロー型比例計数管により, Rh マト

Table 1 Implantation conditions for the sample.

| Matrix | Dose | |
|--------------------|----------------------------|----------------------------|
| | Fe [ions/cm ²] | Cu [ions/cm ²] |
| a-SiO ₂ | 1.5×10 ¹⁷ | |
| | 1.0×10 ¹⁷ | |
| | 1.2×10 ¹⁷ | |
| | 1.5×10 ¹⁷ | |
| c-SiO ₂ | 2.0×10 ¹⁷ | |
| | 2.5×10 ¹⁷ | |
| | 1.0×10 ¹⁷ | 0.7×10 ¹⁷ |
| | 1.2×10 ¹⁷ | 0.7×10 ¹⁷ |

リックス中の 740 MBq ⁵⁷Co 線源を用いて測定した。得られたスペクトルについては, 超微細相互作用のパラメータを得るために, ローレンツ曲線の重なりとし最小二乗法により解析を行った。

サンプルの磁気抵抗 (Magnetoresistance : MR) 比を調べるために磁場を印加した時の抵抗変化を測定した。MR 測定は, 電磁石を用いて最大約 ±1.2 T の外部磁場を印加した時の抵抗変化を直流二端子法によって測定を行った。実験は全て室温で行った。

3 結果と考察

3.1 Fe/SiO₂ 基板中の微粒子とその物性評価

Fig.1 は, 結晶と非結晶の二種類の SiO₂ 基板の注入層から得られた GXRD パターンを示す。2 $\theta=44.5^\circ$ 付近のピ

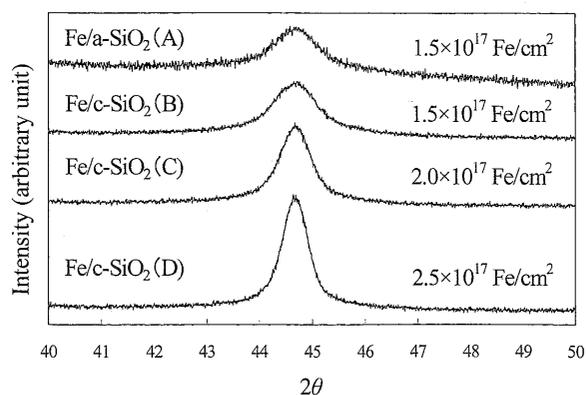


Fig.1 GXRD patterns from the implanted layers with total doses of 1.5×10^{17} Fe/cm² (Fe/a-SiO₂;A), 1.5×10^{17} (Fe/c-SiO₂;B), 2.0×10^{17} (Fe/c-SiO₂;C) and 2.5×10^{17} Fe/cm² (Fe/c-SiO₂;D).

ークは, bcc の α -Fe (110) 面からの回折に相当している。Fig.1 から注入量が増加するにつれてピーク強度が増し, 半値幅が小さくなっている。これらのピークの解析結果から得られたパラメータを Table 2 にまとめた。格子定数は, α -Fe (Bulk) の 0.287 nm の値に一致している。また, 注入量を増すにつれて半値幅が小さくなっている。この結果は, Fe イオン注入によって α -Fe 微粒子が形成され成長していることを示している。すなわち, 基板中の鉄濃度の増加は, クラスターの成長をもたらしている。一方, Fig.1 並びに Table 2 の c-SiO₂ 及び a-SiO₂ 基板への 1.5×10^{17} ions/cm² まで注入した結果を比べると, 基板が結晶であるか非結晶であるかの違いでは α -Fe の析出に影響していない。さらに, Al₂O₃ 基板への Fe イオン注入の場合[6]と比べてみると, 1.5×10^{17} ions/cm² 以上のドーズ量を持つ SiO₂ 基板中の鉄ナノ微粒子は, 同じドーズ量 1.5×10^{17} ions/cm² の Fe/Al₂O₃ より 2 倍以上大きいこと, すなわち, α -Fe 微粒子の成長が速やかに行われていることが明らかとなった。

