

## Spintronics applications of gyromagnetic effect

Yukio Nozaki<sup>1,2</sup>  
(<sup>1</sup>Keio Univ., <sup>2</sup>Keio CSRN)

The gyromagnetic effect was discovered by Einstein, de Haas, and Barnett about a hundred years ago. They found that macroscopic rotation and magnetization of a macroscopic ferromagnet are convertible with each other. Strong gyromagnetic effect appears by increasing rotation frequency, implying that a rotation frequency is equivalent to a magnetic field. The magnetization is originated from microscopic angular momentum of electrons in solid, i.e. spin angular momentum and orbital angular momentum. Therefore, the macroscopic rotation can give a torque on microscopic angular momentum of electrons via conservation law of angular momentum in a rotationally symmetric system.

From the microscopic point of view, the gyromagnetic effect is understood as an inertial effects of Dirac particles, which appears when a local inertial frame rotates. Hehl and Ni deduced the Hamiltonian in a rotating frame and found the spin rotation coupling (SRC) given by the inner product between spin angular momentum and angular velocity of rotation [1]. It is noted that such a spin rotation coupling remains in the Hamiltonian under a nonrelativistic limit. The mechanical rotation  $\Omega$  in the SRC is coupled with spin angular momentum  $\sigma$  similarly to the magnetic field in the Zeeman effect. The amplitude of emergent magnetic field, so called “Barnett field”, is given by  $\Omega\gamma$ , where  $\gamma$  is the gyromagnetic ratio. Such a Barnett field is very weak so that we can observe the effect only in ferromagnetic materials so far. However, recent state of art technologies enable us to observe the Barnett field in non-magnetic elements [2,3].

In this talk, we provide three topics on the gyromagnetic effect, which can be applied to spintronics devices. First one is an acoustic gyromagnetic effect in ferromagnetic NiFe thin film, where we have observed phenomena based on magnon-phonon coupling via gyromagnetic effect [4,5]. Second topic is associated with another acoustic gyromagnetic effect in nonmagnetic Cu films, whose spin orbit interaction is much weaker than platinum. Here, we will show some experimental results on an alternating spin current generation due to a gradient of acoustic Barnett field in Cu films [6-8]. Third topic is related to the experimental study on current-induced spin torque via spin vorticity coupling in composition gradient interface [9-10].

### Reference

- 1) F. W. Hehl and W.-T. Ni, Phys. Rev. D. **42**, 2045 (1990).
- 2) H. Chudo et al., Appl. Phys. Express **7**, 063004 (2014).
- 3) R. Takahashi et al., Nature Phys. **12**, 52 (2016).
- 4) Y. Kurimune, YN et al., PRL **124**, 217205 (2020).
- 5) S. Tateno, YN et al., PRB **104**, L020404 (2021).
- 6) D. Kobayashi, YN et al. PRL **119**, 077202 (2017).
- 7) S. Tateno, YN et al., PRB **102**, 104406 (2020).
- 8) Y. Kurimune, YN et al., PRB **102**, 174413 (2020).
- 9) G. Okano, YN et al., PRL **122**, 217701 (2019).
- 10) T. Horaguchi, YN et al., PREPRINT (Version 1) available at Research Square [<https://doi.org/10.21203/rs.3.rs-955888/v1>].
- 11) H. Nakayama, YN et al., PRB **107**, (2023).

# Theory of acoustic gyromagnetic effect

M. Matsuo

Kavli Institute for Theoretical Sciences, University of Chinese Academy of Sciences

The gyromagnetic effect, a phenomenon where magnetic angular momentum and mechanical angular momentum are mutually converted, was discovered approximately a century ago, prior to the establishment of quantum mechanics. Both Barnett and Einstein-de Haas discovered that ferromagnetic bodies could become magnetized when rotated<sup>1)</sup>, and conversely, these bodies rotate when magnetized<sup>2)</sup>. At that time, it was believed that the source of magnetism was the Ampere magnetic field created by the circular current of electrons in a magnetic body, and the orbital angular momentum of the electrons was assumed to carry the magnetic moment. Surprisingly, experiments by Barnett and others showed the gyromagnetic ratio (g-factor) of electrons in magnetic bodies to be about 2, significantly deviating from the expected  $g=1$  predicted by classical electrodynamics. This crucial discovery suggested that the electron inherently possesses a form of angular momentum different from orbital angular momentum, later identified as spin angular momentum with the advent of quantum theory.

Our research endeavors to utilize the gyromagnetic effect for spin and valley transport. Specifically, in this talk, we introduce the "acoustic version of the gyromagnetic effect" using the interaction between vorticity in surface acoustic waves and angular momentum carried by electron.

First, we introduce a mechanism for generating conduction electron spin current in copper (Cu) by exciting surface acoustic waves, a phenomenon caused by the interaction between electron spin and the vorticity in surface acoustic waves.<sup>3,4,5,6)</sup> Unlike the traditional spin Hall effect in nonmagnetic metals, our mechanism does not require spin-orbit interaction. Thus, light metals such as Cu, which have been considered unsuitable for generating spin current due to their weak spin-orbit interaction, can now be utilized as spin current generators, potentially significantly expanding the choice of materials for spin devices.

Next, we introduce a theory of spin electromotive force generated by exciting surface acoustic waves in ferromagnetic metals.<sup>7)</sup> The vorticity of surface acoustic waves causes time-space nonuniform dynamics between conduction electron spin and magnetization, resulting in the generation of spin electromotive force. In contrast to traditional spin electromotive force, our mechanism can generate continuous electromotive force with a simple device structure, such as a single layer of a ferromagnetic metal, which is a considerable advantage.

Finally, we will also introduce valley transport driven by the vorticity of surface acoustic waves.<sup>8)</sup> In materials with broken spatial inversion symmetry, massive Dirac electrons have orbital angular momentum dependent on the valley. We theoretically demonstrate that the interaction between this orbital angular momentum and the vorticity of the surface acoustic waves generates valley currents.

## Reference

- 1) S.J. Barnett, Phys. Rev. 6, 239 (1915).
- 2) A. Einstein and W.J. de Haas, Verh. Dtsch. Phys. Ges. 17, 152 (1915).
- 3) Y. Nozaki, JSAP Rev. 230203 (2023).
- 4) M. Matsuo et al., Phys. Rev. B 87, 180402(R) (2013)
- 5) M. Matsuo et al., Phys. Rev. B 96, 020401(R) (2017).
- 6) D. Kobayashi et al., Phys. Rev. Lett. 119,077202 (2017).
- 7) T. Funato and M. Matsuo, Phys. Rev. Lett. 128, 077202 (2022).
- 8) Y. Ominato et al., Phys. Rev. B 105, 195409 (2022).

## Acoustic phonon induced spin dynamics

Masamitsu Hayashi  
The University of Tokyo

Studies have shown that phonons can interact with other degrees of freedoms in solids. For example, the coupling between phonons and photons can lead to Raman scattering, which is often exploited to study the structure/chemical state of materials. Scientifically, the coupling between phonons and other degrees of freedom are attracting significant interest for potential applications in quantum technologies.

Surface acoustic waves, a form of acoustic phonons, can be excited using conventional electronics. The frequency and wavelength of such acoustic phonons are defined by the sound velocity of the substrate and the geometry of the interdigital transducers (IDT) patterned on the substrate. The acoustic phonons excited at one of the IDTs can typically travel a distance significantly larger than its wavelength. If a thin film is placed on the substrate adjacent to an IDT, acoustic phonons can be excited within the film. Such device can therefore be used to study the interaction between acoustic phonons and other degrees of freedoms in solids.

We have studied the coupling between acoustic phonons and electron spins in non-magnetic and magnetic materials. For the former, we have studied the effect of SAW on the electron spin dynamics in non-magnetic metals[1]. We find that transverse spin currents emerge when SAW traverses across the film, only when the spin orbit coupling of the film is sufficiently large. In the presentation, we discuss the origin of the SAW-induced spin current. We have also studied phonon-magnon coupling in magnetic materials using SAW. A particular focus is put on the coupling in synthetic antiferromagnets[2]. We discuss the strength of phonon-magnon in such systems.

### References

- [1] T. Kawada *et al.*, *Science Advances* **7** eabd9697 (2021).
- [2] H. Matsumoto *et al.*, *Applied Physics Express* **15** 063003 (2022).

# Hydrodynamic Generation mediated by Spin Current

R. Takahashi<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Ochanomizu University, Tokyo 112-8610, Japan

A spin current, a flow of spin angular momentum, has enabled the interconversion among various kinds of physical entities such as electricity, magnetization, heat, and mechanical motion like elastic motion and liquid motion. Such spin-mediated interconversion is realized on a micro or nano scale and has been extensively studied in the field of spintronics. Our study<sup>1)</sup> has revealed that hydrodynamic motion can also act as a constituent of this interconversion framework: spin hydrodynamic generation (SHDG).

SHDG is a method used to generate an electromotive force via a spin current in hydrodynamic motion. The origin of SHDG is the spin-vorticity coupling, that is, the coupling between electron spin and local mechanical rotation of a fluid, the vorticity  $\omega$ . The spin current whose polarization is directed along  $\omega$  is diffusively induced along the spatial vorticity gradient (see a schematic image in Fig. 1). The induced spin current is converted to the electromotive force along the fluid flow direction, caused by the inverse spin Hall effect of the fluid itself. According to this mechanism of SHDG, therefore, the induced spin current should strongly depend on vorticity distribution and SHDG is categorized reflecting the two typical regimes of hydrodynamics, that is, turbulent flow and laminar flow regimes.

In a turbulent flow in a cylindrical channel, the electromotive force should be generated only near the inner wall. Figure 1 shows the results of measurements performed by using Hg turbulent flows in some kinds of cylindrical channels.<sup>1)</sup> There clearly exhibits a nonlinear scaling behavior with respect to velocity  $v^*$  dependence of the voltage signal  $V$ . This behavior reflects the mechanism mentioned above; in the turbulent flow regime, the vorticity gradient, driving force for the spin current in SHDG scenario, should exist only near the inner wall of a channel.

In a laminar flow, on the other hand, the electromotive force should be generated all over the cross section of a channel. In the results of measurements with Hg “laminar” flows<sup>2)</sup>, there does not exhibit the nonlinear scaling behavior, appearing in the turbulent flow regime, but exhibits a linear one. This result reflects the difference in the vorticity distribution between the laminar and the turbulent flow; in the laminar flow, the fluid velocity distribution pervades in a parabolic way, and thus the vorticity gradient is created all over the cross section of a channel. It is noteworthy that the energy conversion efficiency  $\eta$  shown in Fig. 2 is exceedingly enhanced in the laminar flow regime. Here,  $Re$  is the Reynolds number. This should be because there exists the capability of voltage generation all over the channel cross section in a laminar flow, while that in a turbulent flow is localized near the inner wall and thus the rest area reduces the generation due to short circuit currents, suggesting that SHDG can be much more efficient in a laminar flow than in a turbulent flow. In this presentation, our experimental results mentioned above, its consistency with theoretical studies and recent progress in this spin-hydrodynamic generation phenomenon will be discussed.

## Reference

- 1) R. Takahashi *et al.*, Nat. Phys. **12**, 52 (2016).
- 2) R. Takahashi *et al.*, Nat. Commun. **11**, 3009 (2020).

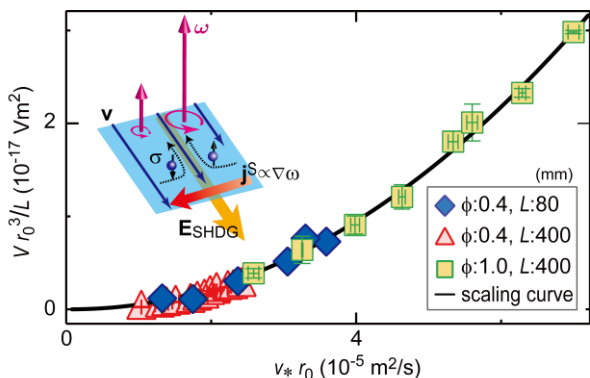


Fig. 1 Scaling behavior with respect to velocity ( $v^*$ ) dependence of SHDG voltage ( $V$ ) in turbulent flow.

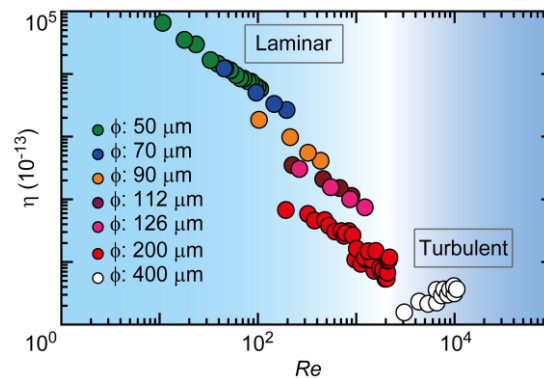


Fig. 2 Dependence of SHDG energy conversion efficiency ( $\eta$ ) on the Reynolds number ( $Re$ ).

# Magneto-mechanical micro devices

Takahito Ono

Mechanical Systems Engineering, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan  
Micro System Integration Center ( $\mu$ SiC), Tohoku University, Sendai 980-8579, Japan

With the recent developments of the information and communication society, sensor and actuator devices are used in cyber-physical systems. Among these, magnetic devices are expected to be used as high-performance actuators and sensors. Our research group has been studying the process technology of magnetostrictive thin-film and its application technology, and in this presentation, we report on its sensor/actuator application and new actuators using spintronics.

Electrodeposition technology for rare-earth using Fe catalyst, etc., has been developed, resulting in the successful deposition of thin films of TbDyFe, TbFeCo, and FeGa, known as giant magnetostrictive materials. Microcantilever structures with the TbDyFe thin film were fabricated, and the actuation performances were evaluated. Magnetostriction of over 1200 ppm was achieved, and an energy density of  $1.69 \times 10^5$  J/m<sup>3</sup>, which is close to the bulk, was achieved. In TbFeCo, the magnetostriction is negative when the amount of Tb is small, and becomes positive when the amount of Tb is increased, thus, the magnetostriction can be controlled positively or negatively. Magnetostrictive materials can also be used as strain sensors by utilizing the inverse magnetostriction effect. FeGa thin films are deposited in microstructures and integrated with strain sensors in which the magnetization change caused by the strain is detected by integrated Si Hall elements.

Magnetostrictive actuators have been limited in miniaturization because they require electromagnets, which are generally difficult to miniaturize. The spin-current volume effect, which utilizes spin currents, generates volume strain due to the spin-lattice coupling by injecting spin-current into magnetic materials and changing the magnetization fluctuations of the magnetic materials. A diaphragm structure composed of the TbFeCo thin film, which exhibits positive volumetric magnetostriction ( $5.6 \times 10^{-5}/T$ ), was fabricated, and when the diaphragm resonated by the spin-current volume effect, a power density of  $1.15 \times 10^6$  W/m<sup>3</sup> or higher was experimentally found to be obtained.

In summary, magnetostrictive materials are promising candidates for next-generation micromechanical microdevices, especially through their integration with spintronics.

## References

- 1) H. Shim, et al., *Micromachines* **11**, 5 (2020) 523.
- 2) T. Ezura, et. al., *Proceeding of Transducers*, (2021) 418-421.
- 3) Y.-T. Huang, et al, *J. Mag. Mag. Mater.* **577** (2023) 170799.
- 4) H. Arisawa, et al., *Nature Communication* **13** (2022) 2400.

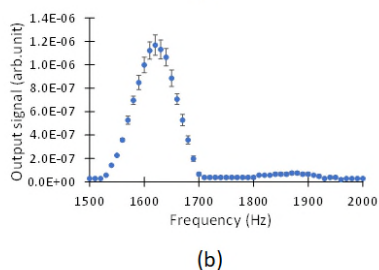
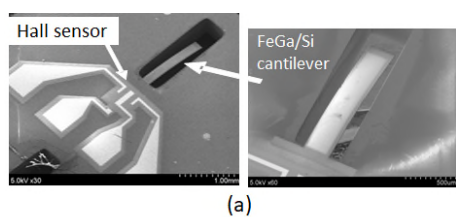


Fig. 1. (a) Cantilevered FeGa strain sensor with an integrated Si Hall sensor. (b) The vibration signal.

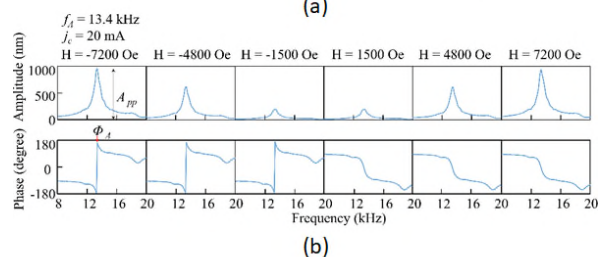
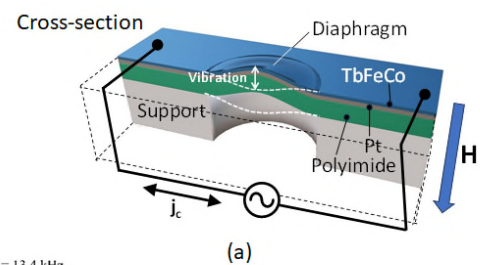


Fig. 2. (a) TbFeCo diaphragm actuator driven at the resonance by spin-current volume effect. (b) Actuated mechanical vibration and phase.

## Spin Elastronics -Mechanical sensing using spintronics devices-

D. Chiba  
(Osaka Univ., Tohoku Univ.)

Mechanical quantities are the most important sensing targets in physical space. Spin Elastronics is a new area of electronics that can endow mechanical functions to spintronics devices. The magnetization direction of ferromagnetic materials can be altered by the application of strain owing to the magnetoelastic effect. Using a combination of the magnetoelastic effect and the giant magnetoresistive (GMR)<sup>1,2)</sup> or tunnel magnetoresistive (TMR) effect<sup>3-5)</sup>, a strain measurement was experimentally demonstrated. In addition to sensing the strain “magnitude,” we achieved strain “direction” sensing using spin valves formed on a flexible substrate.

The stretchability of both the substrate and thin ferromagnetic layers enables strain sensing on a wide range of arbitrary-shaped surfaces, which is not easy when using devices formed on a rigid substrate. These stretchable and miniaturized strain sensors will be of increasing importance for “Trillion Sensors Universe” as well as for wearable devices, from the perspective of structural or human health monitoring, body mechanics, and robotics.

In addition, we are trying to integrate spin devices with organic circuits on a flexible substrate and open up a future in which biomotion or other mechanical motion can be precisely estimated and predicted using a multidimensional vector information carrier (integrated spin / spin network). We expect that this information carrier can become a cyber space as well that has an arithmetic operation function without electric power supply, and a non-volatile recording function.

This work was partly supported by JST CREST (Grant No. JPMJCR20C6), JST A-Step (Grant No. JPMJTR20T7), JSPS KAKENHI (Grant Nos. 25600075, 17J03125, 19H00860, 21K18827, and 23H00183), Murata Manufacturing Co., Ltd., Saginomiya Sseisakusyo, Inc., and Spintronics Research Network of Japan. Part of the work was performed using facilities at the Low Temperature Center, Osaka University.

### Reference

- 1) S. Ota, A. Ando, and D. Chiba, *Nature Electron.* **1**, 124-129 (2018).
- 2) H. Matsumoto, S. Ota, A. Ando, and D. Chiba, *Appl. Phys. Lett.* **114**, 132401 (2019).
- 3) S. Ota, M. Ono, H. Matsumoto, A. Ando, T. Sekitani, R. Kohno, S. Iguchi, T. Koyama, and D. Chiba, *Appl. Phys. Express* **12**, 053001 (2019).
- 4) S. Ota, A. Ando, T. Sekitani, T. Koyama and D. Chiba, *Appl. Phys. Lett.* **115**, 202401 (2019).
- 5) K. Saito, A. Imai, S. Ota, T. Koyama, A. Ando, and D. Chiba, *Appl. Phys. Lett.* **120**, 072407 (2022).

# Active and selective temperature control using mechanical strain

T. Hirai<sup>1</sup>

<sup>1</sup> National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan

The importance of thermal management technologies is rapidly growing with the increase in the performance, density, and variety of electronic devices. The vapor compression is the most widespread method for controlling ambient temperature (e.g., installed in a refrigerator and air-conditioning system), but this method could have detrimental impacts on the environment due to the use of greenhouse gas. The use of vapor compressor also limits the miniaturization of systems, which hinders its integration into devices for pinpoint temperature control. For the precise temperature control of integrated electronic devices, solid-state and selective cooling/heating technologies should be developed. In this talk, I show that the mechanical strain is a useful tool for active control of cooling/heating generated by two different thermal effects in solids: thermoelectric effect in magnetic materials, named magneto-thermoelectric effect, and elastocaloric effect as followings. Our demonstration would pave the way for realizing the active and versatile thermal management for next-generation electronic devices.

## 1. Strain-induced cooling/heating switching of magneto-thermoelectric effect

The anisotropic magneto-Peltier effect (AMPE), one of the magneto-thermoelectric effect, refers to the phenomenon that the Peltier coefficient depends on the relative angle between the input charge current and magnetization, which enables thermoelectric cooling/heating in a single material without junctions.<sup>1)</sup>

In the first half of my talk, I show that the application of uniaxial strain actively switches the sign of AMPE-induced temperature change via magneto-elastic coupling (Fig. 1), which cannot be realized when the conventional Peltier effect is used.<sup>2)</sup>

## 2. Elastocaloric kirigami temperature modulator

The elastocaloric effect refers to a cooling/heating generation associated to the isothermal entropy change induced by applying a mechanical uniaxial strain to solids, whose fundamental mechanism is similar to the magnetocaloric effect arising from the change in spin ordering by applying a magnetic field.

In the second half of my talk, I introduce a new way to modify the performance and spatial distribution of elastocaloric temperature modulation by the inspiration of *kirigami*, a traditional Japanese paper craft (Fig. 2).<sup>3)</sup>

Here, the second half is irrelevant to magnetism and spintronics. Thus, in addition to experimental results, I will explain the basic introduction of elastocaloric effect.

## Reference

- 1) K. Uchida *et al.*, *Nature* **558**, 95 (2018).
- 2) T. Hirai *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **118**, 022403 (2021).
- 3) T. Hirai *et al.*, *Adv. Funct. Mater.* **32**, 2201116 (2022).

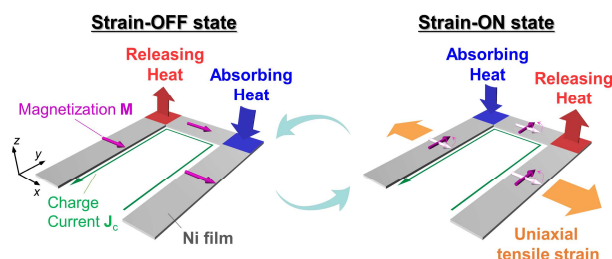


Fig. 1 Schematics of strain-induced active cooling-heating switching of anisotropic magneto-Peltier effect.

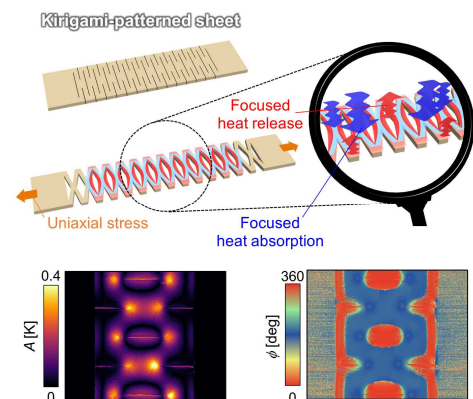


Fig. 2. Schematics of elastocaloric kirigami temperature modulator.

## 共蒸着 FeCo-MgF<sub>2</sub> グラニューラー膜の Fe 含有量の影響

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

Effect of Fe content on FeCo-MgF<sub>2</sub> granular films prepared by co-evaporation.

M. Miyamoto, T. Kubo, S. Sue, M. Sonehara, T. Sato  
(\*Citizen Finedevice Co.,Ltd., \*\*Shinshu University)

### はじめに

SiC/GaN 半導体をはじめとする次世代パワー半導体は、電動車や充電インフラ、電源用途に用いられ、その市場規模は、2030年には2021年比で10倍以上と予測されている<sup>1)</sup>。高効率(省電)を目指す各デバイス開発において、回路シミュレーションと高精度な電圧/電流計測は極めて重要であり<sup>2)</sup>、小型かつ主回路に影響を与えないセンサが求められている。正確な局所電流計測のために、著者らはファラデー効果を利用した光プローブ電流センサの研究を進めている。本センサの感応素子として、第46回日本磁気学会学術講演会で、等方性 Co-MgF<sub>2</sub> グラニューラー膜を提案した<sup>3)</sup>。これにより、低磁界における感度が大幅に向上し実際のセンサにおいて、数 A 以上の電流計測が可能となった。反面、Co ナノ粒子は磁化が小さく、飽和磁界の低下すなわち計測可能な電流(磁界)範囲が制限される結果となった。本研究では、磁界検出感度が高く、飽和磁界が大きなファラデー素子を実現すべく、従来の Co-MgF<sub>2</sub> 組成に Fe を添加した FeCo-MgF<sub>2</sub> グラニューラー膜を作製し、Fe 含有量の影響を調査した。

### 実験方法

Fe と Co を同一のルツボに Fe を 0~50 at.% の範囲で調製し溶解した FeCo 合金と、マトリックス材料 MgF<sub>2</sub> を用いて、共蒸着法によりガラス基板上に FeCo-MgF<sub>2</sub> グラニューラー膜を蒸着した。この時、成膜中のガラス基板温度は 450°C とし、FeCo と MgF<sub>2</sub> のレート比を FeCo : MgF<sub>2</sub> = 1:4 (FeCo; 0.05 nm/s, MgF<sub>2</sub>; 0.2 nm/s) とした。Fe, Co 比を変更した試料の波長 1550 nm における透過率とファラデー回転角から性能指数 FOM [°/(kA・m<sup>-1</sup>・dB)] を<sup>3)</sup>、磁化曲線から飽和磁界 H<sub>s</sub> を求め、Fe 含有量による影響を調べた。また、XPS により各試料の結合状態を確認した。

### 実験結果

Fig. 1 に FeCo ナノ粒子の Fe 含有量を 0~50 at.% まで変化させた場合の性能指数 FOM と飽和磁界 H<sub>s</sub> を示す。光プローブ電流センサへの搭載を考えた場合、FOM は磁界検出感度に相当し、飽和磁界の大きさは磁界検出範囲に相当する。Fe を添加することでナノ粒子の磁気モーメントが増大し、Fe の含有量 20 at.% 程度までは飽和磁界が単調に増加したが、25 at.% では逆に低下した。ここでは示していないが Fe の含有量 50 at.% の磁化曲線では明確なヒステリシスが観察された。これは Fe の含有量 25 at.% 以上で、蒸着真空層内の残留酸素の影響により FeCo ナノ粒子の酸化が顕著になったことが要因と推定される。Fe の含有量 15 at.% までは、FOM がほとんど低下することなく、飽和磁界が増大した。

### 参考文献

- 1) <https://eetimes.itmedia.co.jp/ee/articles/2205/25/news041.html> (As of June 14, 2023).
- 2) X. Yang, Z. Wang, Y. Ding, J. Li, M. Xu., *IET Power Electron.*, **15**, 728-737 (2022).
- 3) M. Miyamoto, T. Kubo, S. Sue, M. Sonehara, T. Sato., *T. Magn. Soc. Jpn.*, **7**, 22-28 (2023).

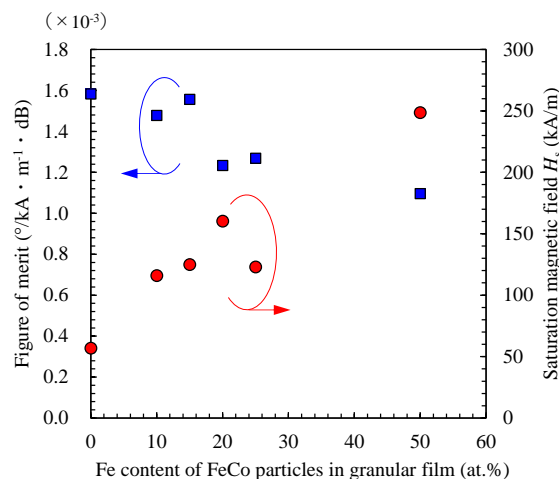


Fig. 1 Fe content in FeCo-particles dependence of figure of merit and saturation magnetic field.



## ナノグラニューラルバルク材料の作製と電磁気特性

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

Fabrication of bulky nanogranular materials and their electromagnetic properties  
Nobukiyo Kobayashi, Tadayoshi Iwasa, Kenji Ikeda, Masayuki Naoe, Ken-Ichi Arai  
(DENJIKEN-Research Institute for Electromagnetic Material)

### はじめに

Fe、Co、および FeCo 合金などの強磁性金属と、窒化物、酸化物、およびフッ化物などのセラミックとの複相構造であるナノグラニューラル材料は、セラミックスから成るマトリックス中にナノメートルサイズの磁性金属粒子がほぼ均一に分散した微細な構造を有し、その膜構造に起因する量子サイズ効果によって、新しい原理に基づくユニークかつ多様な機能性を発揮するため、様々な電磁気デバイスへの応用も期待されている。一方、これらのナノグラニューラル材料は、スパッタ法などによって作製されるため、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、その形状から応用範囲に制限がある。本研究では、スパッタ法で作製したナノグラニューラル薄膜を出発原料として、厚さが約 1 mm 程度の板状、リング状のバルクサンプルを作製し、高周波透磁率特性および誘電特性を検討した。

### 実験方法

試料は、スパッタ法によってナノグラニューラル薄膜を作製し、その後、基板から剥離することによって粉末状に粉碎し、それを加圧成型することによって作製した。詳細には、まず、タンデム法によって 76 mm φ の FeCo 合金ターゲットを、他方に同じく 76 mm φ の BaF<sub>2</sub> または MgF<sub>2</sub> ターゲットを配置し、同時スパッタしてナノグラニューラル膜を得た。タンデム法とは、両ターゲット直上を基板が交互に通過するように基板ホルダーを回転(公転)させて薄膜材料を得る方法である。公転する基板ホルダーの円周軌道上の広い範囲に成膜することが可能であるため、この軌道に可能な限り基板を並べれば、一回の成膜で多くの薄膜を得ることができる。次にこの薄膜を基板から剥離し、フレック状になったものを粉碎して原料粉末とした。これを所定の形状の金型を用いてプレスすることにより、リングあるいは板状のバルク試料を得た。得られた試料は、真空中で最高 800°C までの任意温度で加熱した。組成は波長分散型 X 線分析装置(WDS)で評価し、結晶構造は X 線回折法(XRD)によって評価した。静磁化特性は試料振動型磁力計(VSM)、複素透磁率の周波数特性および誘電特性の評価にはインピーダンスアナライザ(マテリアルアナライザ)を用い、最大 1 GHz までの周波数範囲で行った。

### 結果

Fig. 1 には今回得られた FeCo-BaF バルクサンプルを示す。成型状態でも、形状の安定した試料の作製が可能である。Fig. 2 には、無加熱の FeCo-MgF リングコアの複素透磁率スペクトルを示す。1 GHz までの測定周波数範囲において、ほぼフラットな実部  $\mu'$  を示しており、バルク状に成型後も、薄膜状態と同様の良好な高周波透磁率特性を示していることが判った。

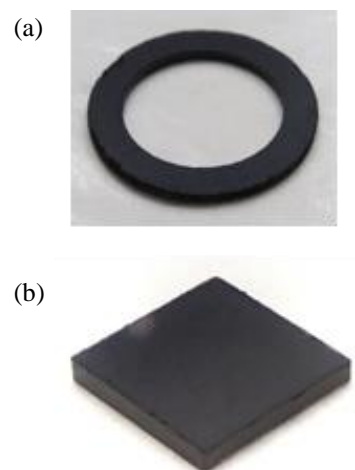


Fig.1 Photographs of FeCo-BaF nanogranular dust cores: (a) ring with outer diameter of 20 mm, inner diameter of 14 mm, and thickness of 1 mm, (b) pellet with projected area of 10 mm<sup>2</sup> and thickness of 1 mm.

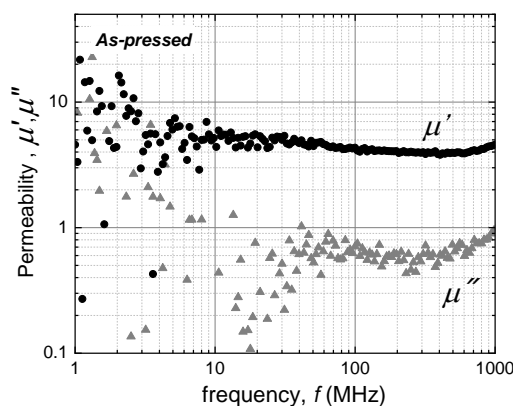


Fig.2 Frequency dependence of complex permeability of FeCo-MgF nanogranular ring core (as-pressed).

## Co-BaF/BaF 積層ナノグラニューラー薄膜の磁気光学効果

池田 賢司, 小林 伸聖, 荒井 賢一

(公益財団法人 電磁材料研究所)

Magneto-optical effect in Co-BaF/BaF multilayer nanogranular films

Kenji Ikeda, Nobukiyo Kobayashi, Ken-Ichi Arai

(Research Institute for Electromagnetic Material, DENJIKEN)

### はじめに

ナノグラニューラー磁性薄膜は、絶縁体等のマトリックス中に磁性金属ナノ粒子を分散させた構造を有しており、多様な物性を示すことで知られている。我々のグループは、フッ化物系ナノグラニューラー膜が光透過性を示し<sup>1)</sup>、大きいファラデー効果を示すことを見出した<sup>2)</sup>。ナノグラニューラー薄膜における大きな磁気光学効果は、マトリックス界面近傍の磁性原子の磁気モーメントがエンハンスされることに起因すると考えられる<sup>2)</sup>。ナノグラニューラー構造は、ナノ磁性粒子に起因する磁気光学効果を示すが、磁性金属の光吸収により光透過性に課題がある。光透過率を高めることが可能となれば、品質係数(Figure of Merit)の改善を通じて光デバイスへの応用を加速することが期待される。本研究では、高い光透過率を有する薄膜の作製を目的として、ナノグラニューラー薄膜とBaFを積層した薄膜を解析した。ここでは、Co-BaF/BaF積層ナノグラニューラー膜の、磁気光学効果および光学特性について報告する。

### 実験方法

積層ナノグラニューラー薄膜の成膜は、BaF<sub>2</sub>焼結ターゲットとCoターゲットを用い、Arガス雰囲気においてシャッター制御することにより各層の厚みの異なる試料を作製した。成膜は400°Cの加熱雰囲気で行い、膜厚約300nmの薄膜を作製した。ファラデー効果の波長依存性は、分光式ファラデー効果測定装置(NEOARK, BH-501F-SVI)を用いて評価した。薄膜の光透過率は、分光光度計(Shimadzu, UV-3150)を用いて測定した。誘電率はエリプソメータ(Horiba, UVISEL-Plus)によって解析した。

### 実験結果

ナノグラニューラー層の厚みを変えて成膜したCo-BaF(x nm)/BaF(1.5nm)積層ナノグラニューラー薄膜(400°C熱処理)のファラデー回転スペクトルをFig.1に示す。ファラデー回転角の絶対値は、通常のナノグラニューラー構造試料が最も大きい値となり、積層薄膜はナノグラニューラー層厚みに応じて回転角が変化している。BaF層の積層により、Coの含有量が増加したことに起因すると考えられる。Fig.2に実効透過率の波長依存性を示す。積層構造膜は透過率が高くなり、ナノグラニューラー層の厚みの減少に応じて透過帯域が広がっていることが確認できる。BaFを積層することにより、ナノグラニューラー層のCo粒子の粒径が変化することが影響していると推測できる。報告では、ファラデー回転角及び実効透過率、誘電率から算出したFoMについても議論する。

### 謝辞

本研究はJST-CREST、JPMJCR19T1の助成を受けたものです。

### Reference

- 1) N. Kobayashi, H. Masumoto, S. Takahashi and S. Maekawa, Sci. Rep., 6, 34227 (2016).
- 2) N. Kobayashi, K. Ikeda, B. Gu, S. Takahashi, H. Masumoto and S. Maekawa, Sci. Rep., 8, 4978 (2018).