Fig.2 (A)は, 1.0×10^{17} Fe/cm², Fig.2 (B)は, 1.2×10^{17} Fe/cm² のドーズまで注入した c-SiO₂ 基板からの CEM スペクトルであり, Fig.2 (C)は, 1.5×10^{17} Fe/cm² のドーズまで注入した a-SiO₂ 基板についてのスペクトルを示している。Fig.2 (A)及び(B)のクラスターサイズは, GXRD の解析からそれぞれ半径 10 及び 14 nm として得られている。Fig.2 (A)は, 単一のシングレット, 一つの第二鉄 (Fe³⁺) 及び二つの第一鉄 (Fe²⁺) 状態からの三種のダブルット (四極子分裂) と一つのシックスツェット (磁気分裂) から成り立っている。0 [mm/s]付近にピークを持つシングレットピークは, そのアイソマーシフト (I.S.) から α -Fe (Fe⁰) とみなすことができる。このシングレットピークは, 本来強磁性である α -Fe 粒子のサイズが nm 程度の小ささであることに起因して超常磁性特性を示すことにより現れている[3]。Fe³⁺ と Fe²⁺ のイオン化状態に割り当てられているダブルットは, ナノコンポジットを成す酸化物基板中

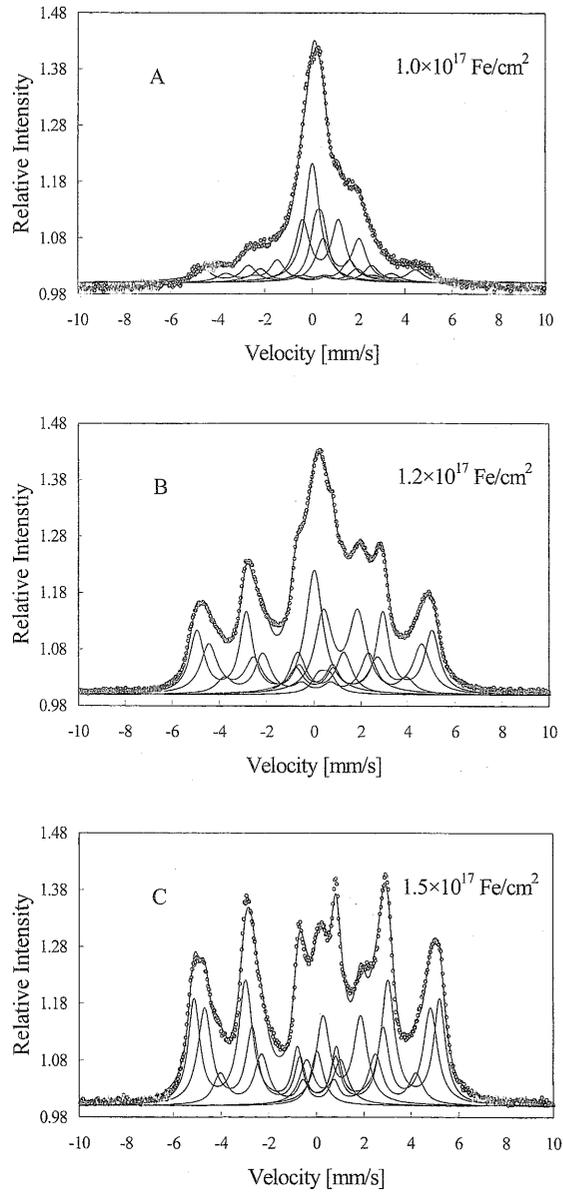


Fig.2 CEM spectra of the Fe/c-SiO₂ granules for 1.0×10^{17} Fe/cm² (A) and 1.2×10^{17} Fe/cm² (B), and the Fe/a-SiO₂ granules for 1.5×10^{17} Fe/cm² (C). The spectra are composed of one singlet, three doublet, and a set sextet peaks.

Table 2 GXRD parameters obtained for the Fe/c-SiO₂ and the Fe/ a-SiO₂ sample in Fig. 1.

| Sample Number | Matrix | Dose [Fe/cm ²] | 2 θ | Peak width | Lattice Parameter [nm] | Granule's Clusters Diameter [nm] |
|---------------|--------------------|----------------------------|------------|------------|------------------------|----------------------------------|
| A | a-SiO ₂ | 1.5×10^{17} | 44.69° | 0.524° | 0.2865 | 16 |
| B | | 1.5×10^{17} | 44.67° | 0.486° | 0.2866 | 18 |
| C | c-SiO ₂ | 2.0×10^{17} | 44.67° | 0.354° | 0.2866 | 24 |
| D | | 2.5×10^{17} | 44.67° | 0.292° | 0.2866 | 29 |