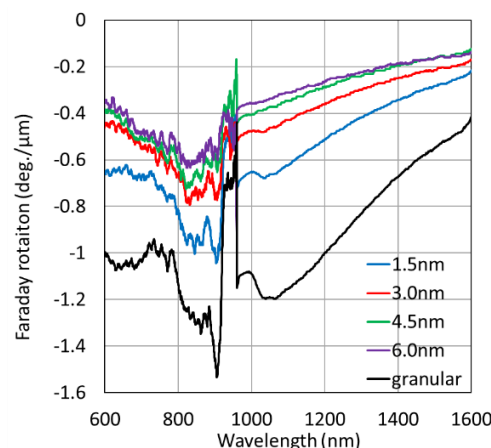


Fig.1 Faraday rotation spectra of Co-BaF/BaF films.

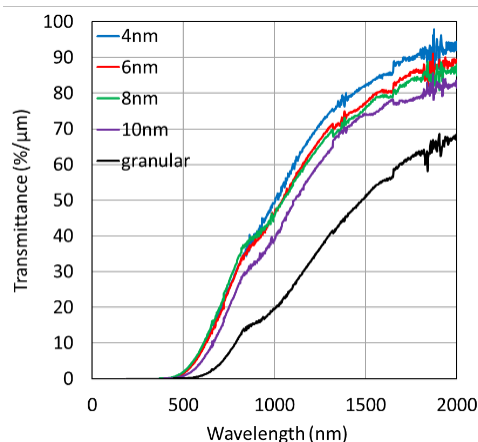


Fig.2 Transmission of Co-BaF/BaF films.

## Fe-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> ナノ粒子共凝集体の作製とその交流磁気特性

柳田翔一、山口恭周、小坂奈月、五月女容之、Cathy E. McNamee, 山本真平、齊藤伸、小川智之  
(東北大学院工、三恵技研工業株式会社、信州大繊維学部)

Fabrication of Fe-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> co-aggregated nanoparticles assembly and their AC magnetic property

Shoichi Yanagita<sup>1,2</sup>, Yukichika Yamaguchi<sup>1</sup>, Natsuki Kosaka<sup>1</sup>, Yoshiyuki Sotome<sup>1</sup>, Cathy E. McNamee<sup>3</sup>,  
Shinpei Yamamoto<sup>2</sup>, Shin Saito<sup>1</sup>, and Tomoyuki Ogawa<sup>1</sup>

(Dept, Elec, Eng, Grad, School. Eng, Tohoku Univ.

Advanced Research Department, Development Division, Sankei Giken Kogyo Co., Ltd.

Department of Chemistry and Materials, Faculty of Textile Science and Technology, Shinshu University)

### はじめに

現代社会において多種多様なデバイスや電気機器関連が幅広い周波数帯の電磁波が活用して、漏洩した電磁波が人体や制御系に影響与えることが懸念されている。周波数帯域にあわせた電磁波の遮蔽・吸収の材料・技術は常に必要である。例えば、ハイブリッド車や電気自動車 (EV) では 100 kHz 以下の低周波電磁波に対して鉄板を用いた遮蔽技術以外の有効な技術はまだ確立されてない。本研究では、強磁性ナノ粒子の磁化のブロッキング現象および磁気双極子相互作用に着目し、新しい電磁波吸収材料として磁気モーメントの異なるナノ粒子を混合したナノ粒子共凝集体を作製した。またその交流磁気特性を評価し、磁気損失機構と材料組成との関係を議論した。

### 実験方法

熱分解法を用いて Fe<sup>[1]</sup>と Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub><sup>[2]</sup>ナノ粒子をそれぞれ合成した。これらのナノ粒子を Fe : Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> = 9 : 1, 7 : 3, 5 : 5, 3 : 7, 1 : 9 の質量比でトルエン 10 ml に再分散させた。その溶液にエタノール 30ml 加えて、超音波攪拌(10 min)、その後遠心分離(5000 rpm, 10 min)を行い、上澄み液を破棄、真空乾燥を行った。得られた黒色粉末に対して、粉末 X 線回折測定(XRD)、透過型電子顕微鏡(TEM)、交流率測定を用いて評価した。

### 実験結果

TEM 観察から合成した Fe と Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> のナノ粒子の粒径はそれぞれ 12.5 nm と 3.4 nm であった。Fe、Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>、および、それらのナノ粒子共凝集体の磁化曲線から、飽和磁化が混合比率と相関を示すことが確認でき、Fe と Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> のナノ粒子が巨視的に均一に混合していることが分かった。Fig.1 に複素磁化率の温度依存性を示す。Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> ナノ粒子では、 $T_{B1}=21$  K にブロッキング温度を観測した。また Fe ナノ粒子では、 $T_{B2}^{Low}=150$  K 付近で極大を示すことが確認できた。さらに重量比が 5 : 5 の Fe-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> ナノ粒子共凝集体において、 $T_{B2}^{High}=230$  K に虚部の磁化率  $\chi''$  の極大が観測された。これは Fe や Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> のナノ粒子のみ構成された凝集体では見られないものであった。一方  $T_B=(KV/k_B)\ln(\tau/\tau_0)$  の式より、粒径 12.5 nm で、相互作用のない磁氣的に孤立した Fe ナノ粒子では  $T_B^{Fe}=206$  K と見積られ、測定結果の  $T_{B2}^{High}=230$  K と近い。よって  $T_{B2}^{High}$  は共凝集体中の磁氣的に孤立した Fe ナノ粒子のブロッキング現象によるものだと考えられる。これは Fe-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> のナノ粒子凝集体の内部では Fe ナノ粒子の間に Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> ナノ粒子が介在することによって、一部の Fe ナノ粒子が磁氣的に孤立した状態であることを示唆している。また Fe-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> と Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> のナノ粒子間の磁気双極子相互作用は無視できるほど小さくなっていると考えられる。さらに  $T_{B2}^{Low}$  が観測されていることから、一部の Fe ナノ粒子同士が局所的に凝集していることが考えられる。

### 参考文献

- 1) Hiroaki Kura, et. al, *J. Phys. Chem. C*, **114**, 5835 (2010).
- 2) Shouheng Sun, et. al, *J. Am. Chem. Soc.* **126**, 273 (2004).

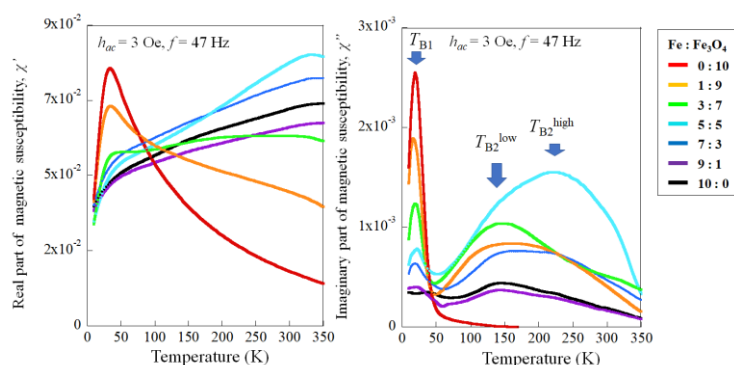


Fig.1 Fe-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> ナノ粒子共凝集体の複素磁化率の実部(左)および虚部(右)温度依存性.

## 孤立球殻蛋白質 PfV への Co-Pt ナノ粒子合成

田形 翔<sup>1</sup>, 富永 涼<sup>1</sup>, 東浦 彰史<sup>2</sup>, 中谷 亮一<sup>1,3,4</sup>, 中川 敦史<sup>5</sup>, 白土 優<sup>1,3,4</sup>

(1 大阪大学大学院工学研究科, 2 広島大学医系科学研究科

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

Synthesis of Co-Pt nanoparticles in isolated spherical shell protein PfV

Kakeru Tagata<sup>1</sup>, Ryo Tominaga<sup>1</sup>, Akifumi Higashiura<sup>2</sup>,

Ryoichi Nakatani<sup>1,3,4</sup>, Atsushi Nakagawa<sup>5</sup>, and Yu Shiratsuchi<sup>1,3,4</sup>

(1 Grad. Sch. Eng., Osaka Univ. 2 Grad. Sch. Med., Hiroshima Univ. 3 CSRN, Osaka Univ. 4 OTRI, Osaka Univ.,

5. Institute for Protein Research, Osaka Univ.)

**はじめに** 近年, 磁性ナノ粒子は医療分野への応用が期待され, 磁気分離や温熱療法への応用のため細胞や蛋白質との結合機能を有する機能性磁気ナノ粒子の開発が進められている. 我々は, 球殻構造をもつ蛋白質 *Pyrococcus furiosus* virus-like particle (PfV) と磁性ナノ粒子を融合した新規機能性ナノ粒子の研究を進めている. PfV は, 超好熱古細菌由来の耐熱性に加えて, 遺伝子操作により球殻構造の内外のアミノ基を制御することで, 外来蛋白質・ウイルスとの結合機能, 金属との結合機能を付与できるなどの特徴を持つ. 我々は, これまでに mm 超サイズの PfV 結晶を作製し, PfV 結晶内部への磁性ナノ粒子の合成, 超常磁性の発現などを報告してきた [1, 2]. 一方, 上記の目的のためには, 磁性ナノ粒子を合成した PfV の孤立化が必要となる. 本研究では, 結晶化前の孤立 PfV に Co-Pt ナノ粒子を合成することを試み, また, 合成した Co-Pt ナノ粒子の磁気特性について検討した結果を報告する.

**実験方法** PfV の作製方法については, 我々の既報 [1] を参照されたい. 液中の PfV への金属合成は (1) 目的となる Co-Pt のイオン溶液を調製, PfV にソーキング, (2) 限外ろ過膜による Buffer 交換により余分な金属イオンの除去, (3) 還元剤を投与し PfV 内部の金属イオンを還元, の手順で行った. PfV の粒径の評価には, 動的光散乱法 (DLS) を用いた. PfV への Co-Pt ナノ粒子の合成に際して, ソーキングを行う Co-Pt の組成比を 1:3 で固定し, 総量を変化させた. 得られた PfV について, VSM を用いて室温での磁化曲線を測定した.

**実験結果** 図 1 に, PfV にソーキングする磁性イオン量を変化させた試料に対する室温での磁化曲線を示す.  $\text{Co}^{2+} + \text{PtCl}_4^{2-}$  の総ソーキング量は, PfV 量 (mol) の 1000 倍, 10000 倍とした. 還元後の試料において, 非線形な磁化曲線が得られ, Co-Pt の合成量を増加させることで飽和磁化も高くなることが確認出来た. この結果から PfV 中に Co-Pt ナノ粒子が形成していることが示唆される.

[1] M. Taniguchi, K. Tagata, Y. Shiratsuchi *et al.*, J. Phys. Chem. Solid, 169, 110840 (2022). [2] K. Tagata, Y. Shiratsuchi *et al.*, IEEE Trans. Magn. Accepted.

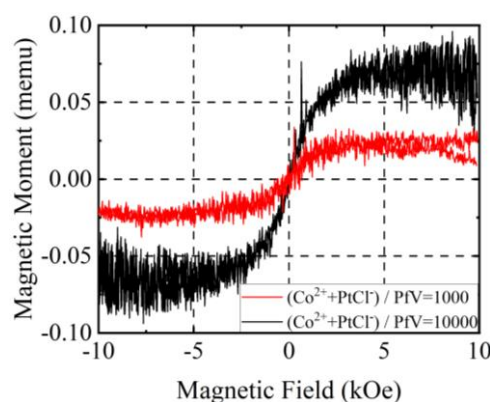


Fig.1 PfV にソーキングする磁性イオン量を変化させた試料の室温での磁化曲線.

# LbL 法アシスト複合めっきによる (エポキシ被覆 Fe-B 微粒子) / Epoxy 複合膜の作製

増本千裕<sup>1</sup>, 西井丈流<sup>2</sup>, 東啓士郎<sup>2</sup>, 武藤浩行<sup>3</sup>, 遠藤恭<sup>1</sup>, 藤田直幸<sup>2</sup>  
(<sup>1</sup>東北大学, <sup>2</sup>奈良工業高等専門学校, <sup>3</sup>豊橋技術科学大学)

Preparation of epoxy-coated Fe-B /Epoxy composite film by LbL method assisted composite plating.  
Chihiro Masumoto<sup>1</sup>, Takeru Nishii<sup>2</sup>, Seishirou Higashi<sup>2</sup>, Hiroyuki Muto<sup>3</sup>, Yasushi Endo<sup>1</sup>, Fujita Naoyuki<sup>2</sup>  
(<sup>1</sup>Tohoku University, <sup>2</sup>NIT, Nara College, <sup>3</sup>Toyohashi University of Technology)

## 1. 緒言

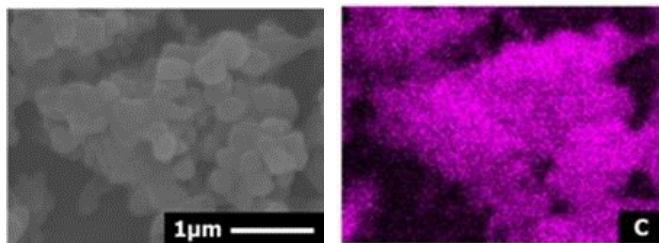
我々の研究グループでは、高周波帯域で電磁波吸収特性を示す金属-絶縁物複合膜を、樹脂の電析と同時に磁性微粒子を析出させる LbL 法アシスト複合めっきという手法で作製している。藤原<sup>1)</sup>は Fe-B 微粒子に LbL 処理を施すことで、エタノール中では Fe-B の分散状態が向上することを示した。しかし、純水を用いた Fe-B/Epoxy 複合膜の反応液中では、Fe-B が酸化し、飽和磁化が減少すること、作製した複合膜は、Fe-B 微粒子とエポキシが不均一に析出しており、表面の凹凸が大きくなるという問題があった。そこで、本研究では、Fe-B 微粒子を無電解めっきによりエポキシで被覆した後に、成膜することで、Fe-B 微粒子の酸化を防ぎ、優れた磁気特性を示す Fe-B/Epoxy 複合膜の作製を目指した。

## 2. 実験方法

福井らの無電解エポキシ成膜の方法<sup>2)</sup>の方法を用いて、水溶性エポキシ(日本ペイント, N12)を含む反応液に Pd 核が吸着した Fe-B 微粒子を浸漬し、エポキシを被覆させた。Pd 核の吸着では、まず、正に帯電している Fe-B 微粒子を高分子電解質溶液(PAA=1wt.%)に浸漬し、負に帯電させた。その後、PdCl<sub>2</sub> 溶液(10mg/L)に浸漬させた。これらの工程はエタノールを溶媒とし、Fe-B の酸化を防いだ。エポキシ反応液に Fe-B 微粒子を 30 分間浸漬させエポキシを被覆した後、純水に浸漬させ、飽和磁化の変化を評価した。作製した (Fe-B)-Epoxy 微粒子 1.0g を用いて、藤原<sup>1)</sup>の条件で複合膜を作製した。

## 3. 結果および考察

Fig. 1 の SEM-EDS 像より、無電解めっき後の Fe-B 微粒子全体からエポキシに対応する炭素が検出されており、エポキシが微粒子表面全体を被覆できていることがわかる。この微粒子を純水に 3 時間浸漬し続けた時の飽和磁化は、浸漬前の約 95%である 138emu/g を保った。Fe-B 微粒子にエポキシを被覆することで、水溶液中での酸化を抑制できたと考えられる。Fig. 2 に示す共焦点顕微鏡を用いて観察した複合膜の表面状態より、エポキシを被覆した Fe-B 微粒子を成膜すると表面の平滑性が大幅に向上したことがわかる。LbL 法アシスト複合めっきでは、アルミナ微粒子などの絶縁物をめっきする場合、金属微粒子に比べ平滑な膜が成膜できる。そのため、エポキシ被覆により Fe-B の表面に絶縁層ができ、均一性が向上したと考えられる。しかしながら、膜の比透磁率は、 $\mu_r=1.3$  と小さな値にとどまった。これは、複合膜中の微粒子含有量が約 30.6%と低いことが原因であると考えられる。今後、反応液中の微粒子添加量を増加させ、含有量を大幅に向上させる必要がある。



(a) SEM 像 (b) 炭素組成像

図 1 (Fe-B)-Epoxy の SEM-EDS 像

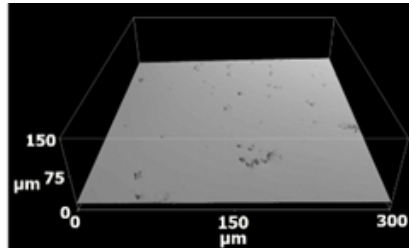


図 2 Fe-B/Epoxy 複合膜の表面状態

## 参考文献

- 1) 藤原康太 他：表面技術協会 第 22 回関西表面技術フォーラム要旨集, 2020-12-04
- 2) 福井斉 他：電気学会論文誌C, 131 巻 11 号, pp. 1843-1847 (2011)

# 強磁性体中のスピホール効果による自己誘起スピン軌道トルク

青木基<sup>1,2</sup>, 重松英<sup>1</sup>, 大島諒<sup>1,2</sup>, 新庄輝也<sup>1,2</sup>, 白石誠司<sup>1,2</sup>, 安藤裕一郎<sup>1,2,3</sup>

(<sup>1</sup>京都大学大学院, <sup>2</sup>京都大学 CSRN, <sup>3</sup>PRESTO, JST)

Self-induced spin-orbit torque induced by the spin Hall effect in ferromagnets

Motomi Aoki<sup>1,2</sup>, Ei Shigematsu<sup>1</sup>, Ryo Ohshima<sup>1,2</sup>, Teruya Shinjo<sup>1,2</sup>,

Masashi Shiraishi<sup>1,2</sup>, and Yuichito Ando<sup>1,2,3</sup>

(<sup>1</sup>Kyoto Univ., <sup>2</sup>CSRN Kyoto Univ., <sup>3</sup>PRESTO, JST)

## 背景

近年のスピン軌道トルク(SOT)に関する研究では、ほぼ全てが非磁性体(NM)/強磁性体(FM)2層構造において、図1(a)に示すような、NM中の電流-スピン流変換現象によりFMへと注入されるスピン流がFMの磁化に与えるトルクを対象としている。一方FM中のスピホール効果を考慮すれば、図1(b)に示すように、FMでスピホール効果(SHE)などにより生成されたスピン流がNMへ流出し、FM内に一方向のスピン流が生成されて、FM自身の磁化に自己誘起スピン軌道トルク(SI-SOT)<sup>1)</sup>が働くと考えられている。重金属に匹敵するスピホール角がCoやNiなどの一般的なFMにも報告されていることを考慮すると、SI-SOTはほぼ全てのNM/FM2層構造でのSOT測定に影響すると予想されるが、SI-SOTに関する実験的研究は少ない。

## 目的・方法

以上を踏まえ、本研究ではNM/FM2層構造におけるSI-SOTの観測を目的とし、Ta/Co2層構造を対象に研究を行った<sup>2)</sup>。本構造においては、TaのSHEによるSOTとCoのSHEによるSI-SOTが逆符号であるため、Co膜厚の増加に従いSI-SOTが増大し、Ta由来のSOTを打ち消すことが予想される。本効果を確認するため、異なるCo膜厚のデバイスに対し、スピントルク強磁性共鳴法<sup>3)</sup>を用いてSOT効率 $\zeta_{\text{FMR}}$ を測定した。

## 結果

図2は測定された $\zeta_{\text{FMR}}$ のCo膜厚 $t_{\text{FM}}$ 依存性である。薄膜領域でのフィールドライクトルクに起因する符号反転に加え、 $t_{\text{FM}} > 8.5$  nmにおいても $\zeta_{\text{FMR}}$ の符号反転が見られた。これはTaのスピホール効果による通常のSOTとCoのスピホール効果によるSI-SOTがCoの膜厚に対して異なる依存性を示し、かつTaとCoではスピホール角の符号が逆であることに起因しており、スピン拡散方程式から予想される信号と一致した。さらにスピン拡散方程式を用いた計算で、非磁性体が高抵抗な場合はSI-SOTの影響が顕著になり、従来の解析手法ではスピホール角を大幅に過大評価する可能性があることを示した。

## 参考文献

- 1) K.-W. Kim *et al.*, Phys. Rev. Lett. **125**, 207205 (2020).
- 2) M. Aoki *et al.*, Phys. Rev. B **106**, 174418 (2022)
- 3) L. Liu *et al.*, Phys. Rev. Lett **106**, 036601 (2011)

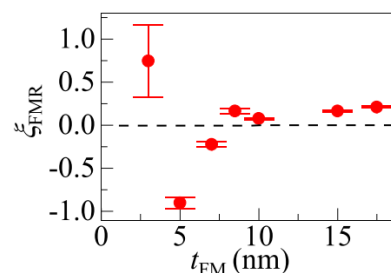
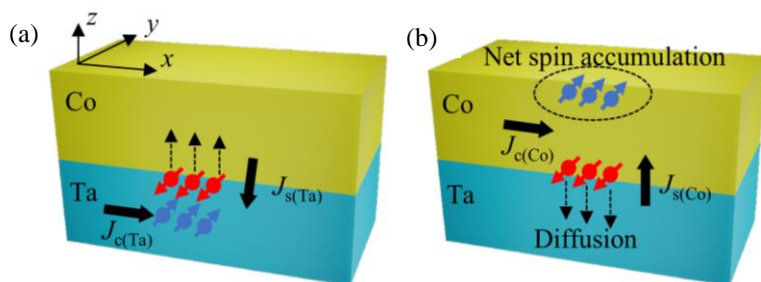


Fig. 1 (a) Injection and (b) absorption of spin current via the SHE in Ta and Co, respectively.  $J_c$  and  $J_s$  are the electric and spin current, respectively.

Fig. 2 Torque efficiency as a function of the thickness of the Co layer

# Ta 層上に積層した Tb/Gd/FeCo 多層膜における スピン軌道トルク磁化反転

藤田雄大, 大島大輝, 高橋茂樹\*, 平山義幸\*, 加藤剛志  
(名古屋大学, \*日本サムスン)

Spin Orbit Torque Magnetization Switching of Tb/Gd/FeCo Multilayers deposited on Ta layer

Y. Fujita, D. Oshima, S. Takahashi\*, Y. Hirayama\*, T. Kato

(Nagoya Univ, \*Samsung Japan Corporation)

## はじめに

スピン軌道トルク(SOT)磁化反転は、現在 MRAM に用いられているスピン移行トルク(STT)磁化反転と比較して、高速かつエネルギー効率が低いことから、次世代の MRAM 書き込み方式として期待されている。また、SOT 磁化反転では、書き込みと読み出しの電流経路が異なるため、読み出し時の誤書き込みが大幅に低減する。我々はこれまで Ta 層上に積層した GdFeCo 合金、Gd/FeCo 多層膜の SOT を調べ、SOT 有効磁界が磁化補償組成に近づくほど増加することなどを報告してきた[1]。また近年、膜厚方向に組成勾配をつけた TbCo 合金において、空間反転対称性の破れに起因する Dzyaloshinskii–Moriya 相互作用(DMI)によって無磁場での SOT 磁化反転が報告されている[2]。本研究では、膜厚方向の構造非対称性を人工的に制御できる構造として、Gd/FeCo/Tb 多層膜に注目し、Ta 上に積層した Gd/FeCo/Tb 多層膜の SOT 磁化反転の Gd/Tb 層厚依存性を測定した。

## 実験方法

試料作製には RF マグネトロンスパッタ装置を用いて成膜した。サンプルとして熱酸化シリコン基板上に Ta(20)/[FeCo(0.5)/Gd(0.5- $t_{Tb}$ )/Tb( $t_{Tb}$ )]<sub>5</sub>/SiN(5)を積層した(数字の単位は nm)。Tb 膜厚  $t_{Tb}$  は 0.08 nm から 0.14 nm と変化させた。サンプルは微細加工前に交番磁界勾配型磁力計(AGM)によって飽和磁化や異方性磁界を測定した。微細加工の際にはホールクロス幅が 3  $\mu\text{m}$  になるように加工し、異常ホール効果(AHE), SOT 磁化反転の測定を行った。SOT 磁化反転は膜面内磁界  $H_{\text{ext}}$  を印加し、パルス幅 1 ms のパルス電流を印加後の AHE を測定することで調べた。

## 実験結果

Fig. 1 (a)は Tb/Gd/FeCo 多層膜の有効磁気異方性  $K_{\text{eff}}$  の Tb 層厚  $t_{Tb}$  依存性を示しており、 $K_{\text{eff}}$  は  $t_{Tb}$  の増加に伴い、増加している。なお、 $K_{\text{eff}}$  は磁化と異方性磁界の積より算出した。Fig. 1 (b)は Ta 層上の Tb/Gd/FeCo 多層膜の SOT 磁化反転電流密度  $J_{\text{sw}}$  の  $H_{\text{ext}}$  依存性を示している。全ての試料で  $J_{\text{sw}}$  は  $H_{\text{ext}}$  の増加とともに低下している。また、 $H_{\text{ext}} = 0$  へ外挿した  $J_{\text{sw}}$  は  $t_{Tb}$  の増加とともに減少しており、 $K_{\text{eff}}$  が増加するにもかかわらず、 $J_{\text{sw}}$  が減少するという結果が得られた。

## 参考文献

- 1) S. Yanai *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **62**, SB1004 (2023).
- 2) Z. Zheng *et al.* Nat. Commun. **12**, 4555 (2021).

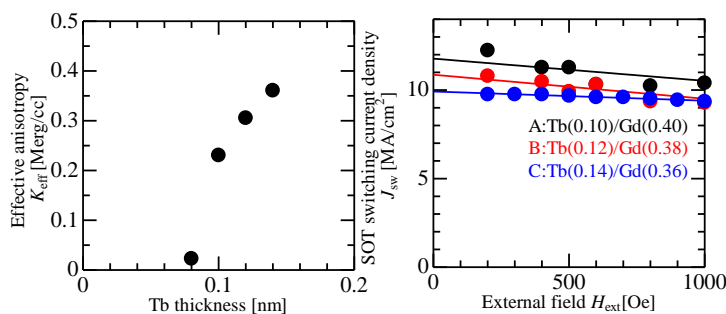


Fig. 1 (a) Tb layer thickness  $t_{Tb}$  dependence of effective magnetic anisotropy  $K_{\text{eff}}$  of Tb/Gd/FeCo MLs. (b) In-plane external field  $H_{\text{ext}}$  dependence of SOT switching current  $J_{\text{sw}}$  of Ta/[Tb/Gd/FeCo] MLs with various Tb layer thickness.

# 単結晶 Dy の強磁性-反強磁性相転移を用いたスピンプンピングの変調

慶大<sup>A</sup>, 慶大スピノ研<sup>B</sup>

山野井 一人<sup>A</sup>, 能崎 幸雄<sup>A, B</sup>

A modulation of spin pumping due to ferromagnetic to antiferromagnetic phase transition  
in single crystalline Dy film

<sup>A</sup>Dept. of Phys. Keio Univ., <sup>B</sup>Keio Spintronics Center

K. Yamanoi<sup>A</sup>, and Y. Nozaki<sup>A, B</sup>

## はじめに

磁化歳差運動を利用してスピンプンピング効果は、様々な材料へのスピンプン注入を可能にするため、スピンプン流が駆動するスピントロニクスデバイスの研究・開発において重要な物理現象である。スピンプンピングによるスピンプン流の生成効率は、スピンプン注入層とスピンプン吸収層（スピンスINK層）の界面のミキシングコンダクタンスとそれぞれのスピンプン輸送特性に依存する。最近、磁気相転移材料をスピンスINK層として使用することで、スピンプンピングによるスピンプン流生成効率を外場により制御した結果が報告された<sup>1)</sup>。本研究では、より大きな磁気相転移由来のスピンプンピング変調を実現するため、強磁性-反強磁性-常磁性相転移する単結晶 Dy 薄膜と強磁性 NiFe を接合した2層膜を作製し、有効ギルバートダンピング定数の温度依存性を測定することにより、磁気相転移に伴う単結晶 Dy へのスピンプン注入効率の変化を調べた。

## 実験方法および結果

マグネトロンスパッタリング法により、熱酸化 Si 基板上に Ta(3 nm)/Dy(50 nm)/NiFe(20 nm)/SiO<sub>2</sub>(30 nm)を成膜した。Dy 層の成膜時のみ基板を 350 度に加熱し、他は室温成膜した。XRD 測定により、Dy 層が単結晶成長していることを確かめた。その後、イオンミリング装置とレーザー描画装置を用いて多層膜を細線形状に加工し、その上に Ti/Au マイクロ波導波路を作製した。図 1 に単結晶 Dy 薄膜の磁気特性の温度依存性を示す。これにより、作製した単結晶 Dy 層で強磁性-反強磁性-常磁性相転移が実現することが分かった。次に、任意の外部磁場下でベクトルネットワークアナライザを用いて導波路の  $S_{11}$  パラメータの周波数依存性を測定し、NiFe 層の強磁性共鳴 (FMR) スペクトルの温度変化を調べた。FMR スペクトルの線幅の周波数依存性から有効ダンピングの温度依存性を評価した。NiFe/Dy の有効ダンピングから、NiFe 単層のダンピングを差し引くことで、単結晶 Dy 薄膜へのスピンプンピングによる有効ダンピングの増大  $\Delta\alpha$  を算出した (図 2)。単結晶 Dy のスピンプンピングは、常磁性-反強磁性相転移点では極大を示した一方で、反強磁性-強磁性相転移点では大きく増加した。前者は、相転移点近傍において熱スピンプン揺らぎによるスピンプンピングの増大に起因する。また強磁性 Dy に対して反強磁性 Dy ではスピンプンピングが大幅に低下し、常磁性 Dy と同程度であることも分かった。これは、先行研究で指摘されている界面ミキシングコンダクタンス効果によるスピンプンピング変調<sup>1)</sup>以外にも、磁気相転移によってスピンプン拡散長が大きく変化することによる変調を示唆している<sup>2)</sup>。

## 参考文献

- 1) B. Khodadad, *et al.* Phys. Rev. B (2017)    2) K. Yamanoi, *et al.* APEX (2023).

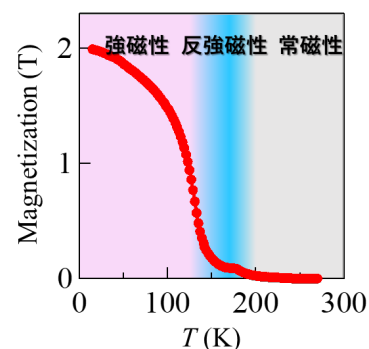


図 1. Dy 薄膜の磁化の温度依存性。

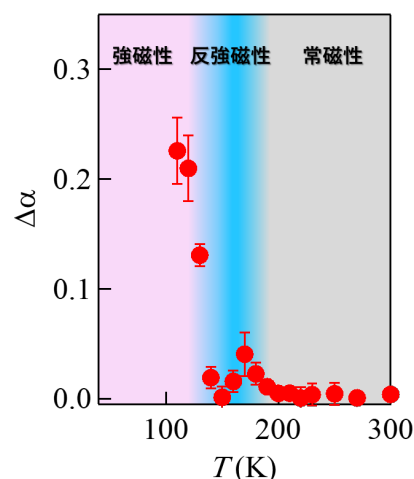


図 2. 単結晶 Dy の  $\Delta\alpha$  の温度依存性。



# MnGa の成長とスピン軌道トルク磁化反転に対する 極薄 Fe 中間層の影響

小川峰登、原拓也、長谷部俊、山ノ内路彦、植村哲也  
(北海道大)

Effect of an ultrathin Fe interlayer on the growth of MnGa and spin-orbit-torque  
induced magnetization switching

M. Ogawa, T. Hara, S. Hasebe, M. Yamanouchi, T. Uemura  
(Hokkaido Univ.)

## はじめに

垂直磁化膜をスピン源とした半導体へのスピン注入は、スピントランジスタやスピン LED などのスピンの機能を利用したデバイスの実現にとって重要な技術である。MnGa は垂直磁気異方性が比較的大きく、また、スピン偏極率も高いことから、垂直スピン源として有望であるが、これまで MnGa から GaAs へのスピン注入効率は 2 K で数%と非常に低い[1]。この原因の一つとして、MnGa は結晶化するために高温成長や熱処理を必要とし、それによって生じる MnGa/GaAs 界面の反応がスピン注入を妨げることが考えられる。本研究では MnGa と GaAs の間に Fe 中間層を挿入することで、垂直磁化特性を有する MnGa が室温で形成できること、さらに、スピン軌道トルク(SOT)磁化反転の効率が增大することを実証した[2]ので報告する。

## 実験方法

GaAs 基板の上に厚さ 250 nm の undoped GaAs バッファ層を MBE にて成長後、MnGa (2 nm)/Fe (0.6 nm) 二層膜を室温で成長した。最後に SOT のスピン源として膜厚 6 nm の Ta 層を成膜した。Fe 中間層の影響を明らかにするため、Fe 中間層無しのサンプルも同時に作製した。そして、積層膜を幅 5  $\mu\text{m}$  のホールバー構造に加工し、磁気特性および SOT 磁化反転の特性を評価した。

## 実験結果

図 1 に GaAs [110] 方向に沿った MnGa の RHEED パターンを示す。同図(a)は Fe 層あり、同図(b)は Fe 層無しのときのパターンである。Fe 層上の MnGa では室温成長でも明瞭なストリークパターンが観察され、MnGa がアニールなしにエピタキシャル成長したことが示された。一方、GaAs 上に直接成膜した MnGa は、成膜直後ではアモルファス状態であり、結晶化のためには 200°C 以上のアニールが必要であった。このことから、極薄の Fe 層が MnGa の室温成長を可能にする下地層として有効であることがわかった。また、磁化測定から、MnGa/Fe 二層膜は MnGa 単層膜と同様に室温で垂直磁化を有していることが分かった(not shown)。

図 2 に MnGa/Fe 二層膜における、パルス電流  $I_P$  に対する横抵抗  $R_{yx}$  の変化を示す。MnGa/Fe 二層膜において、明瞭な SOT 磁化反転が観察された。一方、MnGa 単層膜においては明瞭な磁化反転は観察されなかった(not shown)。講演では MnGa/Fe 二層膜と MnGa 単層膜のより詳細な磁気特性および、SOT 特性について報告する。

## 参考文献

- 1) C. Adelman *et al.*, Appl. Phys. Lett. **89**, 112511 (2006).
- 2) M. Ogawa *et al.*, Appl. Phys. Exp. **16**, 063002 (2023).