で酸素と結合し、また欠陥も含むナノ鉄酸化物複合体であると仮定されている[7]。Fig.2(A)では、中心ピークの周辺をフィットさせるために一組のシックスレットが加えられている。Fe/c-SiO₂ グラニューラーでは、この磁気分裂ピークであるシックスレットが 1.0×10^{17} ions/cm² のような低いドーズにおいてさえ現れ始めており、超常磁性のほかに強磁性を示すナノクラスターの存在を指し示している。この磁気分裂ピークを示すシックスレットは、粒径が大きくなり強磁性を示すようになった α -Fe のスペクトルである。Fig.2 (B), (C)のスペクトルの変化から、Fe ドーズの増加によって超常磁性のシングレットピークにとって代わって α -Fe の強磁性成分が増大していく様子が明らかである。ここで超常磁性緩和時間 τ は、Langevin の式 (1) から

$$\tau = \tau_0 \exp\left(\frac{KV}{k_B T}\right) \quad \tau_0 \approx \ln s \quad (1)$$

と表される。ここで K は異方性定数、 V は粒子体積、 k_B はボルツマン定数、そして T は温度である。すなわち、微粒子の粒径が大きくなり体積 V が増すと、超常磁性緩和がブロックされて強磁性を示すようになるのである。

強磁性成分が強くなる Fig.2 (B)では、Fig.2 (A)に比べてその成分が三つに分解されることが明らかとなっている。なお、Fe/Al₂O₃ ナノコンポジットでは、超常磁性緩和が室温でブロックされる α -Fe グラニューラーの臨界サイズは、 $(1.5 \sim 2.0) \times 10^{17}$ ions/cm² のドーズで形成されることを我々は示してきた。したがって、Fe/SiO₂ 中の強磁性クラスターは、Fe/Al₂O₃ 中に比べて 0.5×10^{17} ions/cm² ほど少ないドーズで現れる。すなわち、注入した Fe が、SiO₂ マトリックス中では速く成長することを指し示している。その結果は、GXR D の結果と一致している。

次に Fig.2(B)及び(C)の三つの強磁性成分について考察してみる。Fe-Si 合金は、ここ数十年間非常に強い関心をもたれた材料であり、濃度の低いシリコン合金が実用的見地からもよく研究されている。0~10 at.% の Si を含む

不規則合金においては、最近接格子配置に異なった溶質 Si 原子をもつ Fe 原子が Si 原子数に応じて異なる内部磁場 (B_{hf}) を持つことと、またその合金中の $I.S.$ が最近接配位数中の Si の増加に対して規則正しく増加することがよく知られている。Fig.2(B)及び(C)中のスペクトルは、三つの内部磁場をもつ磁気分裂に分解され、それらのパターンは不規則 Fe-Si (Bulk) 合金に対して得られた結果と非常に似ている[8]。強磁性鉄クラスターのスペクトル解析から得られた超微細パラメータを Table 3 にまとめた。Site1 に対する内部磁場 321 及び 310 kOe の値は、Fe (Bulk) の B_{hf} の 330 kOe に近いが約 10~20 kOe の差がある。この違いは、ナノ微粒子内の磁化の集団励起によって起こると考えられる[9]。Site2 及び 3 に対する B_{hf} と $I.S.$ 値の相対的な変化量は、Fe-Si (Bulk) 合金における変化によく一致している。したがって、三つの Site は、8, 7 及び 6 ヶの最近接 Fe 原子を持っている Fe 原子に相当すると考えられる。すなわち、後の二つの場合は、bcc 格子中の Fe-Site に対して 1 ヶ及び 2 ヶの Si 原子を持つ構造に相当している。Site3 の強度から判断して、その Si 含有量は 5~10 at.% の範囲にあると見積もられる[8]。従来、SiO₂ へのイオン注入による鉄クラスター形成については幾つかの研究例はあるが、Si 原子の混入については報告されていない。CEMS 測定によってそのクラスター中に基板の Si 原子が含まれて Fe-Si 合金超微粒子が形成されることが初めて明らかになった。これら Si 原子は、イオン注入の衝突カスケードを経て鉄微粒子が析出される間に SiO₂ マトリックスから混入されたと考えられる。このような Si 混入は熱力学的見地からも妥当である。一方、Fe/Al₂O₃ の場合には、イオン注入の間にマトリックスからの Al 原子は含まれていない。何故なら、強磁性クラスターが一つの内部磁場成分しか持たないからである[10]。

3.2 Fe-Cu/SiO₂ 基板の物性評価

Fig.3 は、 1.0 及び 1.2×10^{17} ions/cm² まで Fe イオンを注

Table 3 Mössbauer parameters of iron nano-particles present in implanted the Fe/c-SiO₂ and the Fe/a-SiO₂ sample, obtained from Fig.2 (B) and (C). The column* shows the B_{hf} change relative to the site 1.

| Sample | Implantation Fe ions [ions/cm ²] | B_{hf} [kOe] | | | Hyperfine Parameters B_{hf}/B_{hf1}^* | | | Isomer Shift [mm/s] | | |
|-----------------------|--|----------------|--------|--------|--|--------|--------|---------------------|--------|--------|
| | | Site 1 | Site 2 | Site 3 | Site 1 | Site 2 | Site 3 | Site 1 | Site 2 | Site 3 |
| Fe/c-SiO ₂ | 1.2×10^{17} | 310.4 | 281.0 | 240.0 | 1.000 | 0.905 | 0.773 | 0.033 | 0.073 | 0.076 |
| Fe/a-SiO ₂ | 1.5×10^{17} | 321.4 | 295.8 | 256.3 | 1.000 | 0.920 | 0.797 | 0.023 | 0.058 | 0.091 |
| Bulk Fe-Si alloy | | | | | 1.000 | 0.917 | 0.834 | 0.010 | 0.030 | 0.090 |

入した c-SiO₂ サンプルと、それらのサンプルにそれぞれ Cu イオンを 0.7×10¹⁷ ions/cm² まで注入して合計ドーズ量を 1.7×10¹⁷ 並びに 1.9×10¹⁷ ions/cm² にしたサンプルからの GXR D パターンを示している。すべて 2θ=44.5° 付近で bcc の α-Fe (110) 面からの回折に相当するピークが現れている。そしてさらに、2θ=43.4° 付近に追注入した Cu の回折ピークが現れていることにも注目される。すなわち、注入した Cu イオンもまた集積・析出して微粒子を形成している。Fig.3 の回折パターンを解析した結果を Table 4 にまとめた。Fe の bcc (110) 及び Cu の fcc (111) の格子定数は、それぞれ α-Fe (Bulk) の 0.287 nm 及び Cu (Bulk) の 0.365 nm の値とほぼ一致する。しかしながら、鉄クラスターの格子定数が Cu イオンの追加注入後にわずかに増加していることは、鉄クラスター中に Cu 原子が混入している可能性を示している。さらに、Cu イオン注入後の Fe のピーク幅が、注入前のピークより小さくなっていることから鉄の粒径が増加していることが示唆されている。

Fig.4 は、Fig.3 で示した Fe+Cu/c-SiO₂ サンプルの CEM スペクトルを示す。Fig.4(A) と Fig.2(A) 及び Fig.4(B) と Fig.2(B) の CEM スペクトルを比べてみると、非磁性原子 Cu を追加したにも関わらず磁気分裂ピークが著しく増加している。

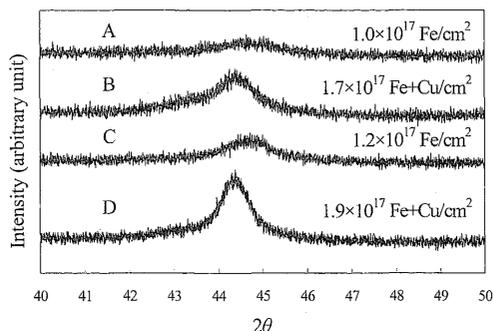


Fig.3 GXR D patterns from the Fe and Cu implanted c-SiO₂ layers with total doses of 1.7×10¹⁷ Fe+Cu/cm² (A), 1.0×10¹⁷ Fe/cm² (B), 1.9×10¹⁷ Fe+Cu/cm² (C), and 1.2×10¹⁷ Fe/cm² (D).

Table 4 GXR D parameters obtained for the Fe/c-SiO₂ sample in Fig.3.

| Sample Number | Implantation ions | | 2θ | | Lattice parameter | |
|---------------|----------------------------|----------------------------|----------|----------|-------------------|---------|
| | Fe [ions/cm ²] | Cu [ions/cm ²] | Fe (110) | Cu (111) | Fe [nm] | Cu [nm] |
| A | 1.0×10 ¹⁷ | | 44.63° | | 0.2869 | |
| B | 1.0×10 ¹⁷ | 0.7×10 ¹⁷ | 44.40° | 43.33° | 0.2881 | 0.3614 |
| C | 1.2×10 ¹⁷ | | 44.66° | | 0.2867 | |
| D | 1.2×10 ¹⁷ | 0.7×10 ¹⁷ | 44.38° | 43.40° | 0.2884 | 0.3609 |