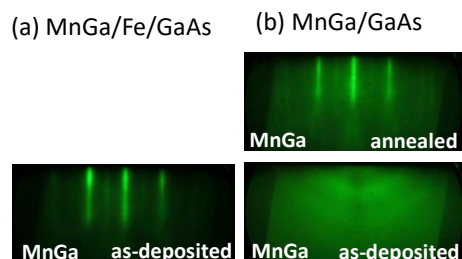


図 1. GaAs 基板の [110] 方向に沿った、(a)MnGa/Fe/GaAs, (b)MnGa/GaAs サンプルにおける、MnGa の RHEED パターン。

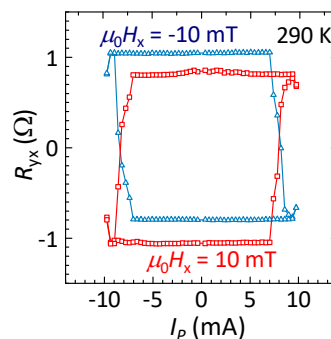


図 2. 290 K における、幅 100  $\mu\text{s}$  の  $I_P$  に対する  $R_{yx}$  の変化。 $\mu_0 H_x$  は  $I_P$  に平行な方向に印加した面内の外部磁場である。

# 垂直磁化 Co/Pd メモリ層を用いた CPP-GMR 膜における STT アシスト SOT 磁化反転

潘 達, 曹 哲, 大島大輝, 加藤剛志  
(名古屋大)

Spin transfer torque assisted spin orbit torque switching of CPP-GMR with  
perpendicularly magnetized Co/Pd memory layer

D. Pan, Z. Cao, D. Oshima, T. Kato  
(Nagoya Univ.)

## はじめに

Co/Pd 多層膜は大きな界面垂直磁気異方性を有するだけでなく、層厚比を変えることで実効異方性を容易に制御できることから、大容量磁気ランダムアクセスメモリ(MRAM)のメモリ層として注目されている。MRAM 書き込み技術として、高速かつ高効率なスピン軌道トルク(SOT)磁化反転が注目されているが、SOT-MRAM は3端子素子となるため、セルサイズが大きく、高密度化に課題がある。これを解決するために、メモリとなる磁性体柱に磁壁を導入し、スピン移行トルク(STT)で磁壁を移動させる新たな3次元多値磁気メモリ素子が提案されている[1]。本研究では、この3次元磁気メモリの書き込み方式として、SOTとスピン移行トルク(STT)の同時印加による垂直磁化 Co/Pd メモリ層の磁化反転[2]を調べた。

## 実験方法

500 nm 熱酸化膜付きシリコン基板に、SiN(5)/Pt(35)/Cu(0.2)/Co(0.4)/Pd(0.2)/Co(0.4)/Cu(3)/Co(0.6)/[Pt(1.0)/Co(0.6)]<sub>2</sub>/Ru(0.85)/[Co(0.6)/Pt(1.0)]<sub>4</sub>/Ru(5.0)を超高真空 RF スパッタリング法により成膜した。積層膜はフォトリソグラフィ、電子線リソグラフィ、Ar<sup>+</sup>エッチングにより電流を膜法線方向に流す巨大磁気抵抗(GMR)素子に加工した。下部電極の幅は4 μmである。STTおよびSOT磁化反転はそれぞれ、GMR素子およびPt下部電極にパルス電流を印加することで確認した。STTアシストSOT磁化反転はGMR素子及びPt下部電極にパルス電流を同時に印加した後、GMR素子抵抗を測定することで確認した。但し、SOTおよびSTTのパルス幅はそれぞれ、10 μs, 12 μsであり、SOT電流はSTT電流を注入した1 μs後に注入した。

## 実験結果

Fig. 1に3 kOeの面内補助磁場を印加した際のSOT磁化反転を示している。積層フェリ固定層からの浮遊磁場が十分小さいため、平行、反平行遷移で同程度の臨界電流でSOT磁化反転していることが確認された。Fig. 2にSOT磁化反転電流密度 $J_{SOT}$ のSTTアシスト電流密度 $J_{STT}$ 依存性を示す。面内磁場は図中に示している。 $J_{STT}$ の増加により、 $J_{SOT}$ は大幅に減少することが確認された。Fig. 2の傾き $\Delta J_{SOT}/\Delta J_{STT}$ で定義されるアシスト効率の面内磁場依存性をFig. 3に示す。アシスト効率は面内磁場の大きさに依存し、面内磁界が小さいほど高いアシスト効率を得られることが分かった。

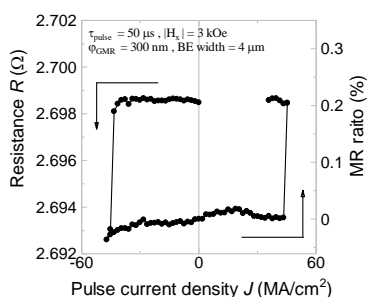


Fig. 1 SOT switching loop of GMR pillar under STT assisting current.

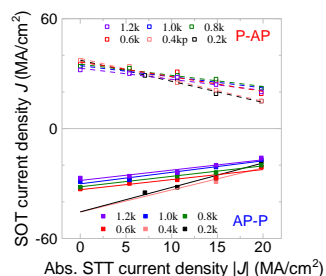


Fig. 2 STT assisted SOT switching current density under different in-plane magnetic fields.

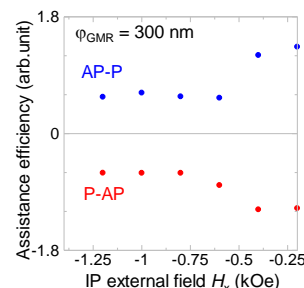


Fig. 3 STT assist efficiency as a function of in-plane magnetic field.

## 参考文献

- [1] Y. M. Hung *et al.*, *J. Magn. Soc. Jpn.* **45**, 6 (2021).
- [2] D. Pan *et al.*, *IEEE Trans. Magn.* (2023), DOI: 10.1109/tmag.2023.3284862.

# Thermal spin-transfer torque assisted all-optical switching in L1<sub>0</sub>-ordered FePt thin films

Jian Wang<sup>1\*</sup>, Zhenchao Wen<sup>2</sup>, Yuta Sasaki<sup>2</sup>, Yukiko K. Takahashi<sup>2</sup>, Ken-ichi Uchida<sup>2</sup>  
Kenta Takagi<sup>1</sup> & Kimihiro Ozaki<sup>1</sup>  
<sup>1</sup> AIST. <sup>2</sup> NIMS.

FePt nanogranular film-based heat assisted magnetic recording (HAMR) is a promising technology which uses temporary near-field laser heating of the hard magnetic recording media during writing to increase the storage density of hard disk drives [1]. Besides the heating effect, the circularly polarized laser can also induce helicity dependent magnetization reversal in magnetic materials, so called all-optical switching (AOS) [2]. With its interesting physical phenomenon and potential practical application, the integration of AOS into HAMR technique *i.e.*, realizing laser-induced deterministic magnetization switching in magnetically hard FePt nanogranular film is attracting increasing interest. However, to date, deterministic (100%) AOS has only been reported in soft magnetic materials (*e.g.*, GdFeCo or [Co/Pt]<sub>n</sub> films [3]).

In this work, we propose and demonstrate a thermal spin-transfer torque (STT) assisted AOS in FePt nanogranular films deposited on ferrimagnetic yttrium iron garnet (YIG) substrates. As the conceptual diagram illustrated in **Fig. 1**, a thermal gradient ( $\nabla T$ ) is created in the YIG/FePt bilayer film when expose the sample with circular polarized laser ( $\sigma^+/\sigma^-$ ). Consequently, a pure spin current was generated and injected from YIG substrate into the FePt film via the spin Seebeck effect (SSE). It then exerts a spin-transfer torque on the magnetic moment of FePt film and assists the magnetization reversal associated with AOS.

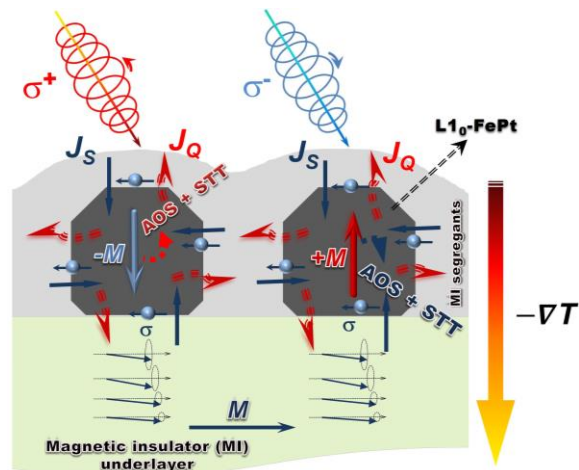
Experimentally, FePt-C nanogranular films were deposited on both YIG and GGG substrates by magnetron sputtering. The YIG and GGG substrates were selected here due to their close match in lattice constants, but distinct spin Seebeck coefficient which enable valid comparison and extract the potential contribution from thermal-STT on the AOS in FePt films. Furthermore, both the laser helicity and laser fluence dependent on AOS in all the samples were investigated to prove the proposed approach. The results from magneto-optical measurement indicated an enhanced helicity-dependent AOS in YIG/FePt-C bilayer sample than GGG/FePt-C bilayer film. Furthermore, the AOS effect presents a visible positive colinear relationship with the laser fluence in YIG/FePt-C bilayer film while it is almost unchanged in GGG/FePt-C bilayer sample. The potential contribution from the thermal-STT on the AOS in FePt nanogranular films will be discussed in detailed with experimental results in the presentation.

## Acknowledgement

This work was supported by Early-Career Scientists (21K14521) from JSPS KAKENHI, Japan.

## Reference

- [1] D. Weller, G. Parker, O. Mosendz, A. Lyberatos, D. Mitin, N. Y. Safonova, and M. Albrecht, *J. Vac. Sci. Technol. B* 34, 060801 (2016).
- [2] Y. K. Takahashi, Y. K. Takahashi, R. Medapalli, S. Kasai, J. Wang, K. Ishioka, *et al.*, *Phys. Rev. Appl.* 6, 054004 (2016).
- [3] S Mangin, M Gottwald, C-H Lambert, D Steil, V Uhlir, L Pang, M Hehn, S Alebrand, M Cinchetti, *et al.*, *Nat. Mater.* 13, 286 (2014).



**Fig. 1.** Conceptual diagram of the laser induced thermal spin-transfer torque for assisting magnetization reversal in FePt nanogranular media.

## ナノ構造磁性体における創発電磁応答の周波数特性

家田淳一、荒木康史、山根結太\*  
(原子力機構、\*東北大)

Frequency characteristics of emergent electromagnetic response in magnetic nanostructures

J. Ieda, Y. Araki, and Y. Yamane  
(JAEA, \*Tohoku Univ.)

$s$ - $d$  交換結合は、強磁性導体および強磁性/非磁性界面等ナノ構造磁性体において、伝導電子スピンの磁化の間で角運動量とエネルギーの移行をもたらす、各々スピン移行トルク (STT) とスピン起電力 (SMF) といった創発電磁応答を導く。近年この STT と SMF を組み合わせることで、らせん磁性体による「創発インダクタ (EI)」が理論提案された<sup>1)</sup>。らせん磁性体に電流を流すと、伝導電子スピンの STT を介して、らせん磁化構造に磁気エネルギーが蓄えられる。さらに、らせん磁化構造のダイナミクスによって SMF が生じ、逆電圧を入力電流が感じることでインダクタンスが得られる。EI の顕著な特徴は、インダクタンスが電流の流れる素子断面積に反比例する点である。これは、コイルの断面積に比例する従来のインダクタンスと本質的に異なり、インダクタの微細化に革新をもたらす可能性を有する。これまでにらせん磁性体  $Gd_3Ru_4Al_{12}$  による低温 ( $T < 20$  K) での EI 原理の実証<sup>2)</sup>、らせん面の並進運動と傘状変形という二つの励起モードが正負のリアクタンスに寄与することの理論的解明<sup>3,4)</sup>、らせん磁性体  $YMn_6Sn_6$  における室温創発インダクタンスの観察<sup>5,6)</sup>、が報告されている。また、最近著者らは EI の概念拡張を行い、スピン軌道結合を起源とした EI<sup>7)</sup> や、絶縁体を使った EI の実施形態<sup>8)</sup> を提案している。

今回、これまでに検討されてきた様々なナノ構造磁性体における EI について、特に周波数特性に関する比較を行い、その物理的な意義を議論する。

### 参考文献

- 1) N. Nagaosa, "Emergent inductor by spiral magnets," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **58**, 120909 (2019).
- 2) T. Yokouchi *et al.*, "Emergent electromagnetic induction in a helical-spin magnet," *Nature*, **586**, 232 (2020).
- 3) J. Ieda and Y. Yamane, "Intrinsic and extrinsic tunability of Rashba spin-orbit coupled emergent inductors," *Phys. Rev. B*, **103**, L100402, (2021).
- 4) D. Kurebayashi and N. Nagaosa, "Electromagnetic response in spiral magnets and emergent inductance," *Commun. Phys.*, **4**, 260 (2021).
- 5) A. Kitaori *et al.*, "Emergent electromagnetic induction beyond room temperature," *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, **118**, e2105422118, (2021).
- 6) A. Kitaori *et al.*, "Doping control of magnetism and emergent electromagnetic induction in high-temperature helimagnets," *Phys. Rev. B*, **107**, 024406, (2023).
- 7) Y. Yamane, S. Fukami, and J. Ieda, "Theory of emergent inductance with spin-orbit coupling effects," *Phys. Rev. Lett.*, **128**, 147201 (2022).
- 8) Y. Araki and J. Ieda, "Emergence of inductance and capacitance from topological electromagnetism," *J. Phys. Soc. Jpn.*, **92**, 074705 (2023).

# Anisotropic magnetoresistance effect in $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$ films grown by molecular beam epitaxy

Weida Yin<sup>1</sup>, Keita Ito<sup>1</sup>, Takahiro Tanaka<sup>1</sup>, Rie Y. Umetsu<sup>1</sup>  
(IMR, Tohoku Univ.<sup>1</sup>)

## 【Introduction】

Anisotropic magnetoresistance (AMR) is a phenomenon whereby the resistivity of a material changes in response to the direction of an external magnetic field ( $H_{\text{ex}}$ ). AMR represents a significant magnetoresistance effect and finds wide-ranging applications in fields such as magnetic sensors and magnetic storage.  $\text{Fe}_4\text{N}$  is an interesting ferromagnetic material showing negative AMR and the anomalous  $\cos^4\theta$  term ( $C_4$ ) significantly increase at low temperature ( $T$ ).<sup>1-3</sup> AMR of  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  films with  $x = 1$  and 3 have been reported, but the origin of  $C_4$  is still unclear.<sup>4</sup> In this study,  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  films with smaller incremental changes in  $x$  were fabricated and their AMRs were measured.

## 【Experiments】

The epitaxial  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  films were grown on  $\text{MgAl}_2\text{O}_4(\text{MAO})(001)$  substrates at 450 °C by molecular beam epitaxy. Fe and Ni were supplied by electron beam gun and N was simultaneously supplied by radio-frequency plasma gun. The structures of the samples were characterized by reflection high-energy electron diffraction and x-ray diffraction. The Ni/Fe ratio,  $x$ , in  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  films was characterized by electron probe micro analyzer as  $x = 0, 0.6, 1.2, 1.6,$  and 2.2. The samples were microfabricated into a Hall bar shape, and AMR were characterized by using a physical properties measurement system. The sample was rotated under a steady  $H_{\text{ex}}$  of 3 T as shown in Fig. 1, and AMR was measured by four-probe method while changing the relative angle between  $H_{\text{ex}}$  and the current under different  $T$  of 6, 75, 200, and 300 K for all the sample.

## 【Results】

The  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  films were epitaxially grown on the MAO(001) substrates, but the uniform  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  phase was hard to form with the increase of Ni composition and started to decompose into FeNi at approximately  $x = 2.2$ . The relationship between  $T$  and AMR ratio ( $r_{\text{AMR}}$ ) in the  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  films with different  $x$  is shown in Fig. 2. In the sample with  $x = 1.2, 1.6,$  and 2.2, the  $r_{\text{AMR}}$  value is positive at 300 K. In contrast, negative  $r_{\text{AMR}}$  is obtained at 300 K in the samples with  $x = 0$  and 0.6. The absolute value of  $r_{\text{AMR}}$  gradually increased with the decreasing  $T$  and the sign of  $r_{\text{AMR}}$  of the samples with  $x = 1.2, 1.6,$  and 2.2 became negative. Particularly in the  $\text{Fe}_4\text{N}$  film, the  $|r_{\text{AMR}}|$  rapidly enhanced to 9.8% at 6 K, which is much larger than the reported  $|r_{\text{AMR}}|$  for  $\text{Fe}_4\text{N}$  films grown on  $\text{MgO}(001)$  and  $\text{SrTiO}_3(001)$  substrates.<sup>1-3</sup> The negative spin-polarization of density of states at the Fermi level ( $P$ ) in  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  is reported.<sup>5</sup> Considering a theoretical model reported in ref. 6, the combination of negative  $r_{\text{AMR}}$  and negative  $P$  obtained at low temperature region means that minority spin transport is dominant in the  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  films with  $x$  of 0 to 2.2.  $T$  dependence of  $C_4$  will be discussed in the presentation.

## Reference

- 1) M. Tsunoda *et al.*, Appl. Phys. Express **3**, 113003 (2010).
- 2) K. Kabara *et al.*, Appl. Phys. Express **7**, 063003 (2014).
- 3) K. Ito *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **51**, 068001 (2012).
- 4) F. Takata *et al.*, J. Appl. Phys. **121**, 023903 (2017).
- 5) F. Takata *et al.*, J. Appl. Phys. **120**, 083907 (2016).
- 6) S. Kokado *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 024705 (2012).



Fig. 1 A schematic geometry of the transverse AMR measurement. Fig. 2 Temperature dependence of AMR ratio of  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  films.

## Co 基ホイスラーバルク単結晶の結晶方位を考慮した 異方性磁気抵抗効果の温度依存性

田中貴大、窪田崇秀\*、古門聡士\*\*、梅津理恵  
(東北大金研、\*東北大工、\*\*静岡大総科技研)

Temperature dependence of anisotropic magnetoresistance effect considering crystal orientation of Co-based  
Heusler bulk-single crystals

T. Tanaka, T. Kubota\*, S. Kokado\*\*, R. Y. Umetsu

(IMR Tohoku Univ., \*Grad. Sch. Eng. Tohoku Univ., \*\*Grad. Sch. Integ. Sci. Tech. Shizuoka Univ.)

### はじめに

負の符号を示す異方性磁気抵抗効果(AMR)は、ハーフメタル型強磁性体(HMF)であることの必要条件とされ、簡易的に HMF の性質を評価する上で有用な手段であると理論的に示唆されている<sup>1)</sup>。しかしながら、HMF となり得るホイスラー合金において結晶方位を考慮した AMR の報告例は限られており、ハーフメタル性と AMR の結晶方位依存性との関係を実験的に系統的に解明されることが望まれる。そこで、本研究では Co 基ホイスラー合金のうち高いキュリー温度を有する  $\text{Co}_2\text{MnGe}$  および  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  のバルク単結晶試料を用いて、三次元的な結晶方位を考慮した AMR およびその温度依存性を報告する。

### 実験方法

バルク単結晶試料はブリッジマン法にて作製された。試料はラウエ回折パターンにより確認された特定の結晶方位([100]、[110]、または[111])に沿って短冊状に加工した。その試料を 3T の定常磁場下で回転させ、磁場と電流方向(結晶方位と平行)との相対角度を変化させながら四端子法にて 6 K から 300 K の温度範囲で測定を行った。AMR 比は  $\text{AMR}_\theta = (\rho(\theta) - \rho_\perp) / \rho_\perp \times 100 (\%)$  と定義される。ここで  $\rho(\theta)$  は磁場と電流方向との相対角  $\theta$  における観測された抵抗率を、 $\rho_\perp$  は  $\theta$  が 90 度の時の抵抗率を表す。

### 実験結果

Fig.1 に AMR 比の角度及び温度依存性の結果を示す。 $\text{Co}_2\text{MnGe}$  では、[100]・[110]・[111]の全方位で負の AMR が観測された。温度が 6 K から 300 K まで変化しても符号は変わらず、AMR 比の絶対値もわずかに増加する程度であった。一方、 $\text{Co}_2\text{FeSi}$  では、[110]・[111]では負の AMR が、[100]では 6 K において正の AMR が観測された。また温度上昇に伴い、AMR 比の絶対値が低下した。なお、[100]・[110]における AMR の符号の結果は、古門らが提案した結晶場効果を取り入れた s-d 散乱モデル<sup>2)</sup>との整合性が確認された。

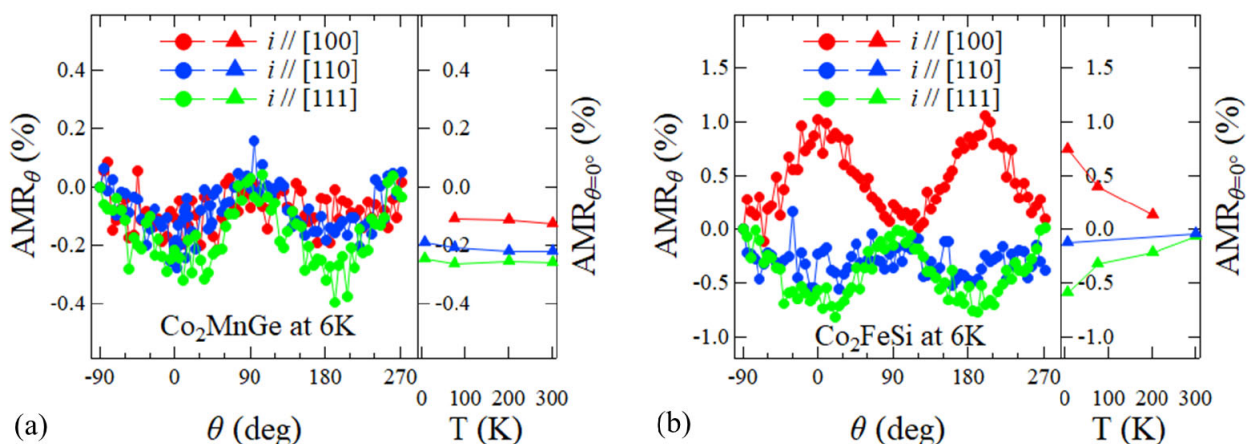


Fig.1 Angle and temperature dependence of AMR ratio of (a)  $\text{Co}_2\text{MnGe}$  and (b)  $\text{Co}_2\text{FeSi}$ .

### 参考文献

- 1) S. Kokado, M. Tsunoda, K. Harigaya and A. Sakuma: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **81**, 024705 (2012).
- 2) S. Kokado and M. Tsunoda: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **88**, 034706 (2019).

# 量子アニーリングによる不規則性トンネルバリア設計

名和 憲嗣<sup>1,2</sup>, 鈴木 健司<sup>3</sup>, 増田 啓介<sup>2</sup>, 田中 宗<sup>4,5</sup>, 三浦 良雄<sup>2,6</sup>

(三重大院工<sup>1</sup>, 物材機構<sup>2</sup>, TDK<sup>3</sup>, 慶大理工<sup>4</sup>, 慶大 WPI-Bio2Q<sup>5</sup>, 大阪大 CSRN<sup>6</sup>)

Quantum-annealing approach for designing cation-disordered spinels for magnetic tunnel junctions

K. Nawa<sup>1,2</sup>, T. Suzuki<sup>3</sup>, K. Masuda<sup>2</sup>, S. Tanaka<sup>4,5</sup>, and Y. Miura<sup>2,6</sup>

(Mie Univ.<sup>1</sup>, NIMS<sup>2</sup>, TDK<sup>3</sup>, Keio Univ.<sup>4</sup>, WPI-Bio2Q, Keio Univ.<sup>5</sup>, CSRN, Osaka Univ.<sup>6</sup>)

## はじめに

第一原理計算と機械学習によるデータ駆動の材料開発、いわゆるマテリアルズ・インフォマティクス (MI) が急速に発展しており、材料を構成する元素種や組成比、規則性・不規則性などの様々な自由度を所望の物性に合わせて最適化するための手法開発が多く行われている。最近では、組合せ最適化問題に特化した量子アニーリング (QA) を用いた手法も提案され<sup>1)</sup>、この手法がバイズ最適化 (BO) よりも優れた探索効率を示し得ることが、Li バッテリー材料を例に示された<sup>2)</sup>。本研究では、スピントロニクス材料に対する QA 法の有用性を検証すべく、磁気トンネル接合素子 (MTJ) の有望なバリア材料である逆スピネル MgGa<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (MGO) に注目し、全エネルギー ( $\Delta E_{\text{Total}}$ )、トンネル磁気抵抗比 (TMR) および素子抵抗 (RA) に対するカチオン不規則配列の最適化を試みた。

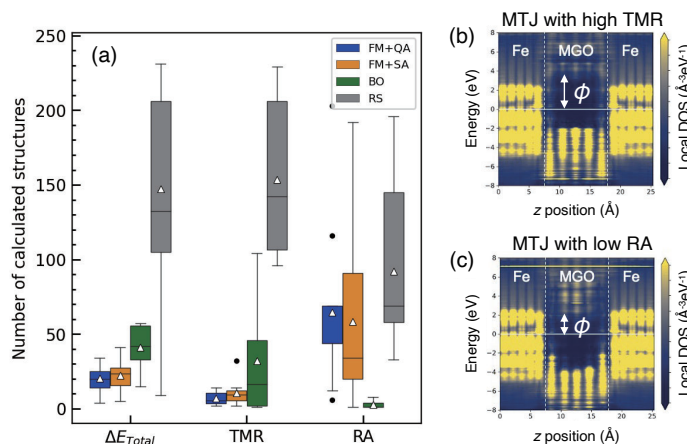
## 解析方法・結果

9 原子層の逆スピネル MGO を用いた Fe/MGO/Fe(001)-MTJ において、カチオンの Mg と Ga は八面体サイトを不規則に占有し、この不規則配列の組み合わせの数は 252 (= 10C<sub>5</sub>) 通りとなる。この中からランダムに選んだ 20 構造に対して第一原理計算を行い  $\Delta E_{\text{Total}}$ , TMR, RA の訓練データを作成し、機械学習の Factorization machine (FM) と量子アニーリングを組み合わせた FM+QA 法<sup>2)</sup>により、次候補のカチオン配列を予測した。予測された MTJ 構造の第一原理計算と FM+QA 法による予測を繰り返し、各物性に対して最適な MTJ 構造が得られるまでに必要な構造数を調べた<sup>3)</sup>。

Fig. 1(a)の通り、FM+QA 法は、 $\Delta E_{\text{Total}}$  と TMR を最適化するカチオン配列の探索には他手法 (FM+SA, BO, RS) より優れた効率を示したが、RA の最適化においては BO が最も優れた探索効率を示した。よって、FM+QA 法の優位性は目的とする物理量に依存する結果が得られた。カチオン配列の特徴を調べたところ、高 TMR (低 RA) を示す MTJ では Mg (Ga) が MGO 層の中央領域に集中して分布していた。第一原理計算の解析から、MGO 層の中央領域に Mg (Ga) が分布することでバリア高さが高く (低く) なり、これが高 TMR (低 RA) の起源であることが分かった [Fig. 1(b), (c)]。本研究は、TDK 株式会社、科研費 (JP20H02190, JP20K14782, JP21H01750, JP21K03391, JP22H04966, JP22K14290, JP23H05447, JP23H05447), JST (JPMJPF2221), WPI-Bio2Q の助成を受けて行われた。

## 参考文献

- 1) K. Kitai, *et al.*, Phys. Rev. Res. **2**, 013319 (2020).
- 2) K. Hatakeyama-Sato, *et al.*, Adv. Intell. Syst. **3**, 2000209 (2021).
- 3) K. Nawa, T. Suzuki, K. Masuda, S. Tanaka, Y. Miura (submitted).



**Fig. 1** (a) Searching efficiency for optimizing  $\Delta E_{\text{Total}}$ , TMR, and RA with a comparison of FM+SA (simulated annealing), BO (Bayesian optimization), and RS (random search). (b) and (c) Local density of states projected on real-space MTJ structure showing the highest TMR and lowest RA.

# 垂直磁化の導電性コバルトフェライト電極を用いた 磁気トンネル接合素子のトンネル磁気抵抗効果

田中 雅章, 市川 知幸, 眞下 大輔, 森下 雅也, 小見山 遥\*, 本多 周太\*\*, 小野 輝男\*, 壬生 攻  
(名工大工, \*京大化研, \*\*関西大シス理)

Tunnel magnetoresistance effect of magnetic tunnel junctions  
using perpendicularly magnetized conductive cobalt ferrite electrodes

M. A. Tanaka, T. Ichikawa, D. Mashimo, M. Morishita, H. Komiyama, S. Honda, T. Ono, and K. Mibu  
(Nagoya Inst. Tech., \*Kyoto Univ., \*\* Kansai Univ.)

## はじめに

コバルトフェライト(CFO)は逆スピネル構造を持つフェリ磁性であり、面内方向の引っ張り歪みを受けた(001)配向のCFO薄膜は大きな垂直磁気異方性を示す[1-2]。我々はFeリッチのCFO薄膜を作製するときの作製条件を調整することで、 $\text{Fe}^{2+}$ がほとんど存在しないため絶縁性を示すI-CFO (Insulative-  $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_{4+\delta}$  ( $0 < x < 1$ ))と $\text{Fe}^{2+}$ と $\text{Fe}^{3+}$ が存在することで導電性を示すC-CFO (Conductive-  $\text{Co}_y\text{Fe}_{3-y}\text{O}_4$  ( $0 < y < 1$ ))の垂直磁化膜を作り分けができることを報告した[3]。また、絶縁性のI-CFO薄膜のトンネル型スピフィルター効果を使って100 Kで-28%の効率を示すスピン注入を観測した[4]。本研究では、第一原理計算から少数スピンを持つ電子が伝導に支配的で高いスピン注入効率が期待できる導電性のC-CFOに注目し、垂直磁化を持つC-CFO薄膜を強磁性電極とする非磁性層バリアの磁気トンネル接合(MTJ)素子を作製し、このMTJ素子に対してトンネル磁気抵抗(TMR)効果の測定を行うことでC-CFO薄膜のスピン注入効率を評価した。

## 実験方法

パルスレーザー堆積法でMgO(001)基板上にバッファ層I-CFO(20 nm)、MTJ素子の下部強磁性電極C-CFO(20 nm)、非磁性トンネルバリア層MgO(2.5 nm)の順番で製膜した。その上に上部強磁性電極としてCo(1.0 nm)/{Tb(0.45 nm)/Co(0.65 nm)}<sub>15</sub>/Co(2.0 nm)またはC-CFO(10 nm)/Pt(3.0 nm)の多層膜を作製し、それぞれMTJ-1とMTJ-2とした。X線回折装置で結晶構造と格子歪みの評価を行い、SQUID磁束計を用いて磁化測定を行った。またフォトリソグラフィとArイオンミリングを用いて直径が数 $\mu\text{m}$ のMTJ素子を作製したのち、膜面垂直方向に外部磁場を印加して磁気抵抗測定を行い、観測されたTMR効果からスピン注入効率を評価した。

## 実験結果

MgO(001)基板上ではバッファ層のI-CFOと下部強磁性電極層のC-CFOは(001)方向にエピタキシャル成長し、基板の影響を受けて面内方向の引張歪みが存在することがわかった。また、磁化測定からMTJ素子用の多層膜は下部・上部強磁性電極ともに垂直磁化を示し、C-CFO層は垂直磁気異方性が誘起されていることがわかった。磁気抵抗測定から、MTJ-1素子は100 Kにおいて上下の強磁性層の磁化が反平行状態で抵抗値が小さくなる-5%の負のTMR効果が観測された。一方でMTJ-2では100 Kにおいて上下の強磁性層の磁化が平行状態で抵抗値が小さくなる+6%の正のTMR効果が観測された。第一原理計算からC-CFOでは少数スピンを持つ電子が伝導に支配的でCoでは多数スピンを持つ電子が伝導に支配的なため、C-CFO層とCo層を用いたMTJ-1では負のTMR効果が観測され、上下の強磁性層にC-CFO層を用いたMTJ-2では正のTMR効果が観測されたと考えられる。以上のように、本研究ではC-CFO薄膜による垂直磁化方式のトンネル接合の作製に成功した。MTJ-2で観測されたTMR比からジュリエールの式で見積もられたC-CFO層のスピン注入効率は-3%であった。

## 参考文献

- [1] H. Yanagihara *et al.*, J. Appl. Phys. 109, 07D122 (2011). [2] J. Okabayashi *et al.*, Phys. Rev. B 105, 134416 (2022). [3] M. Morishita *et al.*, Phys. Rev. Mater. 7, 054402 (2023). [4] M. Tanaka *et al.*, Appl. Phys. Lett. 122, 042401 (2023).



# SrTiO<sub>3</sub> を用いた(111)配向磁気トンネル接合の理論研究

増田啓介<sup>1</sup>, 伊藤博介<sup>2</sup>, 園部義明<sup>3</sup>, 介川裕章<sup>1</sup>, 三谷誠司<sup>1</sup>, 三浦良雄<sup>1</sup>  
(物質・材料研究機構<sup>1</sup>, 関西大システム理工<sup>2</sup>, 早大ナノ・ライフ研究機構<sup>3</sup>)

Theoretical study for (111)-oriented magnetic tunnel junctions with SrTiO<sub>3</sub> barriers

K. Masuda<sup>1</sup>, H. Itoh<sup>2</sup>, Y. Sonobe<sup>3</sup>, H. Sukegawa<sup>1</sup>, S. Mitani<sup>1</sup>, and Y. Miura<sup>1</sup>

(NIMS<sup>1</sup>, Kansai Univ.<sup>2</sup>, Waseda Univ.<sup>3</sup>)

## はじめに

磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) への応用のため, 磁気トンネル接合 (MTJ) は高いトンネル磁気抵抗比 (TMR 比) と大きな垂直磁気異方性 (PMA) を有する必要がある. このような主眼から, 我々はこれまで fcc 強磁性体の [111] 方向を積層方向とした新規 (111) 配向 MTJ について理論研究を行ってきた [1,2]. 我々はトンネル障壁として MgO を用いた MTJ について解析を行い, 2000% を超える高い TMR 比と L1 強磁性合金の電子構造に由来する大きな垂直磁気異方性が両立することを実証してきた [1,2]. しかし (111) 配向 MTJ のトンネル障壁は MgO に限られたものではなく, その他の物質について検討することは新規 MTJ の更なる可能性を開拓する上で重要である. そこで本研究では, トンネル障壁として歴史的に重要な役割を果たしてきた SrTiO<sub>3</sub> を取り上げ, これを用いた (111) 配向 MTJ の TMR 効果について理論検討を行う [3].

## 解析方法・結果

本研究ではトンネル障壁として SrTiO<sub>3</sub>, 強磁性電極として fcc Co (Ni) を用いた (111) 配向 MTJ [Fig. 1(a)] を採用する. これらの MTJ に対し, 密度汎関数理論に基づく第一原理計算と Landauer 公式を適用することで TMR 比を計算した [3].

解析の結果, Co を用いた MTJ で 534%, Ni を用いた MTJ で 290% という比較的高い TMR 比が得られた. このような高い TMR 比の起源を知るために電気伝導度の面内波数 ( $k_{\parallel}$ ) 依存性を解析したところ, 少数スピン状態におけるコンダクタンスの  $\Gamma$  点 [ $k_{\parallel}=(0,0)$ ] にブロードなピークが確認された. これは強磁性電極 Co, Ni のバルクのバンド構造が TMR 効果に主要な寄与を与えていることを示している. そこでこれらのバンド構造を詳細に調べた. Fig. 1(b) に Co の  $\Lambda$  線 ( $\Gamma$  点から  $k_z$  方向に伸びる高対称線で [111] 方向に対応) 上のバンド構造を示すが,  $\Lambda_1$  状態からなるバンドがハーフメタル性を有していることがわかる. このハーフメタル性は, Co と SrTiO<sub>3</sub> の面内格子周期の不一致により, Co でバンドが折り畳まれることにより生じる. また SrTiO<sub>3</sub> の複素バンド構造の解析から,  $\Lambda_1$  状態はトンネル障壁中で小さな減衰率を持ち, トンネル伝導で主要な役割を果たすことが確認された. 以上の結果から, 今回得られた高い TMR 比は強磁性体の  $\Lambda_1$  状態におけるハーフメタル性によって誘起されていると結論づけることができる [3]. 本研究は JSPS 科研費 (JP20H02190, JP20K14782, JP21H01750, JP22H04966, JP23K03933) 及び JST CREST (JPMJCR21C1) の支援を受けて行われたものである.

## 参考文献

- 1) K. Masuda, H. Itoh, and Y. Miura, Phys. Rev. B **101**, 144404 (2020).
- 2) K. Masuda, H. Itoh, Y. Sonobe, H. Sukegawa, S. Mitani, and Y. Miura, Phys. Rev. B **103**, 064427 (2021).
- 3) K. Masuda, H. Itoh, Y. Sonobe, H. Sukegawa, S. Mitani, and Y. Miura, Phys. Rev. B **106**, 134438 (2022).

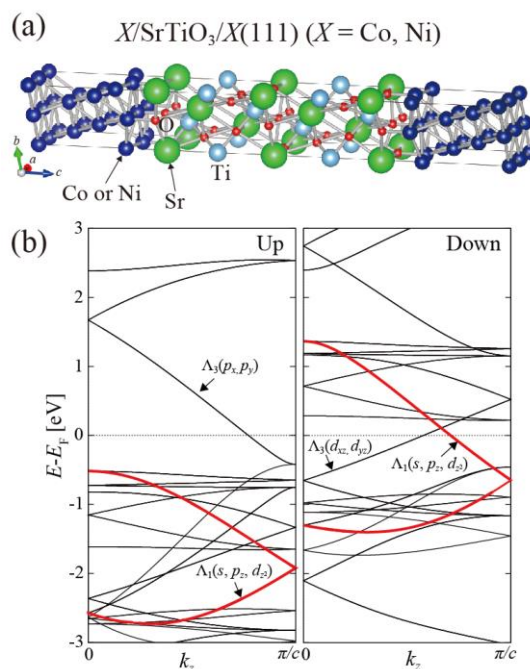


FIG.1. (a) Supercell of  $X/\text{SrTiO}_3/X(111)$  ( $X = \text{Co}, \text{Ni}$ ). (b) Up- and Down-spin band structures along the  $\Lambda$  line of fcc Co for the unit cell with four atoms in each plane. From Ref. [3].

## Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-MTJs の磁気トンネル特性のバリア材料依存性

吉野 克己<sup>1</sup>、安井 彰馬<sup>1</sup>、横倉 聖也<sup>2</sup>、島田 敏宏<sup>2</sup>、長浜 太郎<sup>3</sup>

北海道大学大学院総合化学院<sup>1</sup>、北海道大学大学院工学研究院<sup>2</sup>、山口大学大学院創成科学研究科<sup>3</sup>

Dependence of magnetic tunneling properties of Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-MTJs on barrier material

Katsumi Yoshino<sup>1</sup>, Shoma Yasui<sup>1</sup>, Seiya Yokokura<sup>2</sup>, Toshihiro Shimada<sup>2</sup>, Taro Nagahama<sup>3</sup>

Graduate School of Chemical Science and Engineering, Hokkaido University<sup>1</sup>

Graduate School of Engineering, Hokkaido University<sup>2</sup>

Graduate School of Science and Technology for Innovation, Yamaguchi University<sup>3</sup>

### はじめに

Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>はハーフメタル特性を持ち、MTJsの強磁性体層として期待される材料である。一方で、Fe/MgO/Feでも巨大なTMR比が観測されており、これはトンネル電子の波動関数の対称性に依存したコヒーレントトンネリングが原因であると考えられている。最近、Yasui<sup>[1]</sup>らによってFe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>を用いたMTJsにおいて100%を超える巨大なTMR比の観測がされたが、これがコヒーレントトンネリングによるものであるのか、Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>のDOSの大きなスピン分極率を反映したものであるのか判別できていない。本研究では強磁性体層にFe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>を用いたMTJsにおいて、バリア材料として結晶性MgOと非晶質AlO<sub>x</sub>を用い、それぞれの磁気トンネル特性の比較を行った。また、発表ではFe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>のバッファ層としてNiOとCoOを用いた場合の違いについても言及する。

### 実験方法

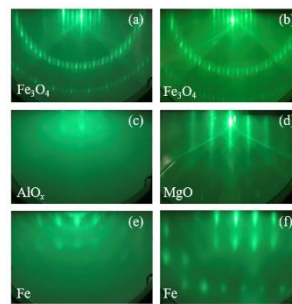
試料の作製は反応性MBE法を用いて行った。MgO(001)基盤上にMgOバッファ層を20 nm堆積させた後、交換バイアス層であるNiOを5 nm蒸着した。強磁性体層であるFe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>を60 nm蒸着し、バリア材料としてMgO、またはAlO<sub>x</sub>を2.5 nm堆積させた。上部電極にはFeを10 nm蒸着し、微細加工処理を施した。それぞれのTMR比の温度依存性、TMR比のバイアス電圧依存性を測定することで、磁気トンネル特性の比較を行った。

### 実験結果

Fig. 1にそれぞれのMTJsにおけるRHEED像を示す。Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>は明瞭なストリークパターンを示したことからスピネルとして成長していることが分かった。また、バリア層であるAlO<sub>x</sub>とMgOを比較すると、AlO<sub>x</sub>はハローパターンを示すのに対し、MgOはストリークパターンを示すことが分かった。このことから、AlO<sub>x</sub>は非晶質バリアとして、MgOは結晶性岩塩型バリアとして成長し、Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-MTJsの磁気トンネル特性をバリア材料の結晶性で比較することが出来ると考えられた。Fig. 2にTMR比の温度依存性を示す。どちらのMTJsにおいてもある温度点まではTMR比が大きくなり、その温度点を下回るとTMR比は減少に転じた。これはFe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>がフェルベ点を下回ったことで構造の変化が起き、それに伴いバンド構造の変化があったためであると考えられた。またAlO<sub>x</sub>バリアを用いたMTJsでは150 Kにおいて-41.5%、MgOバリアを用いたMTJsでは125 Kにおいて-43.4%と、得られたTMR比の最大値に大きな違いが見られなかった。以上のことからFe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-MTJsでは非晶質バリアを用いても、結晶性バリアを用いても拡散的な伝導を示すと考えられた。

### 参考文献

- 1) Shoma Yasui *et al.*, *Physical Review Applied* **15**, 034042 (2021)



Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/AlO<sub>x</sub>/Fe Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/MgO/Fe  
Fig. 1 RHEED image of each MTJs.

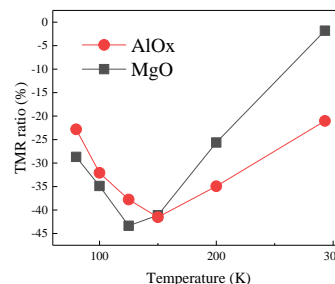


Fig. 2 Temperature dependence of TMR ratio.

## CoFe/MgO/CoFe(001) magnetic tunnel junctions with giant tunnel magnetoresistance exceeding 630% at room temperature

Thomas Scheike, Zhenchao Wen, Hiroaki Sukegawa, and Seiji Mitani  
National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan

Magnetic tunnel junctions (MTJs) are a key component for spintronics applications, such as sensors and magnetic random-access memory (MRAM). However, the resistive change of MTJs, i.e., tunnel magnetoresistance (TMR) ratio, is low even after several decades of research and development as compared to other nonvolatile competing solutions, such as resistive RAM. Recently, we have demonstrated increased room temperature (RT) TMR ratio exceeding 400% using single-crystal Fe/MgO/Fe<sup>1)</sup> and Fe/MgAlO/Fe<sup>2)</sup> MTJs, doubling the previously reported ratios of Fe-based MTJs by careful optimization of several key layers. The results further emphasized the important role of interface properties, i.e., roughness and oxidation, on the transport properties. In this work, we show the effect of tuning of Mg and CoFe insertion layers at the interfaces on the transport properties leading to increased RT TMR ratios.<sup>3)</sup>

Epitaxial MTJ stacks were fabricated using an ultra-high vacuum magnetron sputter: MgO(001) substrate//Cr (60)/Fe (50)/CoFe ( $d_{\text{bot}}$ )/Mg ( $d_{\text{Mg}}$ )/wedged, electron-beam deposited MgO (1-3)/CoFe ( $d_{\text{top}}$ )/Fe (5)/IrMn (10)/Ru (12) (units in nm). Each layer except IrMn and Ru were *in-situ* post-annealed. MTJs were patterned into elliptical pillars using photolithography and ion etching followed by *ex-situ* annealing. Transport properties were evaluated using a standard 4-probe method. For low temperature measurements, a physical property measurement system was used.

The TMR curve of the optimized MTJ structure is shown in Fig. 1. A maximum RT TMR ratio of 631% was obtained using  $d_{\text{bot}} = 2.24$  nm,  $d_{\text{Mg}} = 0.6$  nm, and  $d_{\text{top}} = 0.56$  nm, which exceeds the reported TMR record of 604% in a polycrystalline CoFeB/MgO/CoFeB MTJ.<sup>4)</sup> The TMR ratio is strongly dependent on the MgO thickness showing a significant oscillatory behavior with a maximum peak-to-valley difference of 125% at RT. The temperature dependence of the TMR ratio is shown in Fig. 2. The TMR ratio increases monotonically with reduced temperature and reaches a maximum of 1143% at 10 K, demonstrating a high tunneling spin polarization. Our results show that TMR ratios of well-engineered interfaces of Fe/MgO/Fe-based MTJs can be even further increased, e.g., by tuning of electrode composition and thickness, etc.

The work was partly supported by JSPS KAKENHI Grant Nos. 16H06332, 21H01750, 21H01397, and 22H04966 and is partly based on results obtained from a project, JPNP16007, commissioned by the New Energy and Industrial Technology Development Organization (NEDO).

### References

- 1) T. Scheike *et al.*, Appl. Phys. Lett. **118**, 042411 (2021).
- 2) T. Scheike *et al.*, Appl. Phys. Lett. **120**, 032404 (2022).
- 3) T. Scheike *et al.*, Appl. Phys. Lett. **122**, 112404 (2023).
- 4) S. Ikeda *et al.*, Appl. Phys. Lett. **93**, 082508 (2008).

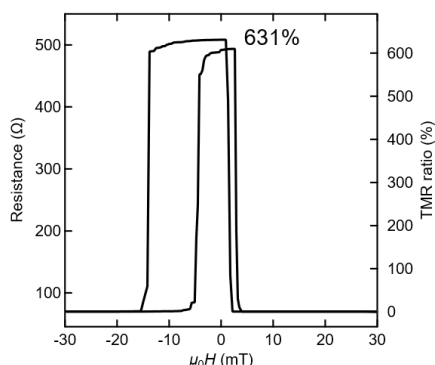


Fig. 1 TMR curve of optimized MTJ at RT.

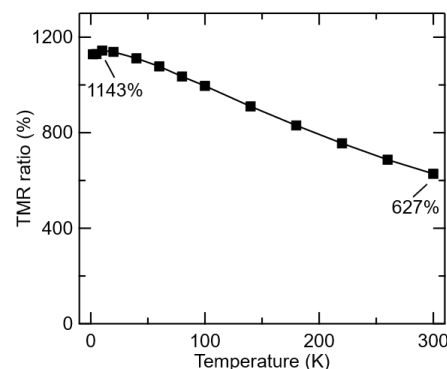


Fig. 2 Temperature dependence of TMR.

## 界面電子構造整合の最適化を目指した組成傾斜磁気抵抗素子の作製と解析

V.K. Kushwaha, 遠山諒, 三浦良雄, 岩崎悠真, 桜庭裕弥  
物質・材料研究機構

Fabrication and analyzation of magnetoresistance device with composition spread layer for optimization of interfacial electronic band matching

V. K. Kushwaha, R. Toyama, Y. Miura, Y. Iwasaki, Y. Sakuraba  
National Institute for Materials Science (NIMS)

### はじめに

昨今、広大な探索空間からハイスループットに高い機能性を有する新規材料や複合構造を見出す手法として、第一原理計算と機械学習を融合した手法(仮想空間 AI)が様々な分野で活用されている。磁性材料やスピントロニクス材料においては、従来知られていなかった大きな磁化やスピン分極率を有する新規材料が本手法によって予測され<sup>1-3)</sup>、実験的にも実証されている<sup>1)</sup>。一方、巨大磁気抵抗やトンネル磁気抵抗効果、スピン注入やスピン軌道トルクといったスピン依存輸送現象においては、材料のバルクとしての物性に加えて、磁性体/非磁性体界面の物性、特に界面電子構造に依存した輸送特性が大きな影響を与える。しかし界面を通じた伝導計算は計算コストが高く、機械学習に足る十分なデータを高速に得るのに不向きである。

従って、仮想空間 AI を、高い性能を有するスピントロニクスデバイス実現へ活用するためには、異種材料の界面の電子構造の整合性やその輸送に与える影響を、効率的に理論予測する新手法の開発が求められる。一方、仮想空間 AI による予測の検証や細かな最適化を実験的に行うためには、様々な組成や構造を有する異種材料界面を作製し、効率的に調べるための手法の確立も求められる。本研究では、このようなインフォマティクスを活用した研究の第一段階として、コンビナトリアル成膜法によって組成傾斜させた Co-Fe 合金を有する巨大磁気抵抗素子を作製し、ハイスループットに磁気抵抗特性を評価し、界面の電子バンドの整合性から簡易的に解析することを試みた。

### 実験方法

(001)-MgO 単結晶基板をイオンミリングによって清浄化した後、 $\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x$  組成傾斜膜(6nm)/Cu 膜厚傾斜膜(1-5nm)/ $\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x$  組成傾斜膜(6nm)/IrMn/Ta スピンバルブ構造のエピタキシャル巨大磁気抵抗素子を作製した。組成傾斜は基板の y 方向に、膜厚傾斜は x 方向にすることによって、1 基板上で Co-Fe の組成と Cu 膜厚依存性の全データを得られるよう 1725 個のデバイスパターンニングを行った。試料は自動磁場中プローバーによって高速に磁気抵抗特性を評価した。

### 実験結果

作製した試料について、X 線を絞り  $\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x$  組成毎の XRD 回折を局所測定した結果、 $\text{Fe}(x=1)$  から  $\text{Co}_{17}\text{Fe}_{83}(x=0.17)$  までは bcc 構造を維持し、Cu が準安定 bcc 構造を形成することで、全層が (001) 配向 bcc 構造の巨大磁気抵抗素子となっていることが確認された。図 1 に、測定した磁気抵抗比の Co-Fe 組成と Cu 膜厚に対する 2 次元プロットを示す。その結果、 $x = 0.17 \sim 1.00$  の領域では、同様の結晶性を有する全 bcc 構造と、明確な磁化反平行状態が得られているにも関わらず、 $x = 0.7$  前後で MR 比が急激に変化する挙動を生じることが捉えられた。本結果をフェルミ準位における電子バンドの整合性の観点で検証を行った結果、 $k$  空間における Co-Fe と Cu のバンドの距離で定性的に説明可能であることが導かれた。

参考文献 1) Y. Iwasaki et al., *Commun. Mater.* 2, 31 (2021), 2) I. Kurniawan et al., *Phys. Rev. Mater.* 6, L091402 (2022), 3) Y. Iwasaki, et al., *STAM method* 2, 365 (2022), 3)

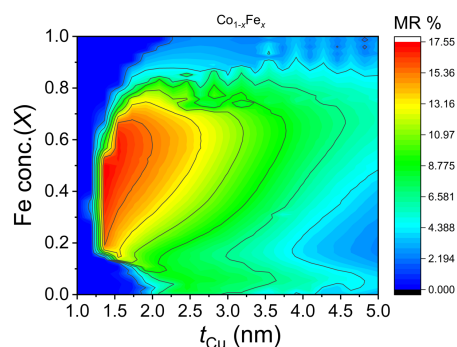


Fig.1 MR distribution of the  $\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x$ /wedge-Cu/ $\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x$  CIP-GMR device

# 気固反応によりマグネタイトから合成した Fe 基ミクロン粒子への酸化被膜の低温形成

°宮澤 守, 小川 智之, 飛世 正博, 齊藤 伸 (東北大学)

Low temperature formation of oxide film on Fe-based micron particles synthesized from magnetite by gas-solid reaction

Miyazawa Mamoru, Ogawa Tomoyuki, Tobise Masahiro, Shin Saito (Tohoku University)

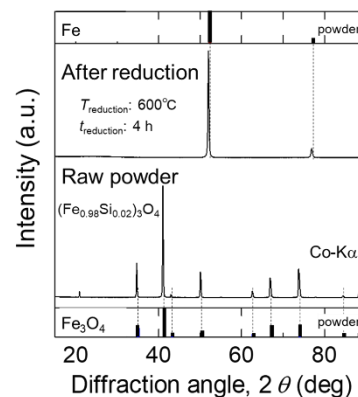
**はじめに** 近年, 低炭素社会への移行の中で, 家電製品における消費電力の削減が進められており, 高効率かつ小型な電源デバイスの需要が増している. これに用いられる軟磁性材料には, 動作周波数での渦損を軽減するために, 高電気抵抗, 高飽和磁化, 低保磁力という 3 つの特性を併せ持つことが求められ, Fe 基圧粉磁心材料が注目されている. 本用途に用いられるミクロン径の軟磁性粉は, 渦損対策のために後工程で粒子表面に絶縁材料を被覆させて使用されているが, 被覆絶縁材料の体積による飽和磁化の低下や軟磁性導出のための歪取り焼鈍熱処理時の被膜の分解を抑制することに課題がある. そこで本研究では気固反応を駆使して粉末作製時に磁性粉の表層を酸化させることにより, 極薄絶縁被膜付きの Fe 基ミクロン粒子の作製を目指した.

**実験結果** Fe 基ミクロン粒子に高飽和磁化軟磁性を導出するためには, 粒子内の集合組織の磁歪と結晶磁気異方性の調整が必要である. そこで今回の検討では極少量の Si を固溶させた Fe のナノメートル寸法の多結晶からなる軟磁性粒子の作製を提案した. 具体的には原料を Si 添加マグネタイト ( $(\text{Fe}_{0.98}\text{Si}_{0.02})_3\text{O}_4$ ) とし, これを結晶相の変化を伴う還元により軸方位無配向のナノ多結晶粒子の作製を試みた. Fig. 1 に原料粉と還元粉の X 線回折プロファイル (XRD) を示す. 参考のため逆スピネル型マグネタイトと体心立方型 (bcc) 鉄の粉末プロファイルも示している. 還元は水素ガスを用い大気圧下で  $600^\circ\text{C}$  に加熱しながら行った. 原料粉および還元粉のプロファイルには, それぞれ逆スピネル, bcc 由来の回折線のみが観測されている. これらから今回の実験では還元が十分に進んでおり, 酸化相が残存していないことがわかる.

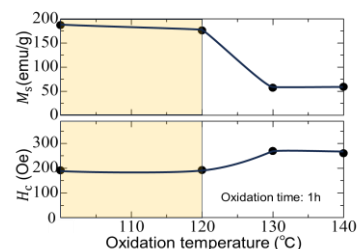
続いて還元粉に酸化皮膜を設けるために, 乾燥空気を用い大気圧下で加熱しながら酸化を行った. Fig. 2 に 1 時間の酸化プロセス後の試料粉の飽和磁化  $M_s$  および保磁力  $H_c$  の酸化温度依存性を示す. 酸化温度の高温化にともない  $M_s$  は減少,  $H_c$  は増加し, 共に  $120^\circ\text{C}$  から  $130^\circ\text{C}$  の間で大きく変化した. Fig. 3 に酸化プロセス後の試料粉の体積抵抗率  $\rho$  の酸化温度依存性を示す. 酸化温度を高温化すると  $\rho$  は  $120^\circ\text{C}$  までは緩やかに増加し  $120^\circ\text{C}$  から  $130^\circ\text{C}$  の間では 5 桁以上も著しく増加した. さらに温度を増加させた場合  $\rho$  はほとんど変化しなかった. これらの結果は, マグネタイトからの還元粉は  $120$  から  $130^\circ\text{C}$  という低温で酸化が一気に進行することが示唆している. 以上により  $120^\circ\text{C}$  付近にて酸化の活性化ポテンシャルの解析を行うことで極薄酸化皮膜付き Fe 基ミクロン粒子を形成できることがわかった.

**謝辞:** Si 添加マグネタイト原料粉は関東電化株式会社により提供を受けた.

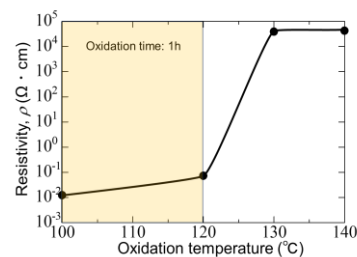
本研究の一部は, 文科省 革新的パワーエレクトロニクス創出基盤技術研究開発事業の支援を受けて行われた.



**Fig. 1** XRD profiles for raw and after reduction powders. Powder patterns for inverse-spinel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  and bcc Fe are also shown.



**Fig. 2** Dependence of saturation magnetization,  $M_s$ , and coercivity,  $H_c$ , of Fe-Si powders on oxidation temperature.



**Fig. 3** Dependence of the volume resistivity,  $\rho$ , of FeSi powders on oxidation temperature.

# 圧粉コアの直流バイアス特性と $B-H$ カーブ特徴解析の相関

大沼智幸<sup>1</sup>、小野暢久<sup>1</sup>、岡本聡<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup> 東北大多元研, <sup>2</sup> 東北大 CSIS)

## Correlation between iron loss and features of $B-H$ curves of dust cores under the application of dc bias field

T. Onuma<sup>1</sup>, N. Ono<sup>1</sup>, and S. Okamoto<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup>IMRAM, Tohoku Univ., <sup>2</sup>CSIS, Tohoku Univ.)

### はじめに

近年、再生可能エネルギーや電気自動車の普及に伴い、電力変換器の小型化・効率化が求められており、パワーデバイスの効率向上に加え、受動素子の損失低減が不可欠な状況となっている。特にトランスやインダクタにおいては高周波帯での損失低減が急務であり、損失の多くを占める鉄損のメカニズム解明が待たれている。また、インダクタ材料は直流バイアスを印加して使用されることが多く、バイアス印加時の鉄損の挙動は重要な性能指標である。我々はバイアス印加時の鉄損挙動を  $B-H$  カーブの形状の変化と関連付けて考察し、主成分分析(PCA)を用いることで、 $B-H$  カーブの非線形な形状の変化を数値的に捉えることを試みてきた<sup>1)</sup>。本研究では Magnetics 社製センダスト(Kool M $\mu$ )<sup>®</sup> 圧粉コアおよび FeSi(XFlux)<sup>®</sup> 圧粉コアの鉄損、 $B-H$  カーブ形状を解析した。

### 実験方法

鉄損は 2 コイル法で測定し、直流バイアスは 3 次コイルを用いて印加した。各バイアス条件において、磁束密度  $\Delta B$  を 40 mT, 周波数  $f$  を 100 kHz に固定して鉄損および  $B-H$  カーブデータを取得し、得られた  $B-H$  カーブデータを PCA により解析した。

### 実験結果

Fig.1 にセンダストおよび FeSi 圧粉コアの鉄損のバイアス特性を示す。FeSi の鉄損はバイアスに対し単調に低下するのに対し、センダストの鉄損は一旦低下した後に再び増加する。Fig.2 にセンダスト圧粉コアにバイアス磁界を印加した際の  $B-H$  カーブの形状変化を示す。磁束密度  $B = 0$  T 付近ではバイアス印加にともない  $B-H$  カーブ形状は Upper branch、Lower branch とともに左にシフトする。一方、FeSi 圧粉コアの場合は Fig.3 に示すとおり  $B = 0$  T 付近で Upper branch が右に、Lower branch が左に変化する。Fig.4 は各コアの  $B-H$  カーブの Upper branch の挙動を PCA で解析した結果である。図中の数値はバイアス磁界 (A/m) である。PC1 のスコアはバイアス印加による  $B-H$  カーブの傾きの変化、PC2 のスコアは  $B-H$  カーブの非線形な形状の変化を表現している。センダストの PC2 スコアにはバイアス 2000~2200 A/m において不連続な変化が観測される。これは Fig.1 の鉄損変化と対応している。このように材料毎に異なる DC バイアス特性に対して、PCA により  $B-H$  カーブ挙動が明確に異なっていることを示すことができた。

### 謝辞

本研究は文部科学省 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 およびデータ創出・活用型マテリアル研究開発プロジェクト事業(データ創出・活用型磁性材料研究拠点)JPMXP1122715503 の助成を受けたものです。また本研究では PCA ツールとしてトヨタ自動車㈱の材料解析クラウドサービス WAVEBASE を使用しました。

### 参考文献

- 1) T. Onuma, Z. Li and S. Okamoto, IEEE Trans. Magn., doi: 10.1109/TMAG.2023.3281548.

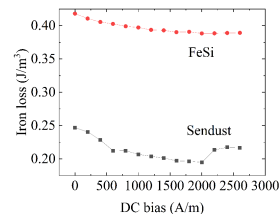


Fig.1 Iron loss of Sendust and FeSi dust cores under DC bias fields.

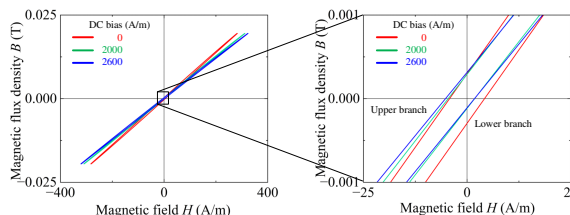


Fig. 2  $B-H$  curves of a Sendust dust core under DC bias fields.

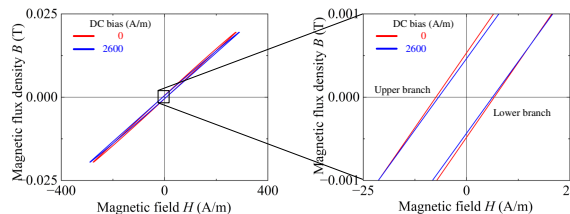


Fig. 3  $B-H$  curves of an FeSi dust core under DC bias fields.

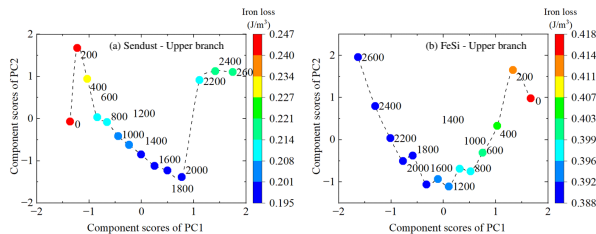


Fig.4 Shape analyses of upper branches  $B-H$  curves of (a) Sendust and (b) FeSi.

# 形状の異なる電解鉄粉からなるトロイダルコアにおける磁気特性

児玉雄大, グェンフォン, 宮崎孝道, 室賀翔, 遠藤恭  
(東北大)

Study on magnetic properties of toroidal cores composed of electrolytic iron powders with different shapes  
Yudai Kodama, Phuong Nguyen, Takamichi Miyazaki, Sho Muroga and Yasushi Endo  
(Tohoku Univ.)

**はじめに** カーボンニュートラルの実現へ向け、パワーエレクトロニクス技術の進歩が必要不可欠である。スイッチング電源等のパワエレ機器を構成するトランス、インダクタといった受動素子は損失・体積割合が大きく、高飽和磁束密度と低損失を満たす新たな軟磁性材料の開発が必須な状況である。なかでも、金属磁性粉末は高飽和磁束密度を有し、自由に形状を変えることができるため、軟磁性材料として近年注目を集めている。しかしながら、フェライトコアと比較すると抵抗が低く、渦電流が流れやすいため、損失が大きいといった課題を抱えている。

本研究では、軟磁性材料として高飽和磁束密度を有するさまざまな形状を有する電解鉄粉に着目し、それらの圧粉磁心を作製し、磁気特性の形状による効果を検討した。

**実験方法** 本研究では、試料として、図1に示すように、針状、扁平状、球状といった異なる形状の数十  $\mu\text{m}$  程度の電解鉄粉からなるトロイダルコアを用いた。これらのトロイダルコアは以下のように作製した。すなわち、まず、鉄粉とわずかな量のバインダを十分に混練させた後、あらかじめ準備した金型を用いてプレス機によりトロイダルコアを圧粉成形した。成形後、150  $^{\circ}\text{C}$  一定の温度で2時間熱処理を施し、コアの作製を行った。

作製したコアの構造解析と組成分析は、SEM, XRD および EDX を用いた。また、それらの磁気特性評価には、B-H アナライザ、インピーダンスアナライザおよび VSM を用いた。なお、これらの評価はすべて室温で行った。

**結果** 図2に形状の異なる電解鉄粉からなるトロイダルコアにおけるコアロス(1周期)の周波数依存性を示す。すべてのコアについて低周波帯ではコアロスは低く一定となり、高周波帯では、周波数の増加にともない、コアロスが増加した。また、扁平状と比較して、針状と球状におけるコアロスの増加が数十 kHz 程度の低い周波帯で発生し、その変化も顕著であった。これらの違いは、粒子形状に起因するものである。すなわち、針状の場合には、圧粉磁心にした際に粒子同士が絡まりあい、粒子間の渦電流損によるものと考えられる。また、球状の場合には、針状、扁平状と比較すると粒子の断面積が大きいため、粒子内で発生する渦電流損によるものと考えられる。以上の結果は、粒子形状を変えることで、磁気特性の制御が可能であることを示唆している。

**謝辞** 本研究の一部は、文部科学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 のもとで行われました。また、東北大学国際集積エレクトロニクス開発センター(CIES)および東北大学先端スピントロニクス研究開発センター(CSIS)の支援のもとで行われました。

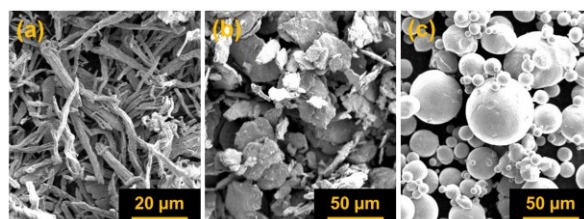


Fig. 1 : SEM images of electrolytic iron powders with different shape ((a) : Needle (b) : Flake (c) : Spherical)

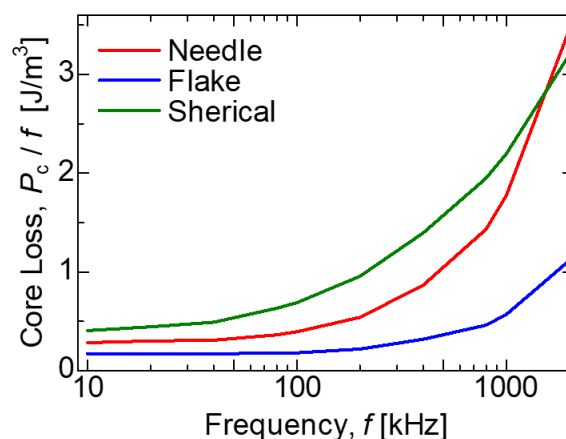


Fig. 2 : Frequency dependence of core loss per one cycle at maximum magnetic flux density ( $B_m$ ) of 10 mT in the toroidal cores composed of electrolytic iron powders with different shapes.