ただし、内部磁場は減少しており (Fig.5 を参照のこと)、またピーク幅も広がって 3 つの磁気構造の差が隠されてしまうなどスペクトルパターンにも大きな変化が現れている。この原因としては、先ず、鉄クラスター中へ Cu イオンが混入していること、さらにこの Cu イオンが磁気異方性エネルギーの増大をもたらす、超常磁性緩和のブロッキングを引き起こしていることが考えられる。Pereira de Azevedo らは、Cu 基板中への Fe イオン注入を報告している。注入の結果からマトリクス中における鉄クラスターの形成のほか、一部の Fe 原子が Cu 中に固溶することを CMES によって示している[11]。

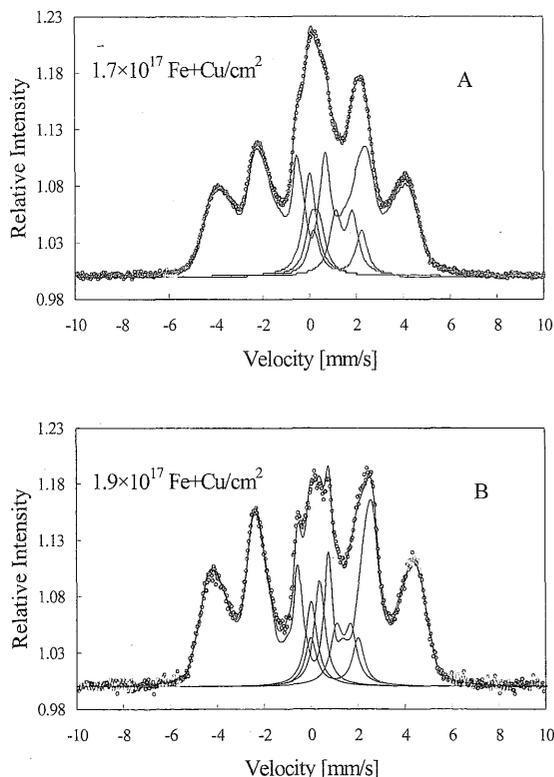


Fig.4 CEM spectra from the Fe and Cu implanted c-SiO₂ layers with total doses of 1.7×10¹⁷ Fe+Cu/cm² (A) and 1.9×10¹⁷ Fe+Cu/cm² (B).

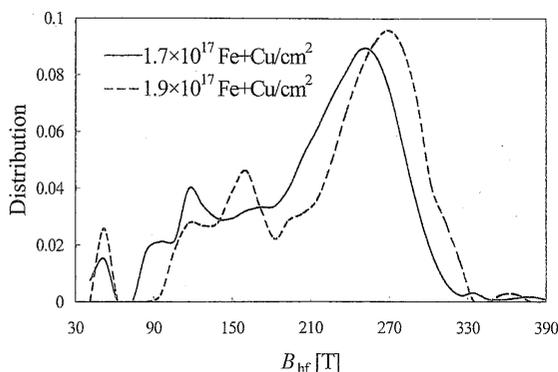


Fig.5 The distribution of internal fields in the Fe and Cu implanted c-SiO₂ layers with doses of 1.7×10^{17} Fe+Cu/cm² (solid curve) and 1.9×10^{17} Fe+Cu/cm² (broken curve).

Fig.5は、Fig.4(A)及び(B)の二つのCEMスペクトル解析から得た内部磁場 (B_{hf}) の分布を示す。分布のピークは270 kOeであるが、小さな内部磁場を持つ強磁性相の成分が多いことは注目すべきである。 B_{hf} の平均値は、それぞれのスペクトルに対して212 kOe及び216 kOeとして得られた。 B_{hf} 値の減少及び幅広い分布は、注入によって鉄ナノクラスター中に溶け込んだCu原子の存在によって引き起こされていると考えられ、Fe-Cu合金微粒子が形成されていることが明らかである。そして、合金化や金属原子のクラスター化の機構については、熱スパイクの役割を考慮に入れた多くのモデルが提案されている[12]。Fe-Cu合金の形成は、GXR Dで得られた鉄クラスターにおける格子定数の増大と一致している。ただし、Fe/SiO₂マトリックス中へのCu注入の場合には、Fe-Si-Cu合金の形成を考える必要があるだろう。