## 磁化反転過程に基づく各種トロイダル磁心の鉄損解析

小野 暢久<sup>1</sup>、上原 裕二<sup>2</sup>、遠藤 恭<sup>3,4</sup>、吉田 栄吉<sup>1</sup>、及川 英彦<sup>5</sup>、菊池 伸明<sup>1</sup>、岡本 聡<sup>1,4,6</sup>

(<sup>1</sup>東北大多元研、<sup>2</sup>磁気デバイス研究所、<sup>3</sup>東北大工、<sup>4</sup>東北大 CSIS、<sup>5</sup>トーキン、<sup>6</sup>NIMS)

Iron loss analyses of toroidal cores of various materials based on magnetization reversal processes

N. Ono<sup>1</sup>, Y. Uehara<sup>2</sup>, Y. Endo<sup>3,4</sup>, S. Yoshida<sup>1</sup>, H. Oikawa<sup>5</sup>, N. Kikuchi<sup>1</sup>, S. Okamoto<sup>1,4,6</sup>

(<sup>1</sup>IMRAM, Tohoku Univ., <sup>2</sup>Magnetic Device Laboratory, <sup>3</sup>Graduate School of Eng. Tohoku Univ.,  
<sup>4</sup>CSIS, Tohoku Univ., <sup>5</sup>TOKIN, <sup>6</sup>NIMS)

### はじめに

パワーエレクトロニクスの小型化・高効率化実現に向けて、高周波領域における磁性素子の低損失化への要求が高まっている。そのためには鉄損起源を明らかにすることが重要であるが、広く用いられている Steinmetz 式による解析は現象論的な解釈に留まっており、その物理的メカニズムはまだよく理解されていない。この課題に対して、我々はセンダスト圧粉磁心に対して、正弦波励磁のブロードバンド鉄損計測を行い、過去に提案された 2 種の鉄損解析モデル(磁化過程分離モデル[1],実効磁壁モデル[2])を組み合わせることで、磁化反転過程に基づく鉄損要因解析を行ってきた[3]。本研究では、本手法を他の材料系に展開して材料毎の鉄損と磁化過程解析結果との相関を調べることを進めている。まずは MnZn フェライト磁心に対する解析結果を既に報告したセンダスト圧粉磁心の結果と比較した結果を報告する。

### 実験方法

トロイダル形状のセンダスト圧粉磁心および MnZn フェライト磁心(外径 13 mm、内径 8 mm、厚み 5 mm)に対し、2 コイル法及び共振法[4]を併用して 100 Hz から 55 MHz の範囲でのブロードバンド鉄損計測を行った。それらのデータを基に磁化過程分離モデルおよび実効磁壁モデルを用いて要因解析を行った。

### 実験結果

得られた一周周期当たりの鉄損  $P_c$  の測定結果(データ点)及び解析結果(線)を Fig.1 に示す。塗りつぶし・白抜きマークは 2 コイル法・共振法の結果を表しており、色の濃(丸マーク)・淡(三角マーク)はセンダスト圧粉磁心、MnZn フェライト磁心を表している。また、実線・点線は解析によって得られた、不可逆および可逆磁化過程を要因とする鉄損成分を表している。低周波・高周波領域では不可逆過程・可逆過程がそれぞれ支配的であり、実験結果を良く再現できている。また、実効磁壁モデルより得られる実効磁壁数  $n_{\text{eff}}$  と磁壁ダンピング  $\beta$  の比  $n_{\text{eff}}/\beta$  の周波数依存性を Fig.2 に示す。両試料において  $n_{\text{eff}}/\beta$  の値は周波数とともに増加し、特定の周波数以上で減少ないし飽和する傾向が見られ、飽和に達する周波数と Fig.1 に示す、可逆磁化過程が支配的になる周波数はよく一致している。これらの結果より、不可逆磁化過程は磁壁移動、可逆磁化過程は磁壁数の飽和、すなわち磁化回転への移行に対応するものと考えられる。したがって、高周波領域における鉄損の大幅な増加は、センダスト、フェライトともに磁壁移動から磁化回転への磁化反転過程の変化を伴っていると結論付けられる。両者を比較すると、フェライトの方が低周波領域で鉄損が低いが、センダストよりも低い周波数、1 MHz 付近で  $n_{\text{eff}}/\beta$  が飽和し、鉄損が急増している。これら磁化過程に関する周波数特性の違いに関して、比透磁率(センダスト: 25、フェライト: 2,700)、磁気共鳴、伝導率特性、磁区構造などの観点から考察を進めている。

### 謝辞

本研究は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 の支援の下で行われた。

### 参考文献

- [1] C. Beatrice, *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **429**, 129 (2017), [2] Y. Sakaki, IEEE Trans. Magn., **MAG-16**, 569 (1980),  
[3] N. Ono, *et al.*, IEEE Trans. Magn. (to be published), [4] M. Mu, *et al.*, IEEE Trans. Power Electro. **29**, 4374 (2014)

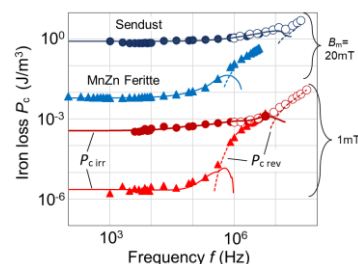


Fig.1. Experimental iron loss per cycle (marks) and analyzed ones (lines) of Sendust dust core (circle) and MnZn ferrite core (triangle).

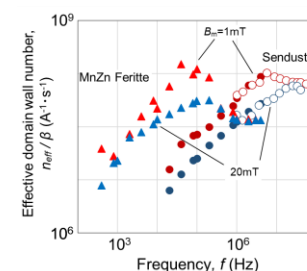


Fig.2. Effective domain wall number  $n_{\text{eff}}/\beta$  of Sendust dust core and MnZn ferrite core.



# パワエレ用軟磁性粒子測定のためのトランス結合型透磁率測定装置の改良

田丸 慎吾  
(産総研)

Modification of transformer coupled permeameter for measuring a soft magnetic particle targeting power electronics applications

S. Tamaru  
(AIST)

## はじめに

パワエレ技術は、脱炭素社会実現に向けた中核技術の一つに位置づけられており、その重要性は近年益々高まってきている。現時点ではインダクタコアの損失が周波数に伴い急激に増加し、回路全体の高周波限界を決めてしまっているため、コア用軟磁性材料の損失機構の解明及びその低減は喫緊の課題である。

重要なパワエレ用インダクタコアの一つに圧粉磁心がある。これはアトマイズ磁性粉末材料をコア形状に加圧成型したもので、粒子表面に酸化膜が形成され渦電流が抑えられるため、数 100 kHz 程度までは優れた特性を示す[1]。しかしパワエレ回路の更なる高周波化のため、より低損失の材料が求められている。

従来の透磁率測定はコア最終形状のみ測定可能であったが、粉末状態、理想的には単一粒子の測定ができれば、高周波特性や損失機構の詳細がより明らかになり、高性能な圧粉磁心材料の創成に繋がる事が期待される。この目的のため、本研究では、我々がマイクロ波帯の透磁率測定のために開発したトランス結合型透磁率測定装置(Transformer coupled permeameter, 以下 TC-Perm)の下限周波数を拡張し[2]、100 kHz - 100 MHz に渡って圧粉磁心用単一磁性粒子の透磁率測定を可能にする改良を行った。

## 実験結果

Fig. 1 に治具周りの構成図及び写真、治具の透過係数  $S_{21}$  を示す。治具は 2 つの短絡終端された平面導波路 (CPW1,2) から構成されており、信号検出する CPW2 の出力インピーダンスは極めて低い。一方その信号を増幅する低雑音アンプ(LNA)の入力インピーダンスは  $50 \Omega$  であり、従来の TC-Perm ではこれらが直接接続され、その結果大きなインピーダンス不整合が生じていた。この問題を解決するため、巻線比 1:7 のインピーダンス整合トランス及び、そのトランスと CPW2 間を接続する、特性インピーダンスが約  $0.9 \Omega$  の同軸ケーブルを作製し、Fig. 1 に示す通り接続した。その結果インピーダンス不整合が解消され、数 MHz 以下の帯域で  $S_{21}$  が約 16 dB 向上、つまり巻線比だけ信号が昇圧されていることが確認された。

次にこの構成の TC-Perm を用いて、直径約  $50 \mu\text{m}$  の球形をした  $\text{Fe}_2\text{B}$  アトマイズ単一粒子を測定したところ、Fig. 2 に示す通り、200 kHz - 100 MHz に渡って良好な感度で試料に由来する信号が観測出来た。ここで、70 MHz 近傍に共振的な振る舞いが見えるが、これは CPW2 とインピーダンス整合トランス間の反射によって生じるアーティファクトであり、校正によって取り除くことが出来る。

発表では、TC-Perm の低周波限界拡張に伴い観測された従来未知のノイズや残留信号及びその除去方法、拡張後の装置の校正方法並びにそれによって得られる単一磁性粒子の透磁率測定結果について報告する。

## 参考文献

- 1) 住友電工テクニカルレビュー、2016年1月号 No.188,      2) J. Magn. Mater. 501, 166434(2020).

## 謝辞

本研究は文部科学省 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 の助成を受けたものです。

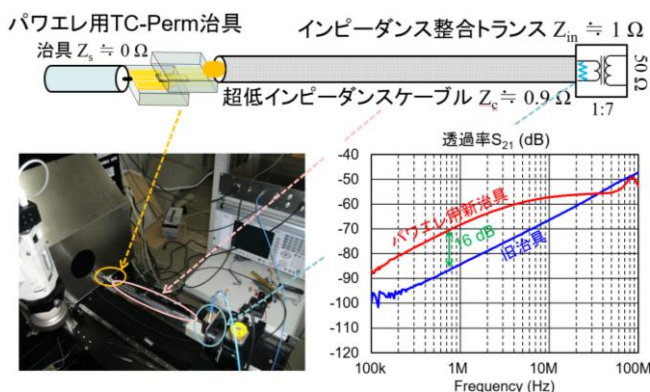


図 1、パワエレ用 TC-Perm 治具の構成、写真及び  $S_{21}$ 。

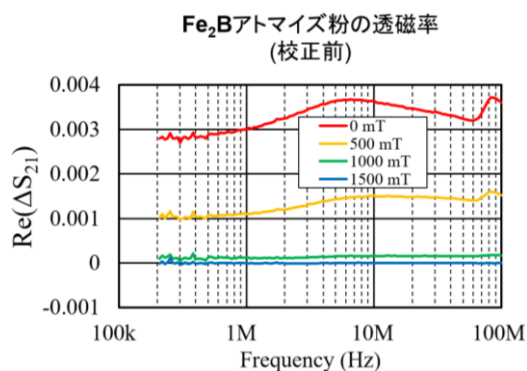


図 2、パワエレ用に改良した TC-Perm による  $\text{Fe}_2\text{B}$  アトマイズ粒子の測定結果。

## 高透磁率を有する 面内一軸異方性 CoFeNi-MgF<sub>2</sub> ナノグラニューラ膜

直江正幸、曾根原誠\*、宮地幸祐\*、佐藤敏郎\*、室賀翔\*\*、遠藤恭\*\*、小林伸聖、荒井賢一  
(電磁研、\*信州大、\*\*東北大)

In-plane anisotropic CoFeNi-MgF<sub>2</sub> nanogranular films having low anisotropy field for high permeability at VHF band  
M. Naoe, M. Sonehara\*, K. Miyaji\*, T. Sato\*, S. Muroga\*\*, Y. Endo\*\*, N. Kobayashi, K-I. Arai  
(DENJIKEN-Res. Inst. EM Mater., \*Shinshu Univ., \*\*Tohoku Univ.)

### はじめに

一軸異方性ナノグラニューラ膜は、8 kA/m を超えるような異方性磁界  $H_k$  を容易に呈し、かつ比抵抗  $\rho$  が高いため、UHF~SHF 帯薄膜材料として有望である。しかし、高い  $H_k$  は磁化困難軸の透磁率低下をもたらすため、次世代のオンチップ POL(Point Of Load)電源用途のような 100 MHz 付近の VHF 帯で 100 以上の比透磁率と低損失を両立するには、むしろ適度な  $H_k$  が重要となる。これまで、高い飽和磁化  $M_s$  および低い結晶異方性定数  $K_1$  の二元 CoFe 合金およびフッ化物を用いた面内一軸異方性ナノグラニューラ膜について検討したが、CoFe の比較的高い正の磁歪定数  $\lambda$  により膜の異方性が影響を受け、低  $\lambda$  だが高  $K_1$  となる Co-rich 合金組成域に使用が限定されるため、高透磁率化が不十分であった。高  $M_s$ 、低  $\lambda$ 、および低  $K_1$  の CoFe 代替材は限られるが、本研究では、CoFe の正磁歪を Ni の負磁歪により低減できるため Fe-rich にでき、低  $K_1$  で高  $M_s$  も保てることを期待される三元 CoFeNi 合金を採用し、MgF<sub>2</sub> マトリックスのナノグラニューラ膜作製を試みた。

### 実験方法

タンデムスパッタ装置の陰極を CoFeNi 合金とし、組成を Co<sub>60</sub>Fe<sub>25</sub>Ni<sub>15</sub>、Co<sub>70</sub>Fe<sub>20</sub>Ni<sub>10</sub>、および Co<sub>80</sub>Ni<sub>15</sub>Ni<sub>5</sub> (全て at. %) とした。この三組成では、いずれの  $M_s$  も Co<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> (at. %) と同等の約 1.9 T である一方、 $\lambda$  および  $K_1$  は Co<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> の +10 ppm および  $-5 \times 10^4$  J/m<sup>3</sup> よりも低いが、Co-rich であるほど零磁歪に近づき、 $K_1$  が負に高くなる特徴がある。もう一つの陰極には MgF<sub>2</sub> 焼結体を用いた。陰極と対向する水冷陽極に設置のガラス基板を公転させることで、プラズマを立てた両陰極上を交互に通過させ、磁界中成膜した。 $\rho$  (=膜組成) は両陰極への投入電力比、厚みは成膜時間で制御した。その他条件は、0.33 m/s の基板周速、 $1 \times 10^{-5}$  Pa 以下の真空到達、および 1.07 Pa の Ar 成膜ガス圧である。試料は、VSM による静磁化測定、短絡マイクロストリップライン法による透磁率測定、および直流四探針法による比抵抗測定などにより評価した。

### 実験結果

Co<sub>60</sub>Fe<sub>25</sub>Ni<sub>15</sub>-MgF<sub>2</sub> 膜の膜厚は 539 nm、比抵抗は 14.7  $\mu\Omega\cdot\text{m}$  であった。Fig. 1 は本膜の磁気特性である。成膜中の基板への直流磁界印加方向に沿った面内磁化容易軸となっており、磁歪によって一軸異方性が影響を受けている様子はない。 $\rho$  および  $M_s$  が本膜と同じ約 15  $\mu\Omega\cdot\text{m}$  および約 1.1 T になるよう成膜した Co<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>-MgF<sub>2</sub> 膜と比較すると、 $H_k$  は約 17% 減少した (6 → 5 kA/m)。これにより、低周波での静的な  $\mu'$  は、これも Co<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>-MgF<sub>2</sub> 比で 30% 増加した (100 → 130)。強磁性共鳴周波数は僅かに低下したが、100 MHz 付近での  $\mu''$  は低い。この低  $H_k$  と高透磁率化は、Co<sub>60</sub>Fe<sub>25</sub>Ni<sub>15</sub> が Co<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> よりも低  $K_1$  かつ低  $\lambda$  であることに起因すると考えられる。

### 謝辞

本研究の一部は、JST A-STEP、JPMJTR22R9 の支援を受けた。

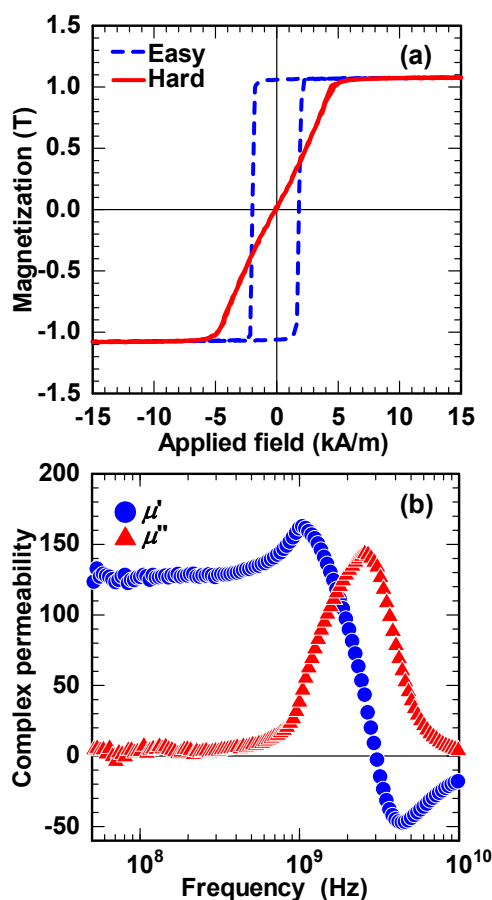


Fig. 1 In-plane magnetic properties of Co<sub>60</sub>Fe<sub>25</sub>Ni<sub>15</sub>-MgF<sub>2</sub> film having thickness of 539 nm and resistivity of 14.7  $\mu\Omega\cdot\text{m}$ : (a) Magnetization curves and (b) Complex permeability spectra of magnetic hard axis.

## サブミクロン Fe-Ni-B アモルファス微粒子の構造と磁気特性

若林 和志, 宮崎 孝道, 室賀 翔, 遠藤 恭 (東北大学)

The structure and magnetic properties of submicron Fe-Ni-B amorphous particles

Kazushi Wakabayashi, Takamichi Miyazaki, Sho Muroga, Yasushi Endo (Tohoku Univ.)

### はじめに

数 10MHz~数 GHz で動作するインダクタや電磁ノイズ抑制体などに用いられる軟磁性材料には、低損失と高い共鳴周波数が要求される。その材料候補として、グラニューラ薄膜やミクロン径の微粒子が挙げられるが、生産性や損失の観点から実用化には課題が残っている。我々のグループでは、その材料候補の一つとして、強磁性金属元素を有するサブミクロン径の軟磁性微粒子に着目した。これまでに、水溶液還元反応法を用いて合成されたサブミクロン径のアモルファス Fe-B 微粒子は、1-3 GHz 付近で自然共鳴周波数が得られ、固有透磁率が 9-14 となることを報告した<sup>[1]</sup>。本研究では、新たに強磁性元素である Ni を添加した Fe-Ni-B 微粒子を合成し、それらの構造および磁気特性について検討する。

### 実験方法

Fe-Ni-B 微粒子は、鉄塩、ニッケル塩を溶解させた水溶液中に還元剤となる  $\text{NaBH}_4$  を滴下することで合成した。また、合成した粒子は Ar ガス中で 400 °C, 1 時間熱処理を施した。

合成した微粒子の形状および構造、組成に関しては、SEM-EDX および TEM を用いて評価した。また、それらの磁気特性に関しては、絶縁体の樹脂中に微粒子を 50 vol.% になるように分散させたコンポジット材を作製し、それらを用いて VSM および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により評価した。

### 実験結果

図 1 は合成した Fe-Ni-B 微粒子における(a)SEM 像の一例と (b)電子線解析(TEM 観察)の結果である。形状は非凝集性の球状で、平均粒径  $D_{50}$  は 204 nm であった。また、合成した微粒子の結晶構造に関して、電子線解析においてハローパターンを観測したことから、合成した微粒子はアモルファス構造を有していることがわかった。また、熱処理を施した後も熱処理前と同様の結果となり、アモルファス構造を有していた。

図 2 は Fe-Ni-B 微粒子における複素透磁率の熱処理効果である。透磁率の実部  $\mu'$  は 2 となり、熱処理を施すと 2.8 へ増加した。また、透磁率の虚部  $\mu''$  はブロードなピークが発生し、熱処理を施すことで立ち上がりを 1 GHz 付近まで抑制することが確認された。これらの結果は、熱処理によって微粒子のひずみが緩和されたことによるものと考えられる。

以上の結果は、水溶液還元反応法を用いて合成した Fe-Ni-B 微粒子は安定性が高く、渦電流損失を高周波帯まで抑制することができることを意味している。したがって、数 10MHz~数 GHz で動作するインダクタや電磁ノイズ抑制体などへの応用が期待される。

### 謝辞

本研究の一部は、文部科学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 およびデータ創出・活用型マテリアル研究開発プロジェクト JPMXP1122715503 のもとで行われました。また、東北大学 CIES および東北大学 CSIS の支援のもとで行われました。

### 参考文献

[1] K. Murata, T. Miyazaki, H. Masumoto, Y. Endo, T. Magn. Soc. Jpn. (Special Issues), 5, 1-5 (2021)

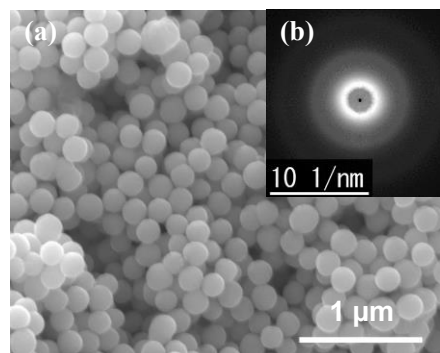


Fig. 1 (a) SEM image (b) the electron diffraction peaks image of Fe-Ni-B particles.

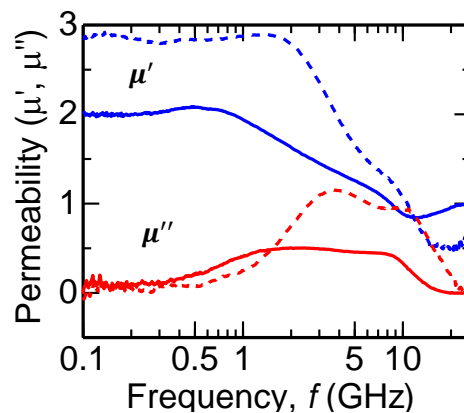


Fig. 2. Complex permeability of Fe-Ni-B composites with as made (solid line) and annealed (dashed line).

## 1.61 T の高い $B_s$ と高耐食性を有する FeCo 基アモルファス合金粉末

梶浦良紀、長谷川暁斗、細野雅和、吉留和宏、大塚翔太\*2、大久保等\*2、松元裕之  
(TDK 株式会社 材料研究センター, \*2 TDK 株式会社 マグネティクスビジネスグループ)

Novel FeCo based FeCoBPSiCr Amorphous Alloy Powder with High  $B_s$  of 1.61 T and High Corrosion Resistance

Y. Kajiura<sup>\*1</sup>, A. Hasegawa<sup>\*1</sup>, M. Hosono<sup>\*1</sup>, K. Yoshidome<sup>\*1</sup>, S. Otsuka<sup>\*2</sup>, H. Okubo<sup>\*2</sup>, H. Matsumoto<sup>\*1</sup>

(\*1 Materials Research Center, TDK Corporation, \*2 Magnetics Business Group, TDK Corporation)

### 緒言

近年における電子機器の高機能化に伴い、インダクタにおいては、高い飽和磁束密度( $B_s$ )に加えて様々な製品形状や使用環境に適用するために、高い  $B_s$  と優れた耐食性を両立できる金属軟磁性粉末が求められている。本研究では、高い  $B_s$  と高い耐食性が確認されている FeCoBPSiCr アモルファス合金に着目し、FeCoBPSiCr 合金の粉末化を試みた。本報告では、1.61 T の高い  $B_s$  と、既存の FeSiB 系アモルファス合金粉末を凌駕する優れた耐食性を両立できる FeCoBPSiCr アモルファス合金粉末を見出したとともに、得られた粉末を用いたインダクタ素子における直流重畳特性を報告する。

### 実験方法

Fe(99.9 mass%), Co(99.8 mass%), B(99.5 mass%), Fe<sub>3</sub>P (99.9 mass%), Si (99.999 mass%), Cr (99.9 mass%)の原料を用いて高周波溶解にて母合金を作製し、単ロール液体急冷法により幅 1-5 mm, 厚み約 20-80  $\mu\text{m}$  の金属薄帯を作製した。X 線回折から、アモルファス単相が得られる最大厚みを臨界厚みとし、臨界厚みの大きさからアモルファス形成能を評価した。 $B_s$  は、振動試料型磁力計を用いて測定した。耐食性は、厚み 20  $\mu\text{m}$  の金属薄帯を作用電極とし、対極に Pt 線、参照電極に Ag/AgCl 電極を用いて電気化学測定を行うことで評価した。また、ガスアトマイズ法を用いて粉末化を行った。作製した粉末を 63  $\mu\text{m}$  の篩を用いて分級した粉末を使用し、透過型電子顕微鏡 (TEM)を用いて粉末のアモルファス状態を確認した。作製した粉末を使用し 2.0 (L)  $\times$  1.2 (W)  $\times$  0.8 (H) mm の外寸となるインダクタを作製し、LCR メーターを用いて直流重畳特性を評価した。

### 実験結果

Table 1 に FeCoBPSiCr アモルファス合金および既存の FeSiBC アモルファス合金における臨界厚み、腐食電位、腐食電流密度および磁気特性を示す。Table 1 より FeCoBPSiCr 合金は、粉末化が可能で 87  $\mu\text{m}$  の高いアモルファス形成能を有すると同時に、-520 mV の高い腐食電位と 23.7  $\mu\text{A}/\text{cm}^2$  の低い腐食電流密度を示し、既存の FeSiBC 合金よりも優れた耐食性を有する合金であることが示された。

Fig. 1 に、ガスアトマイズにより作製した FeCoBPSiCr アモルファス合金粉末および既存の FeSiBC アモルファス合金粉末を用いたインダクタ素子における直流重畳特性を FeCoBPSiCr アモルファス合金粉末の TEM 像および電子線回折パターンと共に示す。Fig. 1 より、FeCoBPSiCr アモルファス合金粉末は均一なアモルファス相を有し、FeCoBPSiCr アモルファス合金粉末を用いたインダクタ素子は既存の FeSiBC アモルファス合金粉末を用いた場合と同等以上の優れた直流重畳特性を示すことが確認された。

Table 1 Amorphous forming ability, corrosion characteristics and magnetic characteristics of metallic ribbons in the FeCoBPSiCr and commercial FeSiBC amorphous alloys.

Composition	Amorphous forming ability ( $\mu\text{m}$ )	$E_{\text{corr}}$ (mV)	$i_{\text{corr}}$ ( $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ )	$H_c$ (A/m)	$B_s$ (T)
FeCoBPSiCr	87	-520	23.7	20.4	1.71
FeSiBC	60	-677	53.1	25.7	1.69

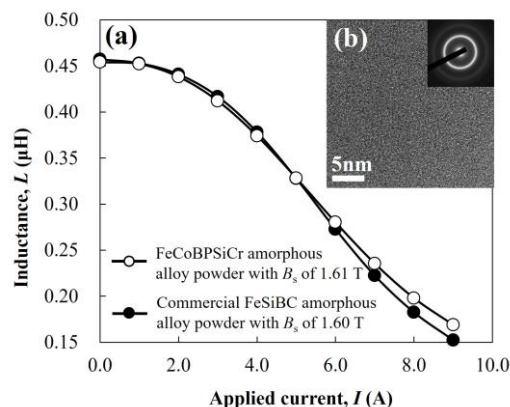


Fig. 1 (a) DC-bias characteristics of the FeCoBPSiCr and commercial FeSiBC amorphous alloy powders, (b) TEM image of the FeCoBPSiCr amorphous alloy powder with SAED pattern

## 鉄基アモルファス球状微粒子の開発

津代 嶺、遠藤 恭\*  
(戸田工業 (株)、\*東北大)

## Development of spherical iron-based amorphous fine particles

R. Tsushiro, Y. Endo\*  
(Toda Kogyo Corp., \*Tohoku univ.)

## はじめに

インダクタなどの電子部品の高性能化において、使用する磁性材料の特性改善が求められており、微細な軟磁性金属粉末の開発が注目されている。軟磁性金属粉末の量産にはアトマイズ法が多く用いられているが、製法的に  $1\mu\text{m}$  以下の微粒子の作製が困難である。液相還元法を用いれば微粒子の作製は可能であるが、従来の手法<sup>1),2)</sup>では一次粒子径の均一性や凝集物の発生に課題があった。ここでは、新たな液相還元法を検討し上述の課題を解決した Fe-B 微粒子を開発したことについて報告する。

## 実験方法

液相還元法の原料種、錯化剤、反応条件 (pH、温度、雰囲気、攪拌条件など)、絶縁処理方法を検討し、目標とする Fe-B 組成のアモルファス粒子を作製した。得られた粉末の一次粒子径と分布は走査型電子顕微鏡(SEM)を、凝集粒子径は粒度分布計を用いて評価した。透磁率の周波数特性は 30~40vol%含有させた樹脂混練シートをネットワークアナライザで測定した。

## 実験結果

Fig.1 は作製した Fe-B 粒子の SEM 像である。流動性に有利な真球状の粒子となっていることが分かった。また、作製条件を調整することにより、平均一次粒子径が  $0.2\mu\text{m}$  以下の微粒子も得ることができた。一次粒子径の均一性と分散性について、Sample A、B と同程度の大きさの Fe-B 粒子を従来法で作製し比較した。その結果を Table 1 に示す。粒子の均一性を表す  $S/DI$  および凝集度を表す  $D2/DI$  とともに、従来品よりも本開発品の方が小さい値となっており、均一で分散性の良い粒子になっていることが分かった。

透磁率の周波数特性を Fig.2 に示す。軟磁性粉は、特に高周波において粒子間および粒子内渦電流損が発生し特性が低下することが問題となるが、本開発品は 1GHz の高周波帯域において、従来品よりも小さい  $\mu''$  を示し 4 倍以上の高い  $Q$  値を示すことから、渦電流損が減少していると考えられる。

磁性粒子を高充填し高密度化することでもインダクタの特性は向上するため、現在、本開発品を数  $10\mu\text{m}$  の大粒子と混合させた場合の特性評価も検討中である。

## 参考文献

- 1) K. Murata, T. Miyazaki, H. Masumoto, and Y. Endo: *Trans. Magn. Soc. Jpn.*, **5**(1), 1, (2021).
- 2) S. Yuki, K. Shimba, N. Tezuka, and S. Sugimoto: *Journal of the Japan Institute of Metals and Materials*, **76**(4), 278, (2012).

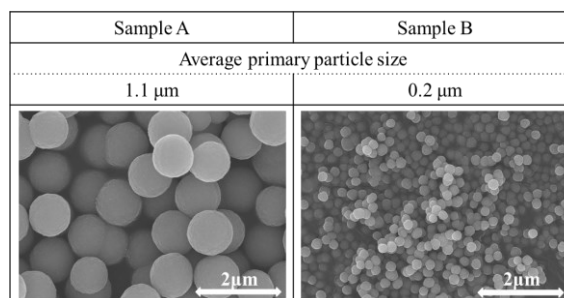


Fig.1 SEM images of Fe-B particles.

Table 1 Characteristics of samples.

Sample	Method	Primary particle Size	$S/DI$	$D2/DI$	$Q$ at 1GHz ( $\mu'/\mu''$ )
A	Developed	1.1	0.12	1.2	10.9
B	Developed	0.2	0.14	0.8	15.9
Ref.) C	Conventional	1.0	0.36	7.2	2.7
Ref.) D	Conventional	0.5	0.28	3.3	4.3

S: SD of primary particle size, DI: average primary particle size, D2: average agglomerated particle size

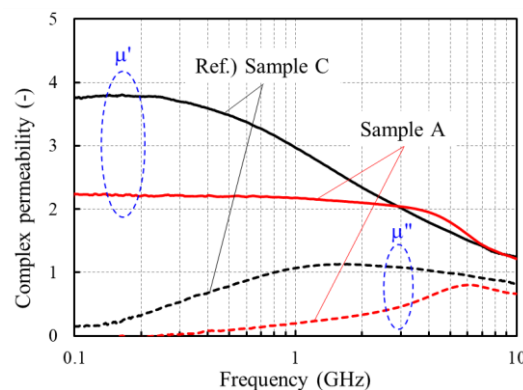


Fig.2 Complex permeability vs. frequency.

# 陰解法を用いたナノ結晶軟磁性材料マイクロマグネティックシミュレーションの高速化

田中智大、安宅正、風間正喜  
(富士通株式会社)

Speeding up of Micromagnetic Simulation for Nanocrystalline Soft Magnetic Material by Implicit Method

T. Tanaka, T. Ataka, M. Kazama  
(Fujitsu Limited)

## はじめに

次世代パワー半導体を用いたパワーデバイスの高周波動作による小型化・省エネルギー化が期待されている。それに伴いインダクタやトランスといった受動素子はこれまでより高周波で動作することが求められ、高周波においても低損失な受動素子開発が重要になっている。マイクロマグネティックシミュレーションによる磁性体内部の磁区生成・消失の分析は高周波駆動時の損失起源の解明に寄与できると考えられる。しかしながらスイッチング周期は依然マイクロマグネティックシミュレーションの時間刻みに比べ大きいためシミュレーションの高速化が求められている。磁化運動を記述する Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程式は磁化の歳差項と減衰項から成るが、我々は数 100 kHz ~ 1 MHz 帯では磁化運動が遅くなり歳差を無視し減衰だけを考慮した場合でも妥当な結果が得られるという仮定のもと、歳差項を無視した LLG 方程式の陰解法を開発した。本報告では陰解法の詳細、計算高速化の結果、歳差項を無視した影響を報告する予定である。

## 計算方法

ナノ結晶軟磁性材料は 10 ナノメートル程度のメッシュに分割されており、各メッシュ領域において磁気異方性がランダム配向しているランダム磁気異方性モデルを用いて表現する。一定周波数をもつ外部磁界を磁性体に一様に印加する。磁化運動は以下のような歳差項を無視した LLG 方程式に従うとする。時間刻み拡大のため LLG 方程式による時間発展はエネルギー最小化を利用した陰解法を開発し用いる。

$$\frac{\partial \mathbf{m}}{\partial t} = -\frac{\gamma}{2} \mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}})$$

$\mathbf{m}$ ,  $\gamma$ ,  $\mathbf{H}_{\text{eff}}$  はそれぞれ単位磁化ベクトル、ジャイロ磁気定数、有効磁界であり、ダンピング定数は 1 である。

## 結果

飽和磁化が 1.6 T、サイズが 10  $\mu\text{m}$  x 2  $\mu\text{m}$  x 0.05  $\mu\text{m}$  の薄帯モデルに振幅 3000 A/m、周波数 1MHz の外部磁界を印加した条件に対し我々が開発した新手法を用いて計算する。比較のため Crank Nicolson 法による解析を実施したところ新手法は Crank Nicolson 法に比べて約 2 倍高速化される。Fig. 1 に磁化状態のスナップショットを示す。磁区幅を分析するとどちらの手法も磁区幅 180nm~400nm にピークが集まり、歳差項を無視する影響は 1MHz 以下では小さいと考えられる。

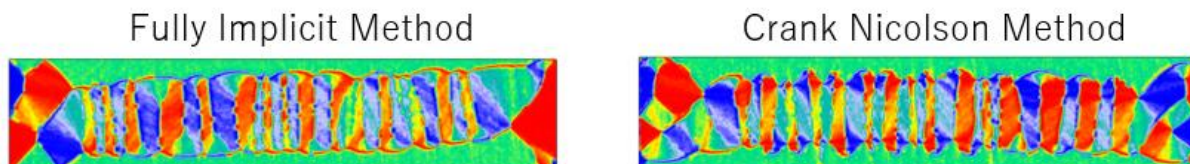


Fig. 1 Magnetization visualization of the implicit method and the semi-implicit Crank Nicolson method.

# 温度・Dy 添加量・配向度を変化させた Nd-Fe-B 焼結磁石の FORC ダイアグラムの特徴抽出

石上啓介<sup>1</sup>、鍋田滉希<sup>1</sup>、古澤大介<sup>2</sup>、榎智仁<sup>2</sup>、西内武司<sup>2</sup>、中村哲也<sup>3</sup>、岡本聡<sup>1,4,5</sup>  
 (<sup>1</sup>東北大多元研、<sup>2</sup>プロテリアル、<sup>3</sup>東北大 SRIS、<sup>4</sup>東北大 CSIS、<sup>5</sup>NIMS)

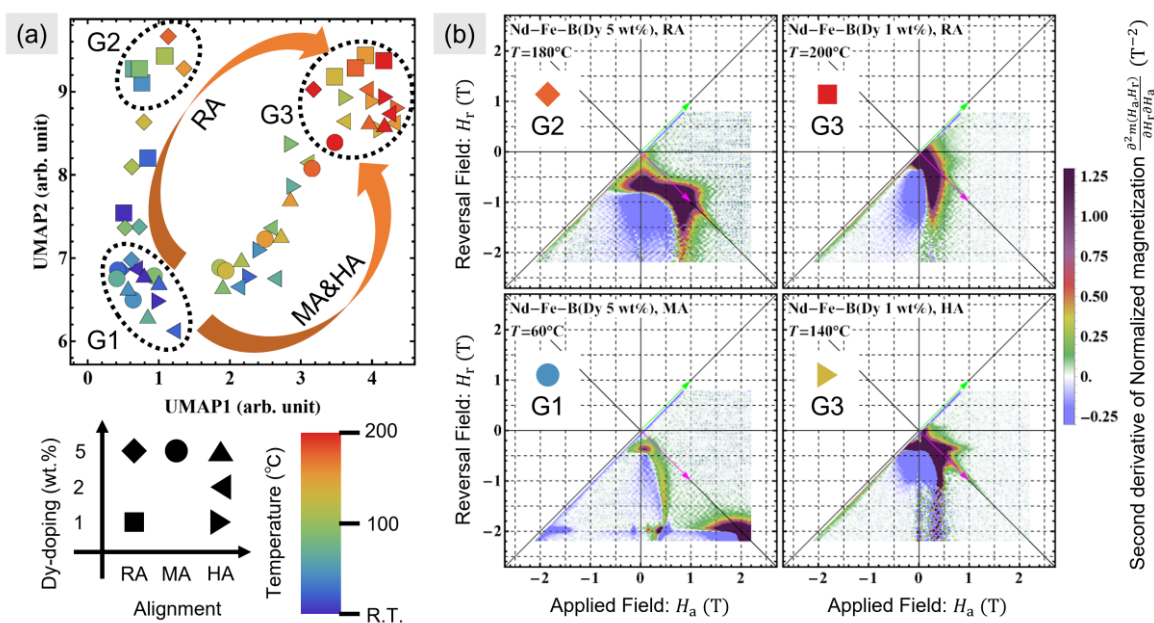
Feature extraction of FORC diagrams of Nd-Fe-B sintered magnets with different temperatures, Dy doping, and alignment

K. Ishigami<sup>1</sup>, K. Nabeta<sup>1</sup>, D. Furusawa<sup>2</sup>, T. Maki<sup>2</sup>, T. Nishiuchi<sup>2</sup>, T. Nakamura<sup>3</sup>, S. Okamoto<sup>1,4,5</sup>  
 (<sup>1</sup>IMRAM, Tohoku Univ., <sup>2</sup>Proterial, Ltd., <sup>3</sup>SRIS, Tohoku Univ., <sup>4</sup>CSIS, Tohoku Univ., <sup>5</sup>NIMS)

First-order Reversal Curve (FORC) 解析は磁石材料の磁化反転素過程を解析する手法の一つである。FORC diagram を用いて磁化反転挙動解析を解析した過去の研究の多くは、FORC diagram 上のスポットの位置と広がりや保磁力とそれらの分散と解釈してきたが、永久磁石材料の FORC diagram は複雑なため、この解釈の元となる hysteron 分布と磁化反転の分布が一致するという仮定を永久磁石材料に適用するのは不相当と考えられる。そこで本研究では、複雑な FORC diagram パターンの原因を明らかにするために、温度・Dy 添加量・配向度を変えながら Nd-Fe-B 焼結磁石の FORC diagram を多数計測し、機械学習で FORC diagram の特徴変化を把握、パラメータと FORC diagram の変化の関係を定量評価することで、FORC diagram 上の特徴変化に対応するパラメータ変化を解明する。

Dy 添加量(1, 2, 5 wt.%)と配向度(無配向: RA, 中配向: MA, 高配向: HA)を変化させた Nd-Fe-B 焼結磁石を試料とし、試料形状を 0.5 mm × 0.5 mm × 3.0 mm に加工し、振動試料型磁力計で FORC diagram の温度依存性を計測した。FORC diagram の次元は 22,046、データ数は 58 であった。このデータセットを UMAP アルゴリズムで 5 次元に次元削減し、第 1 軸 vs 第 2 軸で作った潜在空間プロットが Fig. 1(a)である。ここで、マーカー同士が近いことは FORC diagram が類似することを意味する。Fig. 1(a)において、低温の FORC diagram は Dy 添加量と配向度とは無関係に Group 1(G1) に含まれ、同様に高温の FORC diagram は Group 3(G3)に含まれた。一方で、低温の FORC diagram から高温の FORC diagram に至るパスは二通りあり、Group 2(G2)を経て G3 に変化するパスは無配向磁石、G2 を経ずに G3 に変化するパスは中配向および高配向磁石であった。Fig. 1(b)は各グループに含まれる FORC diagram の代表例であり、これから G1→G2 のパスはスポットの消失と分散の増大(磁化過程が変化)、G1→G3 および G2→G3 のパスはスポットの消失と分散の増大を伴わない FORC diagram の縮小(磁化過程は不変)に対応すると考えられる。

本研究は、文部科学省データ創出・活用型材料研究開発プロジェクト事業 JPMXP1122715503 ならびに物質・材料研究機構 磁石材料ズオープンプラットフォームの助成を受けた。



**Fig. 1** Dimension reduction of FORC diagrams of Dy-doped Nd-Fe-B sintered magnets. (a) 1st and 2nd UMAP latent space plot, (b) FORC diagrams located in the corner of the latent space.

## 配向度、Dy 組成の異なる Nd-Fe-B 焼結磁石の

## FORC ダイアグラム測定

鍋田滉希<sup>1</sup>、石上啓介<sup>1</sup>、古澤大介<sup>2</sup>、榎智仁<sup>2</sup>、西内武司<sup>2</sup>、岡本聡<sup>1,3,4</sup>(東北大多元研<sup>1</sup>、プロテリアル<sup>2</sup>、東北大 CSIS<sup>3</sup>、NIMS<sup>4</sup>)

Measurement of FORC diagram for Nd-Fe-B having different alignment degree and Dy compositions

K. Nabeta<sup>1</sup>, K. Ishigami<sup>1</sup>, D. Furusawa<sup>2</sup>, T. Maki<sup>2</sup>, T. Nishiuchi<sup>2</sup>, and S. Okamoto<sup>1,3,4</sup>(<sup>1</sup>IMRAM, Tohoku Univ., <sup>2</sup>Proterial, Ltd., <sup>3</sup>CSIS, Tohoku Univ., <sup>4</sup>NIMS)**はじめに**

Nd-Fe-B 焼結磁石の保磁力は多くの要因が関係するが、中でも c 軸配向性について SEM/EBSD ならびに MOKE を用いた系統的な研究がなされ、隣接粒子間の c 軸方位の違いが各粒界での磁壁デピニングに強く影響することが報告されている<sup>1)</sup>。この結果は磁化過程が微細組織構造に強く影響することを示すものであるが、その影響は保磁力だけでなく、磁化曲線形状全体で評価すべきものである。磁化曲線形状や磁化過程を特徴づける解析手法として FORC ダイアグラムがある<sup>2)</sup>。現在 c 軸配向性だけでなく Dy 組成も系統的に変化させた Nd-Fe-B 焼結磁石に対して、FORC ダイアグラム測定を実施し、SEM/EBSD ならびに MOKE 測定との相関性についての調査を進めている。今回は現在までに得られた結果を報告する。

**実験方法**

Nd-Fe-B 焼結磁石に Dy を 0、1、2、5 wt.% 添加したものについて無配向、中配向、高配向の配向度をもつ計 12 種類の試料を用意した。平均粒子サイズは約 5  $\mu\text{m}$  である。試料は機械研磨により c 軸方向を長軸とし約  $0.5 \times 0.5 \times 3 \text{ mm}^3$  に加工した。測定は VSM を用いた。測定温度は室温および 40  $^{\circ}\text{C}$  ~ 200  $^{\circ}\text{C}$  の範囲で 20  $^{\circ}\text{C}$  刻みとした。最大印可磁場は室温で 2.6 T、40  $^{\circ}\text{C}$  ~ 200  $^{\circ}\text{C}$  では 2.2 T である。

**実験結果**

Fig.1 に 160  $^{\circ}\text{C}$  で測定した無配向ならびに中配向の Dy 5 wt.% Nd-Fe-B 焼結磁石の磁化曲線および FORC ダイアグラムを示す。低磁場スポットと高磁場スポットの現れ方やスポットの大きさに加えて、高磁場スポットから複数のテールが見られており、斜め 45  $^{\circ}$  ラインに沿ったもの、 $H$  軸に沿ったもの、 $H_c$  軸に沿ったものなどが見られ、これらの現れ方に両試料で明確に違いが見られた。またカラースケールの負領域の現れ方にも大きな違いが見られており、磁区構造や磁化過程の大きな違いを反映したものと考えられる。今後はこれらの FORC ダイアグラムパターンの違いと微細組織、磁区構造との相関を解析していく。

**謝辞**

本研究は、文部科学省データ創出・活用型マテリアル研究開発プロジェクト事業（データ創出・活用型磁性材料研究拠点）JPMXP1122715503 ならびに NIMS 磁石 MOP の支援を受けて行われました。

**参考文献**

- 1) T. Maki *et al.*, J. Magn. Soc. Jpn., **42**, 24-29 (2018)
- 2) K. Miyazawa *et al.*, Acta Mater., **162**, 1-9 (2019)

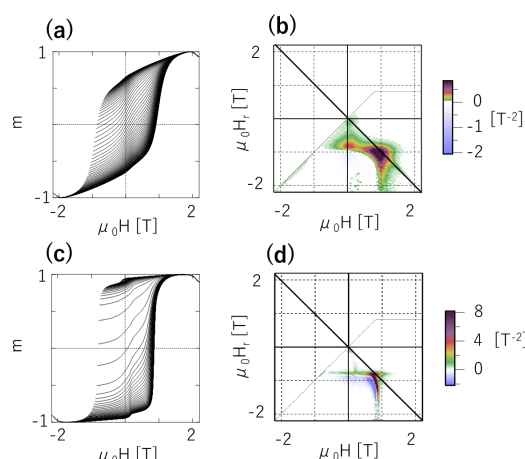


Fig. 1 Magnetization curve and FORC diagrams of Nd-Fe-B sintered magnets with Dy 5 wt.% of (a) - (b) non-aligned and (c) - (d) medium-aligned measured at 160  $^{\circ}\text{C}$ .



## Tb 拡散 Nd-Fe-B 焼結磁石の 3 次元的な微細組織と磁区構造からの特徴抽出

諏訪 智巳、石上 啓介、鈴木 基寛\*、岡本 聡  
(東北大学 多元研、\*関西学院大学)

Feature extraction of 3D microstructure and magnetic domain in a Tb diffused Nd-Fe-B sintered magnet  
Tomomi Suwa, Keisuke Ishigami, Motohiro Suzuki\*, Satoshi Okamoto  
(Tohoku University, \*Kwansei Gakuin University)

### はじめに

永久磁石の磁化過程は複雑な微細組織と相関があり、これまでは Kerr 顕微鏡などの 2 次元的な磁区観察手法により研究されてきた。しかし、現実の磁区構造は 3 次元のネットワーク構造を取り、2 次元観察では評価が困難である。そのため、磁石内部の 3 次元的な微細組織と磁区構造を観測することは、多くの磁石研究者にとって長年の夢であった。ごく最近、3 次元 SEM と硬 X 線磁気トモグラフィーを組み合わせた手法により、同一視野領域における 3 次元的な微細組織と磁区構造の観察が可能になった<sup>2)</sup>。微細組織と磁区構造の相関を調べるためには、それらの特徴を抽出し、比較することが必要であるが、微細組織や磁区構造の形状の複雑性から人間の認識に基づく方法では容易ではない。本研究では、この問題を克服するために、Nd-Fe-B 焼結磁石の 3 次元的な微細組織と磁区構造からデータ駆動型的手法を用いて特徴を抽出することを試みた。

### 実験

本検討では Tb 拡散 Nd-Fe-B 焼結磁石の 3 次元的な微細組織と磁区構造のデータセットを使用した<sup>2)</sup>。このデータセットは、 $18\mu\text{m} \times 10\mu\text{m} \times 18\mu\text{m}$  の 3D-SEM 画像の微細組織と、その同一視野領域の 3 次元磁区構造からなる。また、この 3 次元磁区構造は磁場を +5.5 T から -5.5 T まで変化させたときの残留磁化状態の磁区構造である。これらのデータを用いて解析を行った。

### 実験結果

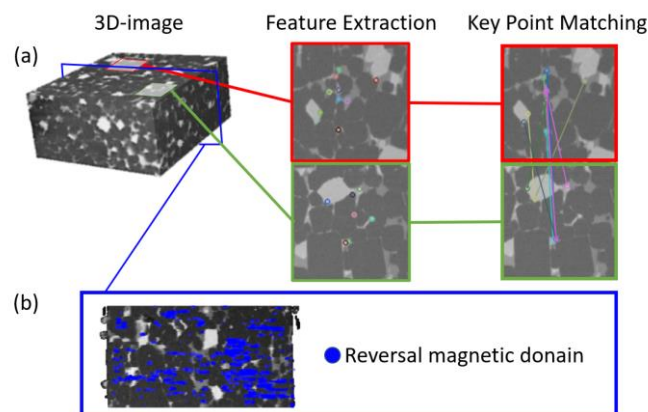
微細組織は AKAZE アルゴリズム<sup>3)</sup>を用いて特徴抽出を行った。抽出された特徴は主に  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  相と Nd リッチ相の界面に対応している (図(a))。これは、この手法が対象領域に含まれる Nd リッチ相を正しく抽出できることを示している。これらの特徴を抽出した後、異なる微細組織に対して同様の解析を行い、類似した組織の対応付けを行った。磁区構造は、磁場を段階的に変化させた際の磁化反転部分のセグメンテーションを 3 次元的に行った (図(b))。これらの過程を経て、微細組織の特徴と磁区構造との相関を見出すことを試みている。

### 謝辞

本研究は、文部科学省データ創出・活用型マテリアル研究開発プロジェクト事業 (データ創出・活用型磁性材料研究拠点) JPMXP1122715503 ならびに NIMS 磁石 MOP の支援を受けて行われた。

### 参考文献

- 1) J. D. Livingston, J. Appl. Phys. **57**, 4137–4139 (1985).
- 2) M. Takeuchi, et al., NPG Asia Materials, **14**, 70 (2022)
- 3) P.F. Alcantarilla, et.al., Proceedings British Machine Vision Conference 2013, 13.1–13.11 (2013).



Nd-Fe-B 磁石の(a) 微細組織の特徴抽出と対応付け  
(b) -2.2T から -2.7T までの反転磁区マッピング

## DFT 計算から見た La-Co 共置換 M 型フェライトの Co 置換サイト選択性

和氣剛, 太田寛人\*, 池野豪一\*\*, 田畑吉計, 中村裕之  
(京都大, 同志社大\*, 大阪公立大\*\*)

Site selectivity of Co in La-Co co-substituted M-type ferrites: DFT calculation study

T. Waki, H. Ohta\*, H. Ikeno\*\*, Y. Tabata, H. Nakamura  
(Kyoto Univ., Doshisya Univ.\*, Osaka Metropolitan Univ.\*\*)

## 1 はじめに

M 型フェライト ( $A\text{Fe}_{12}\text{O}_{19}$ ,  $A = \text{Ca, Sr, Ba, etc.}$ ) は、現行のフェライト磁石の母材である。そこに La と Co を共置換した、La-Co 共置換 M 型フェライトは高性能フェライト磁石の母材として用いられ、微量の Co の導入により無置換品に比べ保磁力が 20% 程度向上するために注目されている<sup>1,2)</sup>。保磁力向上の主要因は  $\text{Co}^{2+}$  による母材の磁気異方性増強によると理解されていたが、最近までその増強機構には論争があった。近年では、 $\text{Co}^{2+}$  の主要な置換サイトは 5 つある Fe サイト ( $2a, 2b, 4f_1, 4f_2, 12k$ ) のうち  $4f_1$  (四面体サイト) で、そこに置換されたものが一軸磁気異方性に寄与することが判明している<sup>3)</sup>。一方で、それ以外のサイト ( $2a, 12k$  八面体サイト) にも  $\text{Co}^{2+}$  は置換され、そこでは面内異方性を示し磁気異方性を低下させることも示唆されており、より効果的に Co を利用するためには Co を選択的に  $4f_1$  に置換することが求められる。これまでに A サイトカチオンの種類もしくは、c 軸長と Co の  $4f_1$  占有率との相関が示唆されている<sup>4)</sup> が、その詳細は解明されていない。Co の  $4f_1$  サイト選択性の解明が、高性能フェライト磁石のさらなる性能向上のための材料設計指針構築につながる。我々はこれまでに  $A = \text{Ca, Sr}$  についての計算結果について部分的に DFT 計算の結果を報告している<sup>5)</sup>。本研究では  $A = \text{Ba}$  の計算結果を加え、DFT 計算による  $\text{Co}^{2+}$  サイト占有エネルギーの A カチオン依存性と局所構造の相関について報告する。

## 2 計算

密度汎関数理論による電子状態計算 (DFT 計算) により、 $A = \text{Ca, Sr, Ba}$  の各 M 型フェライトの 5 つの異なる Fe サイトに  $\text{Co}^{2+}$  が置換された際のエネルギーを計算し、その安定性、安定構造について検討を行った。計算には、平面波基底と PAW 法を用いた VASP パッケージ<sup>6)</sup> を用いた。 $A\text{Fe}_{12}\text{O}_{19}$  の単位胞を元に  $2 \times 2 \times 1$  の超構造を作成し、その中の Fe 原子 1 つを Co 原子に置換したものの全エネルギーを計算した。Co の価数を +2 とするために超構造あたり電子を 1 つ追加した。交換関数には HSE06<sup>7)</sup> を使い、k-mesh は  $2 \times 2 \times 1$ 、エネルギーカットオフは 500 eV とした。エネルギー計算の際には、構造緩和 (GGA-U を用いた計算で初期構造を決定し、最終的には HSE06) を行い、Co 置換サイトの局所構造についても検討を行った。

## 3 結果および考察

$A = \text{Ca, Sr, Ba}$  について計算を行ったところ、どの系においても  $\text{Co}^{2+}@4f_1$  (以下サイト名のみを表記) が最安定となることが判明した。次いで  $2a, 12k$  が 100 meV 程度でエネルギーが接近している。 $2b, 4f_2$  は 1000 meV 程度離れており、これらには実質置換しないと考えられる。また、 $\text{Co}^{2+}$  のモーメントはホストサイトの  $\text{Fe}^{3+}$  のモーメントと平行である。A カチオンサイズが小さくなるにつれ、 $4f_1$  占有時のエネルギーが相対的に安定化することが示され、実験と整合的である。M 型フェライトは、A カチオンを含む R ブロックと、S ブロックが交互に積層する構造を有しているが、A カチオンが小さくなるにつれ R ブロックは c 軸方向に収縮し、S ブロックは膨張する傾向が計算により再現された。局所構造に注目すると、 $\text{Co}^{2+}$  が置換しうる  $2a, 4f_1, 12k$  は S ブロック中および R ブロックとの境界に位置するが、 $2a$  サイト (の配位多面体) は S ブロックと同様膨張する一方、 $4f_1, 12k$  は収縮する。 $\text{Co}^{2+}$  は  $\text{Fe}^{3+}$  よりも大きなカチオンであり、八面体サイトへの置換は置換多面体の収縮により不安定化することを考えると、A カチオンが小さくなることと  $12k$  サイトへの置換の不安定化は整合的である。一方で、 $2a$  サイトは逆に膨張傾向を示すが、これは、対称性の制約により  $4f_1$  の収縮と連動して起こっている。 $\text{Co}^{2+}@2a$  の  $4f_1$  に対する相対的なエネルギーの変化は A カチオンサイズに対し単調ではなく、局所的な歪みも占有エネルギーに寄与していると考えられる。

## References

- 1) K. Iida et al., J. Magn. Soc. Jpn. **23**, 1093 (1999).
- 2) Y. Kobayashi et al., J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy **55**, 541 (2008).
- 3) 中村裕之 粉体および粉末冶金 **67**, 78 (2020).
- 4) H. Nakamura et al., J. Phys.: Mater. **2**, 015007 (2019).
- 5) 小林 他 第 45 回日本磁気学会学術講演会 01aD-7.
- 6) G. Kresse and J. Furthmüller, Vienna *Ab-initio* Simulation Package, University of Wien, 2001.
- 7) J. Heyd et al., J. Chem. Phys. **118**, 8207 (2003).

# La-(Co, Zn)置換 M 型 Sr フェライトの磁気特性評価

中井 慎司、傍島 遼太、和氣 剛、田畑 吉計、中村 裕之  
(京都大学)

Evaluation of magnetic properties of La-(Co, Zn) substituted M-type Sr ferrite

S. Nakai, R. Sobajima, T. Waki, Y. Tabata, H. Nakamura  
(Kyoto University)

## はじめに

M 型 Sr フェライト ( $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ ) はフェライト磁石母材であり、元素置換による母材の高性能化が試みられている。 $\text{Fe}^{3+}$ の一部を  $\text{Co}^{2+}$ で置換し、その電荷補償として  $\text{Sr}^{2+}$ の一部を  $\text{La}^{3+}$ で置換した La-Co 共置換 M 型 Sr フェライト ( $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_{12-x}\text{Co}_x\text{O}_{19}$ ) は異方性磁場が増大し、磁化も僅かに増大する[1]。一方、La-Zn 共置換 M 型 Sr フェライト ( $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_{12-x}\text{Zn}_x\text{O}_{19}$ ) では、磁化が増大する[2]。大気酸素分圧下での合成では  $\text{Co}^{2+}$ および  $\text{Zn}^{2+}$ の固溶限は  $x \leq 0.3$  であるが、高酸素圧環境を用いることで  $\text{Co}^{2+}$ および  $\text{Zn}^{2+}$ の固溶限を増大でき、またそれに伴う性能の向上が確認された[3-5]。そのため、 $\text{Co}^{2+}$ と  $\text{Zn}^{2+}$ を同時に高濃度置換した La-(Co, Zn)置換 M 型 Sr フェライト ( $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_{12-x}\text{Co}_y\text{Zn}_{x-y}\text{O}_{19}$ ) では異方性磁場と磁化の両方を大きく増強できる可能性がある。

しかし  $\text{Co}^{2+}$ と  $\text{Zn}^{2+}$ を同時に置換する場合、その磁気特性は La-Co 共置換と La-Zn 共置換からの内挿で理解できるとは限らない。 $\text{Co}^{2+}$ の磁気異方性への寄与は結晶学的サイトによって異なり、最優先サイトの  $4f_1$  を占有する  $\text{Co}^{2+}$ のみが磁気異方性の増強に働く[6]。一方で  $4f_1$  サイトは  $\text{Zn}^{2+}$ の最優先サイトでもある[7]。そのため、置換量の増大に伴い、 $4f_1$  サイトにおいて  $\text{Co}^{2+}$ と  $\text{Zn}^{2+}$ の競合が起きる可能性があり、期待通りの磁性を示すとは限らない。

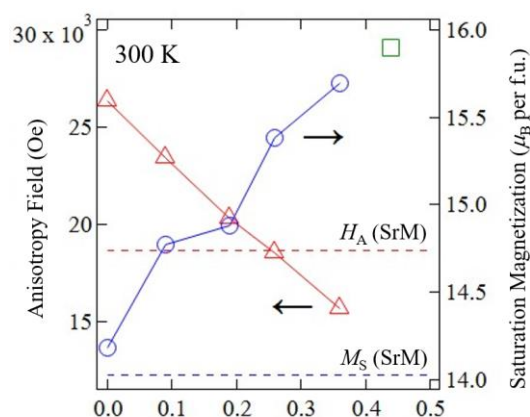
そこで本研究では高濃度 La-(Co, Zn)置換 M 型 Sr フェライトを合成し、その磁気特性を調査した。

## 実験方法

La-(Co, Zn)置換 M 型 Sr フェライト  $\text{Sr}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{Fe}_{11.5}\text{Co}_{0.5-x}\text{Zn}_x\text{O}_{19}$  ( $x = 0, 0.1, \dots, 0.4$ ) の多結晶試料を固相反応法により合成した。最終熱処理は酸素分圧 10 atm 下、1200°Cで行った。試料の相同定は XRD、組成分析は WDX により行った。磁化曲線は VSM により測定し、室温での飽和磁化、異方性磁場を見積もった。

## 結果と考察

Fig. 1 に室温における La-(Co, Zn)置換 M 型 Sr フェライト多結晶の飽和磁化および異方性磁場を示す。M 型フェライトはフェリ磁性であり、低温での磁化は各磁性イオンの磁気モーメントの足し合わせで理解される。飽和磁化が組成に対して概ね線形であることから  $\text{Co}^{2+}$ および  $\text{Zn}^{2+}$ のサイト占有の競合は起こっていないものと考えられる。また異方性磁場も組成に対して線形であり、 $\text{Co}^{2+}$ と  $\text{Zn}^{2+}$ が磁気異方性に与える影響は単純な足し合わせとして理解できる。磁気異方性の増強に寄与する  $\text{Co}^{2+}$ の存在下であっても、 $\text{Zn}^{2+}$ 置換による磁気異方性の劣化は顕著に起こる。発表では低温での磁気特性のふるまいや、フェライト磁石母材としての性能の評価を行う予定である。



Zn content  $x$  in M-phase detected by WDX analysis

Fig. 1 Saturation magnetization ( $M_S$ ) and anisotropy field ( $H_A$ ) at 300 K versus Zn content  $x$  in M-phase detected by WDX analysis. Blue and red dashed lines are  $M_S$  and  $H_A$  of  $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ , respectively [8].  $M_S$  of La-Zn co-substituted SrM ( $x = 0.5$ ) is also described as a green square [5].

**参考文献** [1] K. Iida et al., J. Magn. Soc. Jpn. **23** (1999) 1093. [2] H. Taguchi et al., Abstracts of ICF 7 (1996) 26. [3] T. Waki et al., Mater. Res. Bull. **104** (2018) 87. [4] 和氣 剛 他、粉体および粉末冶金、**69**(7)、2022年、288-292. [5] T. Waki et al., in preparation (ssrs.4085484). [6] 有本省吾 他、日本磁気学会 (第46回講演大会)、[08-aC]、2022年 [7] L. Lechevallier et al., J. Phys.: Condens. Matter **16** (2004) 5359. [8] B. T. Shirk and W. R. Buessem, J. Appl. Phys. **40** (1969) 1294.

## La-Co 共置換 M 型 Sr フェライトの熱処理による保磁力の変化

若林大成、和氣剛、田畑吉計、中村裕之

(京都大学)

Change of coercivity by heat treatment in La-Co co-substituted M-type Sr ferrite

T. Wakabayashi, T. Waki, Y. Tabata, H. Nakamura

(Kyoto University)

## 研究目的

M 型 Sr フェライト  $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$  は永久磁石材料として広く用いられ、La-Co 共置換により、磁化を下げずに保磁力が向上するため、高性能フェライト磁石としてモーター等に用いられている [1]。M 型フェライトには 5 つの異なる Fe サイトが存在し、 $\text{Co}^{2+}$  の置換サイトや、Co 置換による異方性発現機構は長らく論争があったが、近年では最優先置換サイトの  $4f_1$  (四面体配位) に置換された Co のみが一軸異方性の増強に寄与することが明らかになっている [2]。 $4f_1$  サイト以外への置換もエネルギー的に接近しているため、 $\text{Co}^{2+}$  の分布は熱処理条件によって制御できる。我々はこれまでに、熱処理後の徐冷速度を低下させることにより、異方性磁場が増大することを報告した [3][4]。一般的に、永久磁石の性能として重要な保磁力は、母材の磁気異方性のみならず、磁性粒子の大きさや形状、粒界相の状態にも影響される、構造敏感な指標である。本研究では、La-Co 共置換 M 型 Sr フェライトの熱処理による Co の分布変化を通じた保磁力の変化について調査した。

## 実験方法

$\text{Sr}_{0.7}\text{La}_{0.3}\text{Fe}_{11.7}\text{Co}_{0.3}\text{O}_{19}$  の多結晶試料は固相反応法により合成した。原料粉末を化学量論組成となるように混合し、酸素分圧 1 atm 下で  $1300^\circ\text{C}$ 、12 時間焼成した。その後、遊星ボールミル (FRITSCH) を用いて、 $1\mu\text{m}$  程度の粒径となるよう粉碎し、酸素分圧 1 atm 下で  $1000^\circ\text{C}$ 、1 時間保持して、室温まで徐冷した ( $-200, -50, -20^\circ\text{C/h}$ 、以下それぞれ SC200, SC50, SC20)。磁化曲線は、粉末をパラフィンで固定した無配向試料を用い、VSM (東英工業) により測定した ( $T = 298\text{ K}$ )。

## 実験結果

Fig. 1 に熱処理後の試料の減磁曲線を示す。遊星ボールミルで粉碎した直後の保磁力は小さい ( $H_c \sim 2000\text{ Oe}$ ) が、熱処理を施すことによって、保磁力が増大することを確認した。これは粉碎によって導入された結晶ひずみが熱処理によって取り除かれたことに起因する [5]。また、徐冷速度を小さくすると、保磁力が増大することが分かる。これはより低速で冷却されることによって、 $\text{Co}^{2+}$  の  $4f_1$  サイト占有の割合が増加し、異方性磁場が増大したためと考えられる。一方で、SC20 は SC200 よりも 8% 程、異方性磁場が増大することを確認している [3] が、保磁力の増加量は 3% 程にとどまっている。これは、保磁力が異方性磁場という数値だけでは表現されない、複雑な磁化反転機構に支配されていることを示唆している。

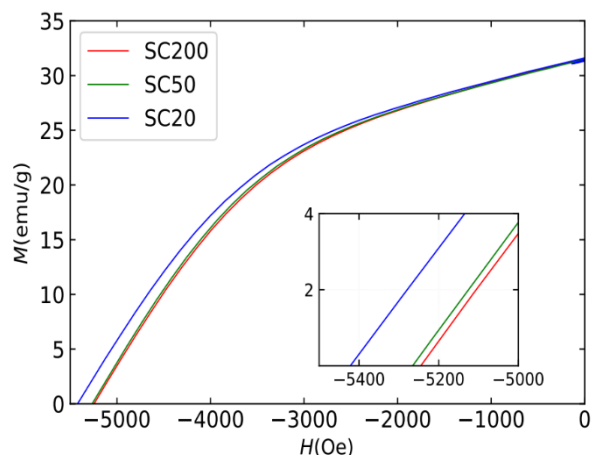


Fig.1 Demagnetization curve of samples

## 参考文献

- [1] K. Iida et al. J. Magn. Soc. Japan, 23, 1093-1096 (1999)
- [2] H. Nakamura, J. Jpn. Soc. Powder Metallurgy, 67(2020) 78-83
- [3] 和氣 他 粉体粉末冶金協会 2023 年度春季大会 2-33A
- [4] 有本 他 第 46 回日本磁気学会学術講演会 08aC-4
- [5] 田口 他 日本応用磁気学会誌, 18(1994)197-200

# KBr フラックスを用いた La-Co-Sr フェライト粒子の作製

小高千洋、岸本幹雄、喜多英治、柳原英人  
(筑波大学)

Fabrication of La-Co-Sr ferrite particles using molten potassium bromide flux

C. Kodaka, M. Kishimoto, E. Kita and H. Yanagihara  
(Univ. of Tsukuba)

## はじめに

1952年にBaフェライトが発表されて以来、フェライト磁石は、長きにわたり特性改善が続けられてきた。磁石としての高性能化には、サブミクロンサイズの粒子を作製し高密度かつ高配向化するプロセス技術と、飽和磁化や異方性定数を高めるための組成制御技術が重要である。様々なM型フェライトの中でLa-Co-Srフェライトは $\text{Fe}^{3+}$ の一部を $\text{Co}^{2+}$ に置換することで非置換のものと比較して室温の残留磁化が数%、保磁力が20%向上すると報告されている<sup>1)</sup>。一般に六方晶Srフェライト粒子は高温での固体反応であるセラミックス法を用いた試料を中心に研究が行われてきたが、この手法は不規則な形状や凝集などの課題を抱えている。この解決方法として低温での合成が可能なフラックス法による試料作製<sup>2)</sup>が挙げられる。本研究では臭化カリウム(KBr)を熔融塩フラックスとして用い、低温で六方晶La-Co-Srフェライト粒子の合成を行った。さらに $\text{La}^{3+}$ 、 $\text{Co}^{2+}$ の置換量を変化させることによる特性変化や結晶構造や粒形についても報告する。

## 実験方法

La-Co-Srフェライト粒子を得るため、まず組成比に従って $\text{Sr}^{2+}$ 、 $\text{Fe}^{3+}$ 、 $\text{Co}^{2+}$ 、 $\text{La}^{3+}$ イオンを含む水溶液を調整し、NaOH水溶液を混合することで共沈させた。沈殿物を含む懸濁液を中性になるまで水洗し、臭化カリウム(KBr)を溶解させた後、加熱して水分を蒸発させた。沈殿物とKBrの混合物を乳鉢で粉砕した後、マッフル炉を用いて空气中800°Cで1時間、坩堝内で加熱した。熱処理後はKBrを除去するために十分に水洗した。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、振動試料磁力計(VSM)による磁気測定を行った。

## 実験結果

Fig.1にLa-Co-Srフェライト粒子のXRDパターンを示す。M型フェライトと弱い $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ の回折線が確認された。Fig.2にLa-Co-SrフェライトのLa置換に対するa軸、c軸の格子定数変化を示す。a軸は変化が見られなかったが、c軸は線形に減少した。これは $\text{La}^{3+}(1.17 \text{ \AA})$ と $\text{Sr}^{2+}(1.32 \text{ \AA})$ 、 $\text{Co}^{2+}(0.69 \text{ \AA})$ と $\text{Fe}^{3+}(0.79 \text{ \AA})$ のイオン半径の違いにより起こる<sup>1)</sup>。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) K. Iida, Y. Minachi, K. Masuzawa, H. Nishio, H. Taguchi, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **23**, 1093–1096 (1999).
- 2) M. Kishimoto, H. Yanagihara: *J. Magn. Mater.*, **579**, 170871 (2023).