林らがイオン注入によって作製したFe/Al₂O₃グラニューラーでは約7.5%、そしてFe/MgOグラニューラーでは約3.5%となるMR比を得ている[3,4]。しかし、イオン注入で作製したFe/SiO₂では、 $H=1.2$ Tに対して1%より小さいMR比しか得ることが出来なかった。このGMR効果出現の違いは、注入層中の鉄ナノクラスターの分散状態の違いに起因する。すなわち、SiO₂層中の鉄微粒子の成長の早さがGMR効果を小さくする原因であると考えられる。そこでFe/c-SiO₂サンプルに鉄と合金化しにくい銅をイオン注入して微粒子の分散数を増すことによって導電性を改善し、それによってMR比が向上することを期待して追注入を行ったがMR比や伝導性の向上を観測することはできなかった。Fe-Cu/c-SiO₂ナノコンポジットは、鉄クラスター中にさらに銅ナノクラスターが形成されている可能性も考えられる。

4 まとめ

イオン注入法によってSiO₂表面層の磁気特性がどのように改善されるかについて、GXR D (斜入射X線回折法) 及びCEM S (内部転換電子メスバウアー分光法) を併用して調べ、以下の結果を得た。

- 1) 作製されたSiO₂グラニューラー層は、Fe/Al₂O₃よりも少ないドーズで超常磁性から強磁性相への転移を示し、SiO₂マトリックスに注入されたFe原子が大きなサイズのナノクラスターへ速く成長することが分かった。それらの鉄ナノクラスターの多くは、 1.5×10^{17} ions/cm²のドーズで強磁性状態になっている。
- 2) イオン注入で形成された鉄ナノクラスター中には、基板のSi原子が混入しFe-Si合金が形成されていることを新たに見出した。
- 3) Cuイオンの追加注入によって、鉄ナノクラスターの超常磁性緩和のブロッキングが促進される。その強磁性クラスターの内部磁場は減少しており、Fe-Cu合金ナノクラスターの形成が示唆される。

(2005年4月28日受付, 2005年9月27日再受付)

参考文献

- [1] C.E. Vallet, C.W. White, S.P. Withrow, J.D. Budal, L.A. Boatner, K.D. Sorge, J.R. Thompson, K.S. Beatty and A. Meldrum, *J. Appl. Phys.*, Vol.92, No.10, pp.6200-6204, 2002.
- [2] G.L. Zhang and H. Pattyn, *Hyperfine Interact.*, Vol.113, No.1-4, pp.165-181, 1998.
- [3] N. Hayashi, I. Sakamoto, H. Tanoue, H. Wakabayashi and T. Toriyama, *Hyperfine Interact.*, Vol.141/142, No.1-4, pp.163-168, 2002.
- [4] N. Hayashi, I. Sakamoto, T. Toriyama, H. Wakabayashi, T. Okada and K. Kuriyama, *Surface and Coating Technol.*, Vol.169/170, pp.540-543, 2003.
- [5] N. Hayashi, T. Toriyama, H. Wakabayashi, I. Sakamoto, T. Okada, and K. Kuriyama, *Surface and Coating Technol.*, Vol.158-159, pp.193-197, 2002.
- [6] H. Wakabayashi, T. Hirai, T. Toriyama, N. Hayashi and I. Sakamoto, *Phys. Stat. Sol. (a)* Vol.189, No.2, pp.515-520, 2002.
- [7] C.J. McHargue, P.S. Sklad, C.W. White, G.C. Farlow, A. Perez and G. Marest, *J. Mater. Res.*, Vol.6, No.10, pp.2145-2159, 1991.
- [8] M.B. Stearns, *Phys. Rev.*, Vol.129, No.3, pp.1136-1144, 1963.
- [9] F. Bødker and S. Mørup, *Hyperfine Interact.*, Vol.93, No.1, pp.1421-1425, 1994.
- [10] N. Hayashi, I. Sakamoto, H. Wakabayashi, T. Toriyama and S. Honda, *J. Appl. Phys.*, Vol.94, No.4, pp.2597-2601, 2003.
- [11] M.M. Pereira de Azevedo, J.B. Sousa, J.A. Mendes, B.G. Almeida, M.S. Rogalski, Y.G. Poborelov, I. Bibicu, L.M. Redondo, M.F. da Silva, C.M. Jesus, J.G. Marques and J.C. Soares, *J. Mag. Mag. Mater.*, Vol.173, No.3, pp.230-240, 1997.
- [12] F. Gonella, *Nucl. Instru. Meth. B*, Vol.166/167, pp.831-839, 2000.