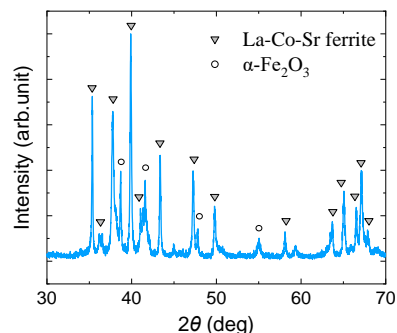


Fig.1. XRD patterns of La-Co-Sr ferrite.

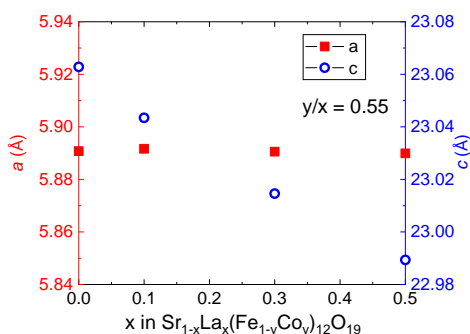


Fig.2. Dependence of lattice parameters  $a$  (■, closed squares) and  $c$  (○, open circles) of La-Co-Sr ferrites on the substitute of the lanthanum,  $x$ .

# 圧延 / アンモニア窒化法で作製された Fe-Co-V-N バルクの bct 構造

長谷川 崇  
(秋田大理工)

bct Fe-Co-V-N foils fabricated by rolling and ammonia-nitriding method

T. Hasegawa  
(Akita Univ.)

## はじめに

永久磁石の高性能化のためには、高い一軸結晶磁気異方性定数 ( $K_u$ ) と高い飽和磁化 ( $M_s$ ) を兼ね備えた材料の開発が必須である。筆者らの研究室ではこれまでに、Fe-Co に対して V-N を同時添加することで、Fe-Co 格子に対して正方晶 (bct) 歪みを導入し、 $10^6 \text{ J/m}^3$  オーダーの高  $K_u$  が得られることを報告している[1,2]。本研究では、バルク状態において bct 構造の Fe-Co 基合金を合成することを目的として、圧延 / アンモニア窒化法に注目し、圧延した Fe-Co-V に対する N 添加効果を調べた。

## 実験方法

試料作製工程 (圧延 / アンモニアガス窒化法) を Fig.1(a) に示す。初めに溶解法で Fe-Co-V インゴット (厚み  $t=0.5 \text{ mm}$ ) を作製し、次いで厚みが  $t=55 \mu\text{m}$  の箔になるまで圧延を行い、最後にアンモニアガス窒化を行った。最終的な試料構成は次の通りである:  $(\text{Fe}_{0.45}\text{Co}_{0.45}\text{V}_{0.10})_{100-x}\text{N}_x$  ( $x=0, 1.5 \text{ at.}\%$ ,  $t=55 \mu\text{m}$ )。ここで V 組成は、先の筆者らの報告において  $M_s$  と  $K_u$  のバランスが最もよかった 10 at.% に固定した[1]。N 添加量は、窒化ポテンシャル (アンモニアと水素の分圧比  $K_n = 0.10$ ) と熱処理条件 ( $T^\circ\text{C}$ , 5 h) で制御し、SEM 付属の EDS を用いた組成分析の結果、試料中の N 組成 ( $x$ ) は各々の試料で 0 at.% と 1.5 at.% になっていることがわかった。結晶構造解析には X 線回折装置 (CuK $\alpha$  線, Out-of-plane XRD) と TEM を用いた。

## 実験結果

Fig.1(b) は、溶解法で作製した Fe-Co-V インゴットを圧延し、その後熱処理条件  $T=0$  (As-rolled : 圧延ままで窒化なし), 550, 600, 650  $^\circ\text{C}$  でアンモニア窒化した箔試料の XRD パターンである。全ての試料において、観察される中で最も強いピークは 65 $^\circ$  付近の bcc-FeCo(200) ピークであることから、圧延工程を経ることで試料はおおむね垂直方向に (200) 配向したことがわかる。また窒化温度の上昇に伴い、これらのピークは二又に分かれてツインピークに変化している。この原因としては Fe-Co-V-N の結晶構造の bct 化の可能性が考えられる。Fig.1(c) は、 $T=650^\circ\text{C}$  で窒化した試料の断面 TEM 像である。TEM 像をみると、格子定数の長さが  $c > a$  である bct 格子像が見てとれる。ここから算出される軸比  $c/a$  は約 1.07 である。この値は先の XRD のツインピークから算出される値と僅かに異なるだけである。以上より、Fe-Co への V-N 同時添加は、薄膜状態の Fe-Co に対してだけでなく、バルク状態の Fe-Co に対しても bct 化する効果があることがわかる。これは将来的な FeCo の永久磁石化における重要な指針の一つになると考える

## 参考文献

[1] T. Hasegawa, Sci. Rep. 13 (2023) 5666. [2] 特許第 6923185 号. この研究は科研費基盤 B (JP20H02832)、ASRC、東北大学金属材料研究所との共同研究(202212-RDKGE-0027)の支援を受けた。

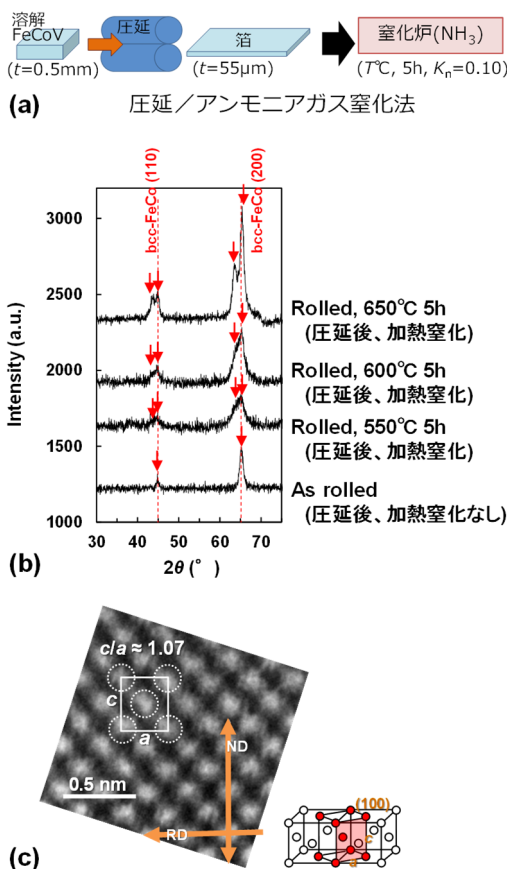


Fig. 1. (a) Sample preparation process (rolling and ammonia-nitriding method). Out-of-plane XRD patterns (b) and TEM image (c) of the Fe-Co-V foils nitrided at  $0 \leq T \leq 650^\circ\text{C}$ , and  $T = 650^\circ\text{C}$ , respectively.

# V の特異な格子歪と Fe-Co-V 薄膜の正方晶化

村上知優(院生), 長谷川崇  
(秋田大理工)

Lattice distortion of V element and bct Fe-Co-V films

C. Murakami, T. Hasegawa  
(Akita Univ.)

## はじめに

Fe-Co は高飽和磁化をもつ材料であり、一軸結晶磁気異方性 ( $K_u$ ) が付与できれば高性能な永久磁石材料になる可能性がある。一般的な Fe-Co の熱力学的に安定な結晶構造は体心立方晶 (bcc) であるが、正方晶 (bct) 化すると  $10^6$  J/m<sup>3</sup> オーダーの高い  $K_u$  が得られることが実験的にわかっている[1]。また、Fe-Co 薄膜に対して置換型元素 V を添加すると bct 化が促進されることがわかっている。しかし、置換型元素 V が bct 化に寄与する詳細なメカニズムは明らかになっていない。そこで本研究では、まず初めに V 単体に着目し、Pd や Rh 下地との格子不整合を利用して V に対して格子歪を導入し、V 単体の結晶構造の変化を調べた。次いで、V を添加した Fe-Co-V 薄膜の結晶構造変化を調べた。

## 実験方法

試料作製には 2 種類の多元マグネトロンスパッタ装置 (到達真空度:  $10^{-5}$  および  $10^{-7}$  Pa) を用いた。はじめに MgO (100) 基板に基板加熱温度 300°C で Pd および Rh ( $t = 20$  nm) を、次に 200°C で V および  $(\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_{80}\text{V}_{20}$  ( $t$  nm) を、Fig.1 の概念図に示すようにエピタキシャル成長させた。そして最後に室温でキャップ層  $\text{SiO}_2$  ( $t = 5$  nm) を成膜した。なお Ar ガス圧は、Pd 下地の試料では 0.5 Pa、Rh 下地の試料では 0.3 Pa とした。Fe-Co-V の組成分析には EPMA、膜厚評価には接触式段差計、磁気特性評価には VSM、結晶構造解析には In-plane XRD および Out-of-plane XRD を用いた。

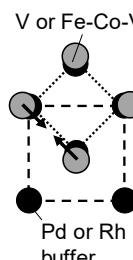
## 実験結果

Fig.2 は、Pd または Rh 下地層上に、V 単体または  $(\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_{80}\text{V}_{20}$  をエピタキシャル成長させた試料の軸比 ( $c/a$ ) の膜厚 ( $t$ ) 依存性である。Pd/V ( $\Delta$ ) 薄膜では、 $t$  に依存せずに  $c/a \approx 1.0$  (bcc) の一定値が得られている。V 単体の熱平衡状態は  $c/a = 1.0$  (bcc) であるので、ここでは一般的な熱平衡状態が得られている。一方で Rh/V ( $\blacktriangle$ ) 薄膜では、 $t$  に依存せずに  $c/a \approx 1.45$  (fcc) の一定値が得られている。これは、Fig.1 の概念図に示すように、Rh の格子定数が Pd よりも小さいことが要因と考えられ、ここでの V は、Rh との格子不整合に起因して準安定な fcc に変態していると考えられる。またこの fcc 化は、 $t = 100$  nm の厚膜領域まで生じている。このように、V 元素は bcc と fcc の形成エネルギーが拮抗している可能性が高いと考える。次に Pd/ $(\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_{90}\text{V}_{10}$  ( $\circ$ ) および Rh/ $(\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_{90}\text{V}_{10}$  ( $\bullet$ ) 薄膜に注目する。V 未添加の Fe-Co の熱平衡状態は  $c/a = 1.0$  (bcc) であるが、 $t \leq 20$  nm の領域では、両者とも bct 構造が形成されており、厚膜化とともに不連続に bcc 構造へと変態している。この結果は、V 単体が bcc か fcc のどちらか一方を形成しやすいという特異な性質を反映した結果であると考えられる。

## 参考文献

[1] T. Hasegawa et al., Sci. Rep. 9 (2019) 5248.

この研究は科研費基盤 B (JP20H02832) の支援を受けた。



		$a$ (nm)	$a/\sqrt{2}$ (nm)	$c/a$
V	bcc	0.303	-	-
Pd	fcc	0.389	0.275	1.33
Rh	fcc	0.381	0.269	1.42
FeCo	bcc	0.285	-	-
Pd	fcc	0.389	0.275	1.11
Rh	fcc	0.381	0.269	1.19

Fig. 1. Relationship between the Pd or Rh buffer layer and the V or Fe-Co-V layer.

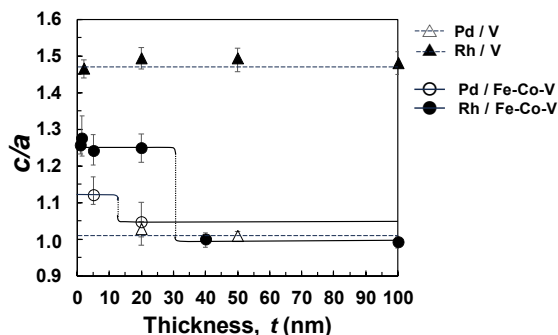


Fig. 2. Film thickness ( $t$ )-dependences of  $c/a$  of Pd/V ( $\Delta$ ), Rh/V ( $\blacktriangle$ ), Pd/ $(\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_{90}\text{V}_{10}$  ( $\circ$ ) and Rh/ $(\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_{90}\text{V}_{10}$  ( $\bullet$ ) films ( $t$  nm).

# 正方晶 Fe-Co-V 薄膜のナノスケール微細加工と磁気特性

榎本健太(院生), 長谷川崇  
(秋田大理工)

Microfabrication and magnetic properties of tetragonally distorted Fe-Co-V films

K. Enomoto, T. Hasegawa  
(Akita Univ.)

## はじめに

永久磁石の機能向上のためには高い飽和磁化 ( $M_s$ ) および高い一軸結晶磁気異方性定数 ( $K_u$ ) 並びに高い保磁力 ( $H_c$ ) が必要とされる。一般的な FeCo は、bcc 構造をとり、全遷移金属合金中で最大の  $M_s$  を有するが、 $K_u$  が極めて低いために  $H_c$  はほぼゼロとなる。しかし本研究室ではこれまでに、Rh 下地や STO 基板と FeCo との格子不整合を利用したり、V(N, C)などの第三元素を添加したりすることで、FeCo の軸比 ( $c/a$ ) を変化させることができ、理想的には  $c/a = 1.2$  付近にした場合に  $10^7 \text{ erg/cm}^3$  オーダーに高  $K_u$  化することを明らかにした[1]。ここで、一般的に磁性体の保磁力にはサイズ効果がみられ、連続膜状態では  $H_c$  が極めて低いが、微細加工すると高保磁力化するケースが多々報告されている[2]。そこで本研究では、電子線 (EB) リソグラフィを用いて FeCo 基合金薄膜を微細加工し、 $H_c$  のサイズ依存性を調べた。

## 実験方法

成膜には超高真空多元同時マグネトロンスパッタリング装置(到達真空度 $\sim 10^{-7}$  Pa)を用い、MgO 基板上に基板加熱温度  $300^\circ\text{C}$  で下地層として Rh、次に基板加熱温度  $200^\circ\text{C}$  で Fe-Co-V ( $t = 1.5, 5 \text{ nm}$ )、最後に室温でキャップ層  $\text{SiO}_2$  ( $t = 5 \text{ nm}$ ) を成膜した。V 組成は、Fe-Co-V の軸比  $c/a$  の制御が最も容易であった  $20 \text{ at.}\%$  とした。その後 EB 描画装置を用いて薄膜を、ドット径 ( $D$ ) = 300, 100, 80, 60, 50, 30 nm に微細加工した。磁気特性の評価には極カー効果 (MOKE) 顕微鏡を用いた。

## 実験結果

Fig. 1(a)は、Rh/Fe-Co-V ( $t = 1.5 \text{ nm}$ ) 薄膜の上に作製したレジストマスク (EB 描画後に現像した直後) の SEM 像である。設計通りの円形ドットが形成されていることがわかる。Fig. 1(b)は、微細加工した後(ミリング直後)の Rh/Fe-Co-V ( $t = 1.5 \text{ nm}$ ) ドットの  $H_c$  のドット径  $D$  依存性である。なおここには示していないが、すべての磁化曲線において2段ループが観察されたので、ここでは  $H_c$  の高い値の成分の方をプロットしている。グラフより、 $D \geq 100 \text{ nm}$  の範囲では、 $D$  の減少に伴い  $H_c$  は増加している。連続膜 ( $D = \infty$ ) での  $H_c$  は  $0.25 \text{ kOe}$  であるのに対し、 $D = 80 \text{ nm}$  では  $6 \text{ kOe}$  程度まで増加している。このことから、将来的に FeCo 基合金磁石の高保磁力化を達成するために狙うべき粒子サイズは約  $100 \text{ nm}$  未満であることが示唆される。

## 参考文献

- [1] T. Hasegawa et al., Sci. Rep. 9 (2019) 5248.  
[2] T. Bublath and D. Goll, J. Appl. Phys. 110 (2011) 073908.  
この研究は科研費基盤 B (JP20H02832) の支援を受けた。

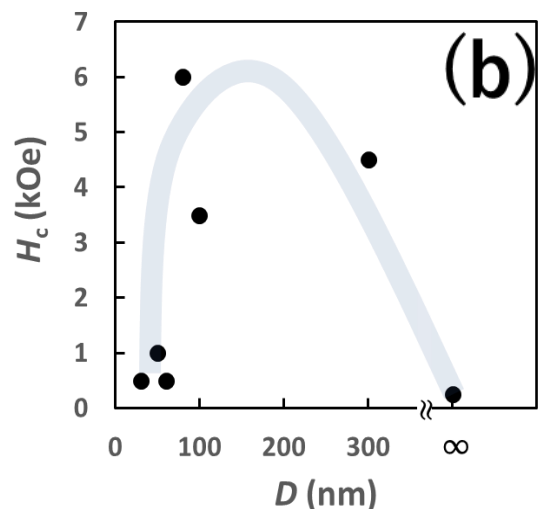
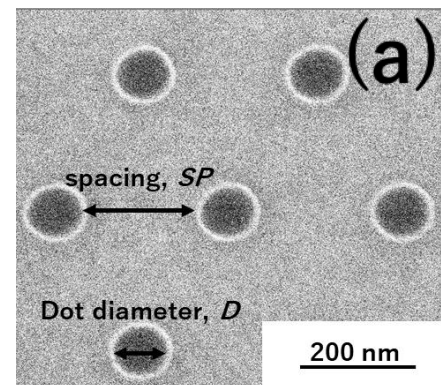


Figure 1. (a) SEM image after the microfabrication, and (b) dot diameter dependence of perpendicular coercivity.



# FeCo 基合金薄膜への Ag 添加による微粒子化と磁気特性

榎田健人 (院生), 長谷川崇  
(秋田大理工)

Granularization and magnetic properties of FeCo-based alloy films with added Ag

K. Kunigida, T. Hasegawa  
(Akita Univ.)

## はじめに

高性能な永久磁石材料の条件は、高い飽和磁化 ( $M_s$ )、一軸磁気異方性 ( $K_u$ )、保磁力 ( $H_c$ ) である。一般的な FeCo は、室温で体心立方 (bcc) 構造をとり、Slater-Pauling 曲線より全遷移金属合金中で最大の  $M_s$  を有することが知られるが、 $K_u$  が極めて低いために  $H_c$  はほぼ 0 となる。しかし本研究室では、Rh 下地などと FeCo との格子不整合を利用したエピタキシャル成長や、V(N, C) などの第三元素の添加を用いることで、FeCo の軸比 ( $c/a$ ) を変化させることができ、特に  $c/a = 1.2$  付近にした場合に  $10^7$  erg/cm<sup>3</sup> オーダーの  $K_u$  をもつことを明らかにした[1]。また一般的に磁性体の結晶粒を微細化すると高  $H_c$  化することが知られている[2]。そこで本研究では、Fe とは非固溶系である Ag に着目し[3]、これを FeCo に添加することで、FeCo の微粒子化 (グラニューラー化) を試みた。

## 実験方法

成膜には高真空多元マグネトロンスパッタ装置 (到達真空度  $\sim 10^{-5}$  Pa) を用いた。Fe, Co, V, Ag 単体ターゲットを用いて、SiO<sub>2</sub> または SrTiO<sub>3</sub> (STO) (100) 基板上に (Fe<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>)-Ag ( $t_{\text{total}} = 5 \sim 10$  nm) 及び (Fe<sub>0.4</sub>Co<sub>0.4</sub>V<sub>0.2</sub>)-N-Ag ( $t_{\text{total}} = 20 \sim 40$  nm) を成膜した。なお、STO 基板上の成膜時は、配向のために 200 °C で基板加熱した。N 添加量は、Ar と N<sub>2</sub> の混合ガスを用いて制御した。全ガス圧を 0.5 Pa とし、Ar の流量を 102 sccm、N<sub>2</sub> の流量を 1.5 sccm とした。Ag 添加量は磁性膜全体に対して 0~50 vol.% の範囲で変化させた。また、成膜後に必要に応じて加熱温度  $T = 400 \sim 700$  °C で 10 分間の後熱処理 (到達真空度  $\sim 10^{-4}$  Pa, 昇温速度 300 °C/s, 空冷) を行った。

## 実験結果

Fig. 1 は、(Fe-Co)-Ag ( $x$  vol.% Ag) 薄膜の XRD パターンである。 $x \geq 50$  vol.% の試料では、bcc-FeCo (110) ピークと fcc-Ag (111) ピークの両方が観察されることから、FeCo 相と Ag 相は非固溶状態で存在していると考えられる。Fig. 2 は、Fe-Co-V-N に  $x = 50$  vol.% Ag を添加し、各温度  $T$  で後熱処理した試料の面内磁化曲線である。 $H_c$  は、 $T \leq 400$  °C ではほぼ 0 kOe であったが、 $T \geq 500$  °C では約 0.7 kOe であった。ここには示していないが、 $x = 0$  vol.% Ag の試料では、 $H_c$  はほぼ 0 kOe であった。これらのことから、50 vol.% 以上の Ag 添加によって、Fe-Co-V-N の微粒子化 (グラニューラー化) が生じると考えられる。

## 参考文献

- [1] T. Hasegawa et al., Sci. Rep. 9 (2019) 5248.
- [2] T. Bublath and D. Goll, J. Appl. Phys. 110 (2011) 073908.
- [3] O.A. Bannykh, K. Enami, S. Nagasaki, and A. Nishiwaki, AGNE Gijutsu Center Co., Ltd., Tetsugokinjotaizushu-nigenkei kara nanagenkei made- (in Japanese) (2001) p.3  
この研究は科研費基盤 B (JP20H02832) の支援を受けた。

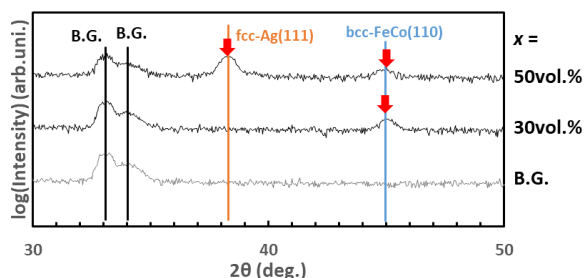


Fig. 1 Out-of-plane XRD patterns of FeCo-Ag ( $x$  vol.% Ag) films.

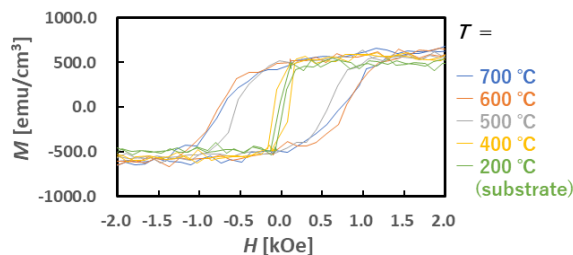


Fig. 2 In-plane magnetization curves of STO (100) sub./ (Fe<sub>0.4</sub>Co<sub>0.4</sub>V<sub>0.2</sub>)-N-Ag (N<sub>2</sub> = 1.5 sccm,  $x = 50$  vol.% Ag) films ( $t_{\text{total}} = 40$  nm) annealed at several temperatures ( $T$ ).

## High Throughput synthesis of TbCu<sub>7</sub> type Sm-Fe based thin films

A. R. Dilipan<sup>1, 2</sup>, D. Ogawa<sup>1</sup>, H. Sepehri-Amin<sup>1, 2</sup>, R. Modak<sup>1</sup>, V. K. Kushwaha<sup>1</sup>, Y. Sakuraba<sup>1, 2</sup>, K. Uchida<sup>1, 2</sup>, K. Hono<sup>1, 2</sup>, Y. K. Takahashi<sup>1</sup>.

<sup>1</sup> National Institute for Materials science, Tsukuba 305-0047, Japan.

<sup>2</sup> Graduate School of Science and Technology, University of Tsukuba, Tsukuba 305-8577, Japan.

Sm-Fe based compounds have the potential for next-generation permanent magnets (PM) for balanced use of rare earth elements other than Nd [1]. In the Sm-Fe system, the SmFe<sub>12</sub> (ThMn<sub>12</sub>-type) compound have been extensively studied in recent years due to their low rare earth (RE) content and high saturation magnetization. However, SmFe<sub>12</sub> is unstable and requires large amounts of stabilizers such as Ti, V etc., which in turn dilutes its magnetization [2]. On the other hand, the metastable TbCu<sub>7</sub>-type Sm-Fe compounds are interesting because Fe can be accommodated beyond the stoichiometry of SmFe<sub>7</sub>, i.e., Fe:Sm>7. Nitriding this system can develop a strong uniaxial anisotropy [3], which is required for permanent magnets. However, the exact range of Fe:Sm ratio and nitrogen concentration suitable for superior hard magnetic properties is not well explored, which is the aim of the present work.

In this study, we present a systematic investigation of the formation of the TbCu<sub>7</sub>-type phase for a range of Fe:Sm ratios using the combinatorial thin film technique. We have synthesized a linear composition gradient of Fe:Sm ranging from 5.8 to 11.8 in a single thin film. Composition and phase analysis is performed using high throughput XRF and XRD measured at 1 mm intervals in the thin film as shown in Figure 1(a). The highest intensity of the TbCu<sub>7</sub>-type phase is observed when the Fe:Sm ratio is ~9.9 (Figure 1(b)). Nitriding of this composition graded thin film was then performed and the magnetic properties at different positions of the film were measured using magneto-optical Kerr effect hysteresis and SQUID-VSM. A high saturation magnetization of 1.4 T with a strong uniaxial magneto-crystalline anisotropy is achieved, showing that this system has potential as a future permanent magnetic material.

### Reference

- 1) K. Binnemans, J. Sustain.Metall., 4, 126-146, 2018
- 2) Y.K. Takahashi, H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo, Sci. Technol. Adv. Mater. 22 (2021) 449–460.
- 3) S. Sato, K. Nishikawa, E. Node, S. Okada, Jal com, 929 (2022)167280.

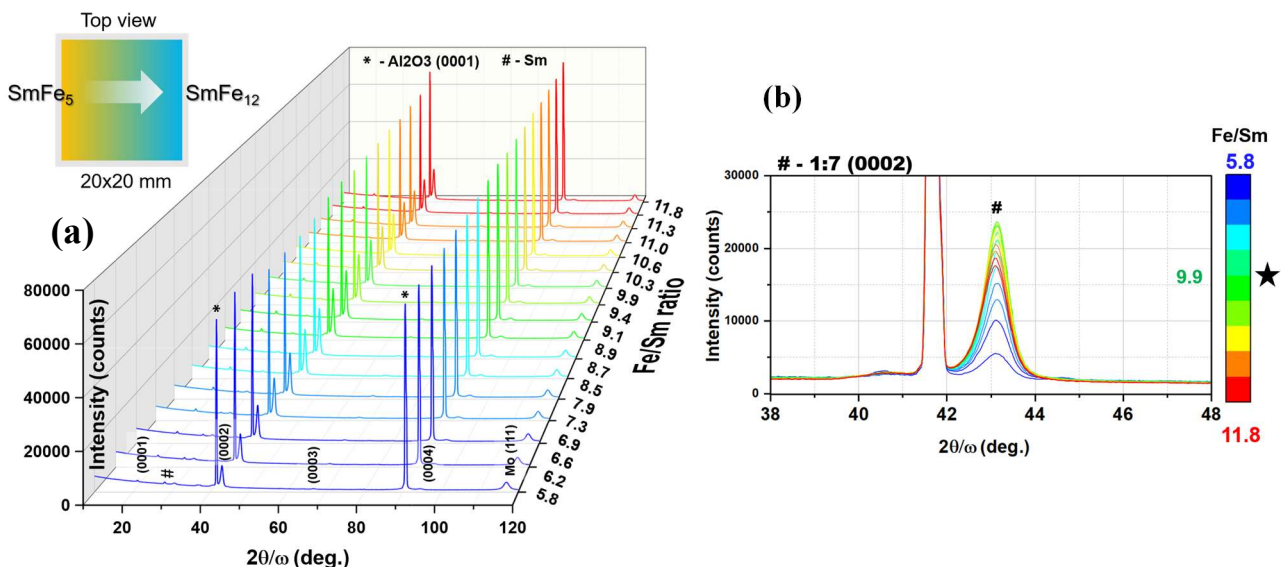


Fig 1. (a) XRD of combinatorial thin film with varying Fe:Sm ratio from 5.8 to 11.8 (b) The intensity variation of the TbCu<sub>7</sub>-type (0002) peak.

# 高磁化・高磁気異方性を有する正方晶逆ホイスラー合金の探索

喬 子建<sup>1,2</sup>, 辻川 雅人<sup>2</sup>, 白井 正文<sup>2,3</sup>

(<sup>1</sup> 東北大学 大学院工学研究科, <sup>2</sup> 東北大学 電気通信研究所, <sup>3</sup> 東北大学 CSIS)

An exploration of tetragonal inverse Heusler alloys with high magnetization and high magnetic anisotropy

Zi-Jian Qiao<sup>1,2</sup>, M. Tsujikawa<sup>2</sup>, M. Shirai<sup>2,3</sup>

(<sup>1</sup> Grad. Sch. of Eng., Tohoku Univ., <sup>2</sup> RIEC, Tohoku Univ., <sup>3</sup> CSIS, Tohoku Univ.)

## はじめに

正方晶ホイスラー合金  $X_2YZ$  は、高結晶磁気異方性( $K_u$ )により、レアアースフリー永久磁石の候補として期待されているが、その多くがフェリ磁性を示し、飽和磁化( $M_s$ )が小さいことが問題である。本研究では、高  $K_u$  を有する代表的な正方晶逆ホイスラー合金  $XA-Mn_{2+x}Fe_{1+y}Z_{1-x-y}$  ( $Z$ : 典型元素) を対象として、合金組成が  $M_s$  に及ぼす影響を、ベイズ最適化と第一原理計算手法を組合せて明らかにした。また、 $Z$  原子の一部を原子半径の大きい典型元素で置換することで、格子拡張により高  $K_u$  と高  $M_s$  が両立した四元ホイスラー合金を理論的に探索した。

## 計算方法

ベイズ推定では、説明変数を合金組成( $x, y$ )とし、目的変数を  $M_s$  または  $K_u$  と定義した。ガウス過程回帰モデルは GPy フレームワーク [1] を用いて作成した。不規則合金の計算には、Special Quasi-random Structure (SQS) 法 [2, 3] を用いて、スーパーセル内の疑似的な原子配置を考慮した。構造緩和と電子状態計算には第一原理計算コード VASP [4] を用いた。

## 計算結果

Fig. 1 には、正方晶  $XA-Mn_{2+x}Fe_{1+y}Ga_{1-x-y}$  合金の  $M_s$  に対する計算結果を示している。 $x$  と  $y$  の刻みが 0.0625 で、64 個の原子を含むスーパーセルに対して計算を実行した。結果として、Mn と Fe 濃度の増加に伴い、 $M_s$  も増大することがわかった。しかし、ある濃度を超えると、Mn 原子と逆向きスピンの持つ Fe 原子が Ga サイトを占め、 $M_s$  はまた減少する。ここで考慮した形成可能な 136 種の組成から、ベイズ推定の結果により、 $Mn_{2.4375}FeGa_{0.5625}$  の  $M_s$  が最大の  $1.235\mu_B \cdot f.u.^{-1}$  に達して、

$XA-Mn_2FeGa$  に対する計算値  $0.821\mu_B \cdot f.u.^{-1}$  と比べて  $M_s$  の増大が見られた。また、正方晶  $Mn_{2.4375}FeGa_{0.5625}$  の立方晶との形成エネルギー差は  $-0.304eV \cdot f.u.^{-1}$  と計算された。一方、 $K_u$  は  $2.242 MJ/m^3$  と計算され、正方晶  $Fe_{1.5}Mn_{1.0}Ga_{1.5}$  合金に対する理論予測値 [5] と同程度の値が得られた。

講演では、Ga 以外の典型元素を含む正方晶逆ホイスラー合金に対する探索結果についても報告する。

## 謝 辞

本研究は、JST 次世代研究者挑戦的研究プログラム JPMJSP2114 の支援を受けたものである。

## 参考文献

- [1] SheffieldML, GPy: a Gaussian processes framework in python, <http://sheffieldml.github.io/GPy/>
- [2] A. Zunger, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **65**, 353 (1990).
- [3] A. Van de Walle, *et al.*, CALPHAD, **42**, 13-18 (2013).
- [4] G. Kresse and J. Furthmüller, Phys. Rev. B **54**, 11169 (1996).
- [5] M. Tsujikawa, Y. Mitsuhashi, and M. Shirai, Jpn. J. Appl. Phys. **59**, 055506 (2020).

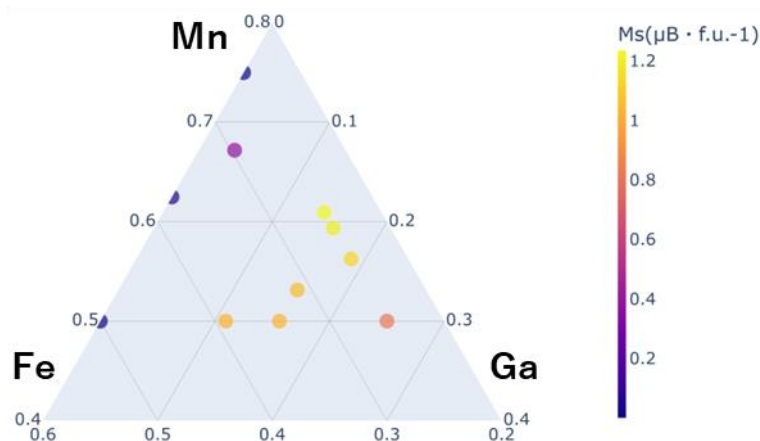


Fig. 1. (Color online) Magnetization of the tetragonal  $XA-Mn_{2+x}Fe_{1+y}Ga_{1-x-y}$  alloys

## 軟磁性薄帯材料の時間分解ベクトル磁区観察

小笠原 剛、田丸 慎吾、岡本 聡\*

(産業技術総合研究所、\*東北大学)

Time-resolved vector domain observation of soft magnetic ribbons

Takeshi Ogasawara, Shingo Tamaru, Satoshi Okamoto\*

(AIST, \*Tohoku Univ.)

電源回路やモーターの性能向上のために、軟磁性材料の低損失化・高速化が求められている。ベクトル場としての磁区の運動は磁化の応答や損失の発生に直接関係しているため、これを観察することは材料やデバイスの開発においても重要であるが、これまで技術的な困難から動的なベクトル磁区観察はあまりおこなわれてこなかった。今回、磁気光学顕微鏡にパルス半導体レーザー光源を組み合わせることによって、ベクトル磁区の運動を比較的容易に観察可能となったので報告する。

本研究で用いた磁気光学顕微鏡は独自開発の技術により、従来より高空間分解能であり、磁化をベクトル観察可能となっている[1]。時間分解観察にはストロボスコープ法を用い、光源としてパルス半導体レーザーを用いることにより繰返しとパルス幅を任意に設定可能となり、dc から 10 GHz 程度までの広い帯域での測定が可能となっている[2]。試料は、アモルファスおよびナノ結晶磁性体の薄帯を幅 1~2 mm、長さ 10~15 mm 程度の概長形状に切り出したものを用い、プリント基板上に接着固定したうえで両側に励磁用と磁化検出用のコイルをそれぞれ 16 ターン巻いた (Fig. 1)。交流磁場は 100 - 100 kHz の範囲で測定を行った。

Fig. 2 にアモルファス薄帯試料を 10 kHz, 500 mA (peak) で励磁した際の磁区の変化を示す。画像中の矢印は面内の磁化方向を表し、右上のプロットは磁化曲線上の対応する位置を示す。磁壁の移動により磁化が反転する様子が明瞭に観察されている。また、試料表面のキズや凹みの周辺で磁壁の運動が制限され、性能低下の原因となっていることもわかる。このほか、周波数を上げると磁区の細分化が発生する様子や、ナノ結晶薄帯では主に磁化回転によって磁化の変化が起こる様子などが観察された。

本手法は、大型の設備等の必要がなく、通常の実験室において簡便に測定が可能であり、軟磁性材料やデバイスの開発において強力な評価手法となると考えられる。

本研究は、文部科学省「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」および「データ創出・活用型マテリアル研究開発プロジェクト事業」の助成により行われた。

[1] Takeshi Ogasawara, *Jpn. J. Appl. Phys.* **56** 108002 (2017).

[2] Takeshi Ogasawara and Akinobu Yamaguchi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **61** 018001 (2022).

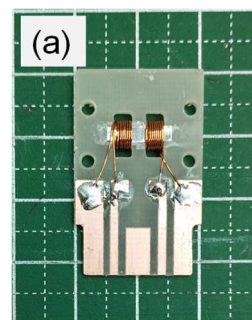


Fig. 1: Image of sample.

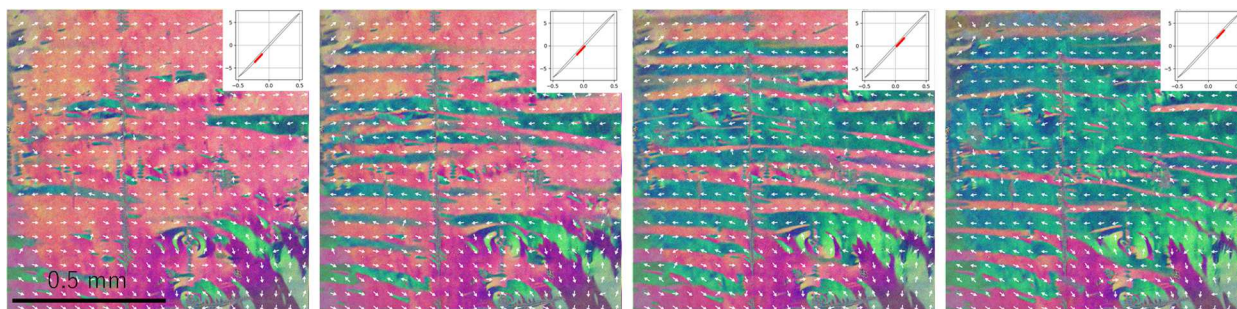


Fig. 2: Magnetic domain motion in an amorphous ribbon excited by a 10 kHz AC magnetic field.

# 16 bit 偏光カメラを用いた偏光角検出による磁区観察

目黒 栄、齊藤 伸  
(ネオアーク株式会社、東北大)

Magnetic Domain Observation by Polarization Angle Detection Using a 16-bit Polarization Camera

Sakae Meguro, Shin Saito  
(NEOARK Corp., Tohoku University)

## はじめに

磁気光学 Kerr 効果を用いた磁区観察では輝度分解能の低いカメラでもコントラストの良い磁区像が得られることからクロスニコルに近い偏光子/検光子配置で観察が行われてきた<sup>1)</sup>。しかしながら光の利用効率が低い、光源の光量変動の影響が大きいという難点があった。そこで我々はカメラのアナログビデオ信号を差動増幅する偏光差動方式を開発した<sup>2)</sup>。さらに特定の条件下では偏光差動方式の直交偏光像から偏光角検出可能なことに着目し 16 bit 輝度分解能の偏光カメラを開発し、偏光角検出による高品位磁区像の取得に成功したので報告する。

## 偏光カメラの原理

Fig. 1 に入射光として方位 0°の直線偏光を入射した場合の偏光子角度に対する偏光子透過光強度を示す。偏光子角度 0°、45°、90°、135°の透過光強度をそれぞれ  $I_0$ 、 $I_{45}$ 、 $I_{90}$ 、 $I_{135}$  とするとストークスパラメータは  $S_0 = I_0 + I_{90} = I_{45} + I_{135}$ 、 $S_1 = I_0 - I_{90}$ 、 $S_2 = I_{45} - I_{135}$  と表され、偏光角  $\theta$  は  $\theta = \tan^{-1}(S_2/S_1)$  と表される。 $I_{90}$  はほぼ 0 となるため、 $S_1 \approx I_0$  であり  $S_0 = I_0 + I_{90} = I_{45} + I_{135}$  から  $S_1 \approx I_{45} + I_{135}$  となる。したがって、偏光子角度 45°、135°の 2 つの偏光像から偏光角を求めることが可能である。偏光角分解能は輝度分解能 12 bit の場合 0.024°、16 bit の場合 0.0015°となる。16 bit の場合の偏光角誤差は  $\pm 4^\circ$  の範囲で 1%以内となる。

## 実験結果

Fig. 2 に開発した 16 bit 偏光カメラの構成を示す。結像レンズの出射光を PBS で直交した偏光に分離し 2 台のカメラにそれぞれ結像させることにより直交偏光像を得る。得られた偏光像からストークスパラメータを演算し偏光角を得る。Fig. 3 に市販の偏光カメラと開発した 16 bit 偏光カメラを用いた GdFeCo 薄膜の磁区像(a)、(b)と輝度ヒストグラム(c)、(d)を示す。市販の偏光カメラは 12 bit で  $2 \times 2$  画素に 0°、45°、90°、135°の偏光子を集積しており  $2 \times 2$  画素単位の演算で空間分解能が低下し、12 bit 輝度分解能に起因して輝度分散が大きくなっているのに対し、開発した 16 bit 偏光カメラでは 1 画素単位で演算しており空間分解能が損なわれることなく輝度分散の小さい高品位な磁区像が得られていることがわかる。

## まとめ

直交 2 方向の偏光像のみで偏光角を検出する 16 bit 偏光カメラを開発し、偏光角検出による高品位磁区像を得た。今後は曲面の磁区観察に応用する予定である。

## 参考文献

- 1) S. Meguro and K. Akahane, S. Saito, M. Naka, and M. Takahashi: Ann. Conf. Magn. Soc. Jpn., 24aF-9, (2004).
- 2) S. Meguro and S. Saito, Ann. Conf. Magn. Soc. Jpn., 6pc-3 (2016)

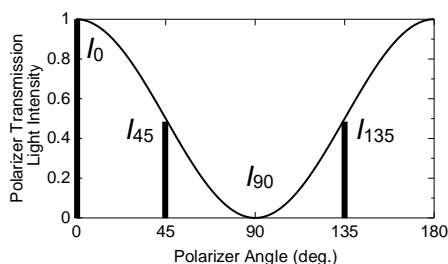


Fig.1 Relationship between polarizer angle and amount of transmitted light for 0-degree linear polarization incident light.

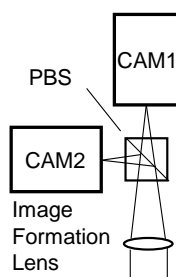


Fig.2 Schematic of 16-bit polarization camera.

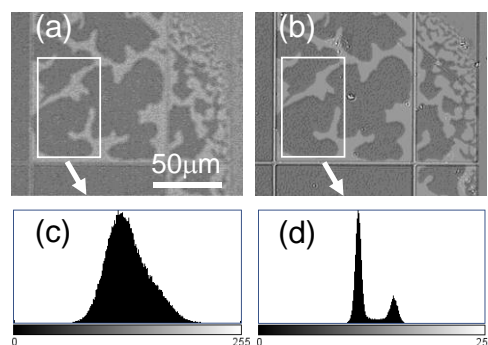


Fig.3 Magnetic domain image and brightness histogram of GdFeCo thin film by polarization camera. (a) and (b) magnetic domain images and (c) and (d) luminance histograms from a commercial polarization camera and a 16-bit polarization camera, respectively.

# 狭ピッチ磁壁移動型空間光変調器の開発と駆動率改善

川那真弓、東田諒、青島賢一、船橋信彦

Improvement of complete domain expansion ratio for spatial light modulator driven by current-induced domain wall motion

M. Kawana, R. Higashida, K. Aoshima, N. Funabashi

(NHK Science & Technology Research Labs.)

## はじめに

広視域な電子ホログラフィーの実現に向けて、電流誘起磁壁移動と磁気光学カー効果を組み合わせた磁壁移動型空間光変調器 (SLM : Spatial Light Modulator) の研究を進めている<sup>1)</sup>。これまでに、アクティブマトリクス駆動方式を用いて、10k×5k画素 (画素ピッチ : 水平 1 μm、垂直 4 μm) の光変調磁壁素子を全面駆動し、水平視域 30° のホログラフィー表示と再生像の書き換えを実現した<sup>2)</sup>。この SLM は、電流印加方向で磁壁の移動方向を制御できるが、一方向の磁壁駆動と磁界消去により書き換えていた。今回、ごく微小なアシスト磁界を利用することによって素子の駆動率を改善し、両方向の磁壁駆動による 2D パターン表示書き換えを実現したので報告する。

## 実験方法および結果

試作した SLM の模式図と磁壁光変調素子の拡大図を図 1 に示す。光変調層 (Gd-Fe) とその両端に埋め込まれた磁化固定層 (NM : Co/Pd 多層膜) で画素が構成され、2つの NM は異なる長さで設計して保磁力差を設けた<sup>1)</sup>。NM1 と NM2 を反平行磁化状態にした後に、NM1 からの漏れ磁界によって光変調層の NM1 端部に初期磁区 (磁壁) を生成した。この状態で、画素選択トランジスターに電圧 (3V) 印加することで、磁壁素子へパルス電流を供給し、NM1 側の磁壁を駆動した。トランジスターの特性上、磁壁が NM1→NM2 移動する場合 (順方向) と、逆方向では供給可能な電流量が異なり、3V 印加時には NM1、NM2 側の磁壁にはそれぞれ約 1.2 mA、0.8 mA の電流が印加される。電流パルスを印加して、磁壁素子の駆動率 (1,200 画素中、初期磁壁位置から反対側の磁壁位置まで駆動した割合) を調べた結果、順方向の磁壁は電流パルス長 0.1 ms で約 80% の駆動率が得られるのに対し、逆方向は電流パルス長を 100 ms とした場合でも約 50% であった。逆方向の駆動率が低い原因は電流不足と考えられるため、NM2 側の磁壁移動をアシストする磁化方向 (磁化上向き) にごく微小な磁界を印加することを検討した。図 2 に電流パルス長 100 ms の条件でアシスト磁界を変えた場合の順方向と逆方向の駆動率を示す。アシスト磁界を増加すると、順方向の駆動率は減少するが、逆方向の駆動率は大幅に増加した。アシスト磁界を 12 Oe 印加した場合には、順方向/逆方向ともに 70% 程度の素子が駆動できた。図 3 に、上向きのアシスト磁界 12 Oe を印加しながら 80,000 画素分を電流駆動した後の偏光顕微鏡による磁気光学像を示す。順方向 (1) で“NHK” (図中白表示) が表示でき、逆方向 (2) においても“20×20 格子パターン” (黒) を表示できた。微弱なアシスト磁界を用いて駆動率を改善することで、電流誘起磁壁駆動 (両方向) による 2D パターン表示の書き換えが可能であることを確認した。

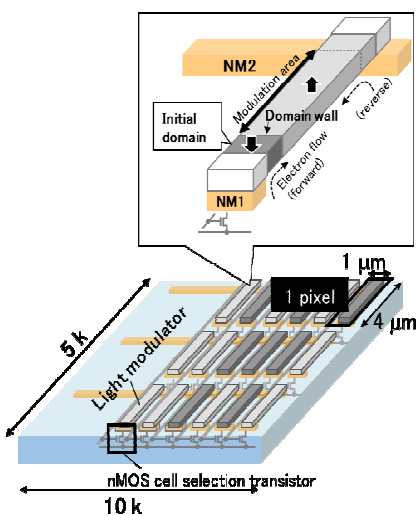


Fig. 1 MOSLM (10k x 5k) with pixel pitch of 1 μm and schematic illustration of light modulator.

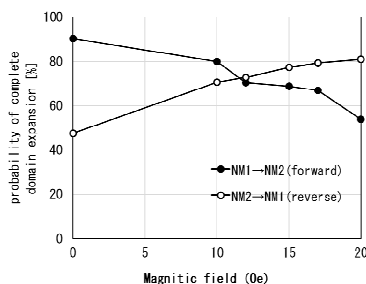


Fig. 2 Probability of complete domain expansion versus magnetic field.

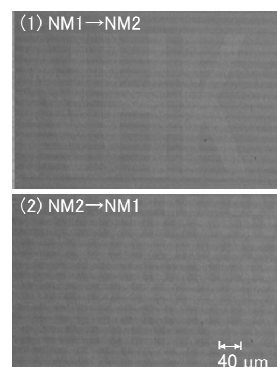


Fig. 3 Magneto-optical micrograph of the SLM device after writing data for 500 × 160 pixels.

## 参考文献

- 1) R. Higashida et al., Jpn. J. Appl. Phys. 59, 053001 (2020).
- 2) K. Aoshima, et al., Optics Express 31 (13), 21330-21339 (2023)

## GSR センサ用磁性アモルファスワイヤの磁区構造

常藤 颯太, 竹澤 昌晃, 本蔵 義信, 本蔵 晋平  
(九工大, \*マグネデザイン)

Magnetic domain structure of amorphous magnetic wires for GSR sensors

S. Tsuneto, M. Takezawa, Y. Honkura\*, S. Honkura\*  
(Kyushu Inst. Tech., \*Magnedesign Co.)

### はじめに

高感度マイクロ磁気センサである GSR センサのコアには、直径が  $10\ \mu\text{m}$  程度の磁性アモルファスワイヤが用いられている。GSR センサのノイズの発生原因を明らかにするためにはワイヤの磁区観察が有効であると考えられるが、直径  $10\ \mu\text{m}$  程度の細いワイヤの磁区観察例はほとんどない<sup>2)</sup>。そこで本研究では、GSR センサの磁気ノイズの発生原因を解明することを目的として、直径  $10\ \mu\text{m}$  の Co-Fe 基磁性アモルファスワイヤの磁区観察を行った。

### 実験方法

磁性アモルファスワイヤの磁区観察は、Kerr 効果顕微鏡を用いて行った。観察面を鏡面状態にするために、エポキシ樹脂にワイヤを埋め込み研磨した。最も深く研磨した箇所での研磨深さは  $2.8\ \mu\text{m}$  程度であった。作製した試料にヘルムホルツコイルを用いて  $\pm 15\ \text{Oe}$  の外部磁界を印加した際の、ワイヤ研磨断面の磁区構造の変化を観察した。

### 実験結果

Fig. 1 に研磨深さ  $1.7\ \mu\text{m}$  の視野において、外部磁界を印加した際の磁区観察結果を示す。図中で明暗の磁区コントラストはワイヤ半径方向の磁化成分を示している。残留磁化状態において半径方向に交互に磁化するバンブー状の磁区構造が確認できる。このバンブー状磁区構造は、正方向に磁界を印加すると消失して磁気飽和に至る。負方向に磁界を印加すると、 $-6\ \text{Oe}$  から  $-12\ \text{Oe}$  の間で不規則で急激な磁区模様の変化が起こっていることが確認できる。

Fig. 2 は研磨深さ  $2.8\ \mu\text{m}$  の視野における磁区観察結果である。残留磁化状態ではワイヤ半径方向の一方向に磁化しており、バンブー状磁区構造は確認できない。負方向に磁界を印加すると、 $-5\ \text{Oe}$  から  $-6\ \text{Oe}$  にかけて磁区コントラストが反転していることが確認できる。

これらの低磁場における急激な磁化の変化が、GSR センサに発生する磁気ノイズの原因の一つだと考えられる。今後は、ワイヤに電流を通電した状態での磁区構造変化の観察を行うことで、GSR センサ駆動時のワイヤの磁化過程の知見を得る必要がある。

### 参考文献

- 1) Y. Honkura, and S. Honkura, *J. Magn. Magn. Mater.*, **513**, 167240 (2020)..
- 2) K. Richter, O. Vahovsky, and R. Varga, *IEEE Trans. Magn.*, **58**(2), #6500505 (2022)..

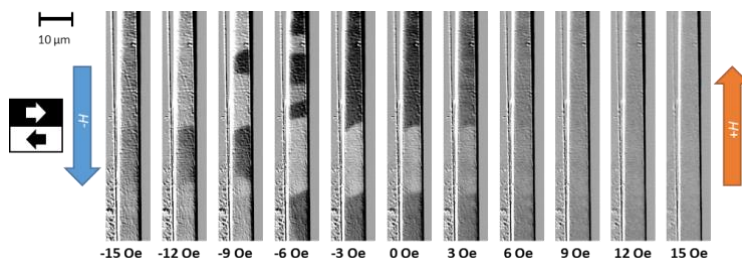


Fig.1 Magnetic domain images at polishing depth of  $1.7\ \mu\text{m}$ .

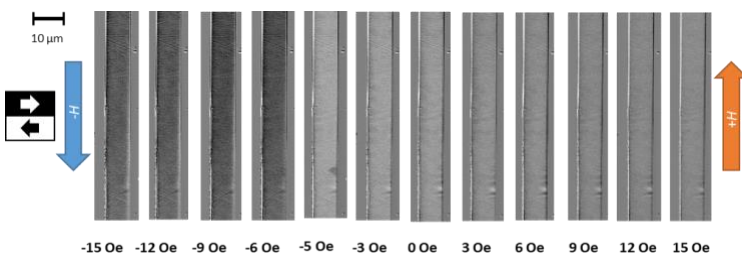


Fig.2 Magnetic domain images at polishing depth of  $2.8\ \mu\text{m}$ .

# 偏光カメラを用いた縦 Kerr 像と横 Kerr 像の同時測定

石橋隆幸<sup>1</sup>、若松逸雄<sup>2</sup>、谷山智康<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>長岡技科大、<sup>2</sup>名古屋大)

Simultaneous measurement of longitudinal and transverse Kerr images using polarization camera

Takayuki Ishibashi<sup>1</sup>, Itsuo Wakamatsu<sup>2</sup> and Tomoyasu Taniyama<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Nagaoka Univ. Tech., <sup>2</sup>Nagoya Univ.)

## はじめに

磁気光学 Kerr 効果を利用した面内方向に磁化した磁性体の磁区観察には、縦 Kerr 配置もしくは横 Kerr 配置が用いられる。面内磁化膜の場合、一般に縦 S 偏光の光を用いて Kerr 配置を用いることが多い。その場合、入射偏光面と平行な方向の磁区に対してのコントラストが得られる。そのため、入射偏光面に垂直な方向の磁区のコントラストを得るためには、光の入射方向を 90° 変えて測定した画像と合わせて評価する必要があるため、光学系が複雑になる。一方、p 偏光の光を入射して縦 Kerr 測定をすると、縦 Kerr 効果による信号に入射偏光面と平行な磁区による横 Kerr 効果による信号が重畳してしまう。もし、この両方を同時に測定できれば、面内磁化のベクトル情報を一回の測定で取得できる。本発表では、偏光カメラを用いた縦カー効果と横カー効果の磁気光学像の同時測定について報告する。

## 実験方法

縦 Kerr 顕微鏡を光学定盤上に構築し、実験を行った。光源に波長 630 nm の LED (CCS 製 HLV3-22RD-4C)、対物レンズに NIKON LU Plan Fluor 50× (NA0.8) を用いた。磁場は電磁石を用いて試料面内方向に印加した。画像の取得には、偏光カメラ (Baumer, VCXU-50MP) を用いた。試料には、Si 基板上に作製した Co 薄膜の周期パターン (大きさ: 45 μm × 45 μm、周期: 50 μm) を用いた。偏光カメラにより偏光面の角度が 0°、45°、90°、135° のときの光強度 ( $I_{0^\circ}$ 、 $I_{45^\circ}$ 、 $I_{90^\circ}$ 、 $I_{135^\circ}$ ) を同時に計測し、4 種類の偏光像を 1 回の測定で計測した。そして、測定された各偏光像の光強度から全光強度  $I$  と回転角  $\theta_K$  を次式により計算した。

$$I = \frac{1}{2}(I_{0^\circ} + I_{45^\circ} - I_{90^\circ} + I_{135^\circ}) \quad (1)$$

$$\theta_K = \frac{1}{2} \tan^{-1} \left( \frac{I_{45^\circ} - I_{135^\circ}}{I_{0^\circ} - I_{90^\circ}} \right) \quad (2)$$

さらに、得られた光強度および回転角の値から磁化飽和状態で計測した値をバックグラウンドとして差し引いた。

## 結果および考察

Fig.1、Fig.2 に P 偏光および S 偏光の光を入射して計測した Co パターン膜の回転角像と光強度像を示す。入射光の偏光状態が P 偏光、S 偏光のどちらの場合でも、回転角の値をプロットすることによって、縦 Kerr の画像が得られる。実際に、Fig.1(a)、2(a) の両方で筋状の磁区構造が観察された。一方、横 Kerr の信号は、P 偏光入射のときに光強度の変化として計測され、S 偏光入射の場合には観察されないはずである。測定された光強度像を見ても、P 偏光では磁区構造が観察される (Fig.1(b)) が、S 偏光では観察されず (Fig.2(b))、予想通りの結果が得られていることがわかる。以上の結果から、偏光カメラを用いることによって縦 Kerr 効果と横 Kerr 効果の両方の信号を同時に取得することができることが実験的に示された。本手法は、面内磁化のベクトル情報の取得に応用可能である。

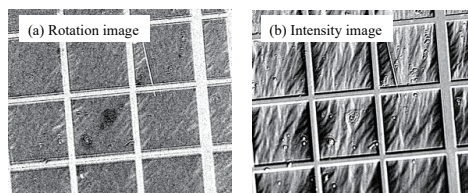


Fig.1 (a) Rotation image and (b) intensity image measured with P-polarized light.

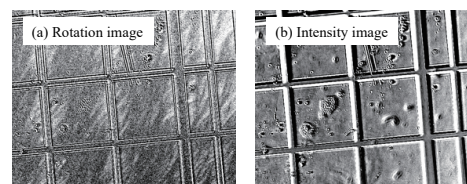


Fig.2 (a) Rotation image and (b) intensity image measured with S-polarized light.



# 磁気光学回折型ディープニューラルネットワークデバイスの開発

石橋 隆幸<sup>1</sup>, 坂口 穂貴<sup>1</sup>, 藤田 拓実<sup>1</sup>, 張 健<sup>1</sup>, F.Z.Chafi<sup>1</sup>, 野中 尋史<sup>2</sup>, 鷺見 聡<sup>3</sup>, 栗野 博之<sup>3</sup>  
(<sup>1</sup>長岡技科大, <sup>2</sup>愛知工大, <sup>3</sup>豊田工大)

Development of magneto-optical diffractive deep neural network device

T. Ishibashi<sup>1</sup>, H. Sakaguchi<sup>1</sup>, T. Fujita<sup>1</sup>, J. Zhang<sup>1</sup>, S. Sumi<sup>2</sup>, H. Awano<sup>2</sup>, H. Nonaka<sup>3</sup>

(<sup>1</sup>Nagaoka Univ. of Tech., <sup>2</sup>Aichi Inst. of Tech., <sup>3</sup>Toyota Tech. Inst.)

## はじめに

近年、Deep Neural Network (DNN)は、パターン認識、言語処理、天気予報、タンパク質の立体構造予測まで、様々な分野で応用されている。しかし、それらの計算に必要な膨大な消費電力が問題となっている。そのため、低消費電力でDNNの計算を実行できる物理デバイスの実現が切望されている。我々は、可視光で動作し、現行のイメージングデバイスとの融合が可能な、磁気光学回折型ディープニューラルネットワーク (Magneto-optical Diffractive Deep Neural Network : MO-D<sup>2</sup>NN) を提案した<sup>1)</sup> (Fig.1)。本発表では、MO-D<sup>2</sup>NNの理論計算と実験の進捗状況<sup>2)</sup>について報告する。

## 実験方法

MO-D<sup>2</sup>NNは、複数枚の隠れ層を磁区パターンで表現する (Fig.1)。波長633 nmの直線偏光の光を入射光とし、1 μmの磁区を100×100並べた隠れ層を5層としたモデルを構築し、MNISTの手書き数字データセットに対する分類について計算を行った。実験では、ビスマス置換磁性ガーネット膜を用いて二層隠れ層を作製した。計算で求めた磁区パターンをビスマス置換磁性ガーネット膜上に光磁気記録技術を用いて記録した。MNISTのデータセットから抜粋した手書き数字のフォトマスクを作製し、透過光を入力信号として用いた。出力信号は、偏光カメラを用いて計測した。

## 実験結果

隠れ層に用いる磁性体のファラデー回転角 $\theta_F$ を変化させ、出力信号を偏光面の回転角として学習させたときのテスト画像に対する分類精度を Fig. 2 に示す。 $\theta_F$ が $\pi/1000$  radで55%以上、 $\pi/100$  radでは80%以上となり、小さな $\theta_F$ でも高い正解率が得られることがわかった。次に、シミュレーションで決定した磁区パターンをビスマス置換磁性ガーネット膜に書き込んだ例を Fig.3 に示す。100 μm×100 μmの領域にほぼ設計通りに磁区を書き込めていることがわかる。詳細は当日報告する。

謝辞：本研究の一部はJSPS 科研費 JP23H04803の助成を受けたものである。

## 参考文献

- 1) T. Fujita *et al.* Optical Express 30, 36889 (2022).
- 2) H. Sakaguchi *et al.* IEEE Trans. Magn. (2023). DOI 10.1109/TMAG.2023.3281842.

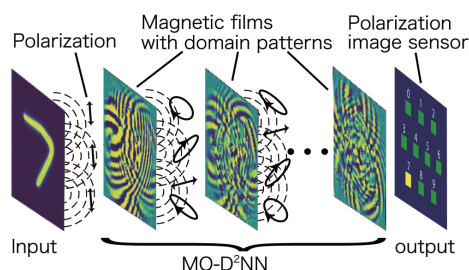


Fig. 1 A schematic drawing of MO-D<sup>2</sup>NN.

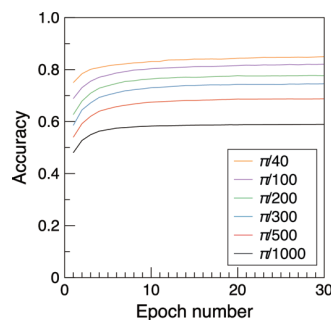


Fig.2 Accuracies of handwritten digits recognition by MO-D<sup>2</sup>NN trained for output signals of rotation angle of polarization plane.

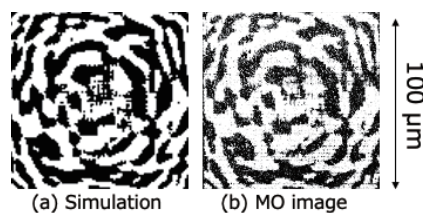


Fig. 3 Magnetic domain patterns for (a) a hidden layer obtained by a simulation and (b) MO image of magnetic domain pattern recorded in a Bi-substituted iron garnet film.

## 磁性材料/磁気デバイスの中性子透過分光イメージング

間宮 広明<sup>1\*</sup>, 大場 洋次郎<sup>2</sup>, 寺田 典樹<sup>1</sup>, 廣井 孝介<sup>3</sup>, 篠原 武尚<sup>3</sup>  
 (<sup>1</sup>NIMS, <sup>2</sup>豊橋技科大, <sup>3</sup>原研)

Neutron transmission imaging on magnetic materials/devices

Hiroaki Mamiya<sup>1\*</sup>, Yojiro Oba<sup>2</sup>, Noriki Terada<sup>1</sup>, Kosuke Hiroi<sup>3</sup>, Takenao Shinohara<sup>3</sup>  
 (<sup>1</sup>NIMS, <sup>2</sup>Toyohashi Univ. Tech., <sup>3</sup>JAEA)

近世の羅針盤, 近代工業社会を支えた発電機・モーター, 現代情報社会の基盤となった磁気記録は, 天然磁石, 人工合成バルク磁石, 微細に製造された磁石と違いはあっても, いずれも全てのスピンの向きが同じ方向に揃った単純な強磁性体であり, 全体の平均磁化を測るだけで評価できた. 一方, 磁性物理学の対象はスピンの複雑な配列構造の不思議な振舞に移り, 原子炉や加速器を用いた中性子回折法を利用した学理の解明が進んできた. そして, 最近, その成果をもとに, そういった複雑なスピン配列の特異な振舞を材料の機能として活用する試みが盛んとなった. しかし, この場合, 従来のように平均磁化を測ったり, デバイスの表面から漏れ磁場を測ったりするだけでは設計の検証には不十分である. そこで, 本研究では, 内部スピン配列の非破壊イメージングという新たなニーズに応える評価法として中性子透過分光法に注目し, 実際の材料・デバイスをモデルにした実証実験により, その有効性を確認した.

これまで複雑な磁性体の基礎研究を担ってきた中性子回折法では波長と回折角を測る. このため, デバイス等の全面に中性子を入射すれば, 異なる箇所異なる回折角に散乱した中性子が検出器の同じ場所に到達する. 一方, 回折が生じれば同時にその波長で透過強度が減少するが, この透過スペクトルでは, 進路上で起きた回折が重畳して減ることはあっても, 異なる波長で起きた回折が重なることはない. そこで, J-PARC のパルス中性子イメージング装置螺鈿を用いて, 巻きコア形成/歪取り熱処理後の電磁鋼板コアや, 磁気回路の炭素鋼ヨーク部, マンガン亜鉛フェライトリングコアに巻き線を行ったトロイダルインダクタなどの結晶/スピン状態イメージングを行った. その結果, 電磁鋼板コアの仕上げ後の結晶方位マップや炭素鋼ヨーク部の集合組織/磁化状態 (Fig. 1), 銅線コイル内部のトロイダルコア中のフェライトのマクロ磁化/フェリ磁性状態マップ (Fig. 2) などの情報が非破壊で得られた. 以上のような実験結果から, 残された課題は多いものの磁気デバイスの中性子透過分光イメージングは, 複雑なスピン配列/磁化状態をマルチスケールで持つ磁性材料/磁気デバイスを評価するうえで有望であると考えられた.

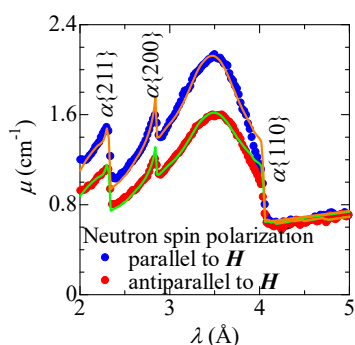


Fig. 1. Attenuation coefficient for polarized neutron through the ultra-fine-grained carbon steel [1].

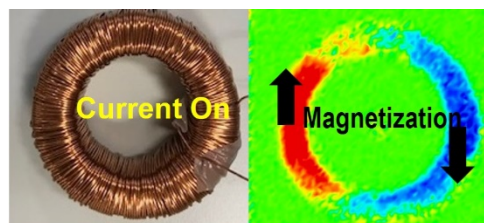


Fig. 2. Contour map of the difference in transmission between upward and downward polarized neutron for an operating ferrite inductor [2].

### 参考文献

- 1) H. Mamiya *et al.*, IEEE Trans. Magn. Submitted.
- 2) H. Mamiya *et al.*, Sci. Rep. 13, 9184 (2023)

## 磁性薄帯における磁気ひずみ周波数特性の評価

森 修, 佐藤茂行, 内海 良一, 遠藤 恭\*

(東栄科学産業, \*東北大学)

Frequency response of magnetostriction in Magnetics Alloy Ribbons

O. Mori, S. Sato, R. Utsumi, Y. Endo\*

(Toei Scientific Industrial co., Ltd, \*Tohoku University)

**はじめに** 従来、磁性合金薄帯の磁気ひずみ評価には容量変化法やひずみゲージといった評価法が幅広く利用されている。これらの評価法は薄帯に電磁気的な変化を誘導して機械的な変化を引き起こし、物理的な変化を検出することによって磁気ひずみ定数を算出する簡便な方法である<sup>1)</sup>。その一方で、薄帯を何枚も重ねた試料の作製や試料サイズを大きくする必要があるなどの欠点も抱えている。これに対して我々は磁性合金薄帯に異なる応力を付与し、そのときのインダクタンスの外部磁界依存性（電磁気的変化）をコイルにより検出することによって薄帯の磁気ひずみを評価することのできる新たな方法を検証し、報告した<sup>2)</sup>。また、この評価方法は任意の測定周波数にて磁気ひずみの測定が可能であり、磁化ダイナミクスと磁気ひずみの関係性について検証できると考えている。本研究では、この磁性薄帯用磁気ひずみ評価法を用いて市販の Fe 系アモルファス薄帯 2605SA1（日立金属）の磁気ひずみの周波数依存性を評価した。

**実験方法** Fig.1 は、本実験における測定システム図である。本評価法では、幅 8 mm の細長い薄帯の中央部を検出コイル内部に挿入して薄帯の両端を治具で固定した状態で電磁石のギャップ部に設置する。固定した薄帯両端のうち一端にフォースゲージを取り付けて薄帯の長手方向に引張応力を付与する。このとき、薄帯内部の異方性磁界が変化する。したがって、薄帯に一定の応力 ( $\sigma_{//}$ ) を付与しながら薄帯幅方向に 0~300 mT の直流磁界 ( $H_{dc}$ ) を印加し、薄帯が挿入された検出コイルのインダクタンス ( $L$ ) を LCR メータにより測定する。得られたインダクタンスの逆数 ( $1/(L-L_0)$ ) ( $L_0$ : 空心コイルのインダクタンス) と  $H_{dc}$  との関係、300 g~700 g の応力に対してまとめる。得られた結果をもとにして、同じ  $1/(L-L_0)$  値において、 $H_{dc}$  の応力の違いによる変化量 ( $\Delta H = H_{dc1} - H_{dc2}$ ) を導出し、 $\Delta H = 3 \lambda_s (\sigma_{//1} - \sigma_{//2}) / M$  ( $M$ : 薄帯の磁化) (\*) にあてはめて薄帯の磁気ひずみ ( $\lambda_s$ ) を算出する。この測定方法で検出コイルの測定周波数を 1kHz~1MHz まで変化させ、磁気ひずみ ( $\lambda_s$ ) の周波数依存性を確認した。

**実験結果** Fig.2 は Fe 系アモルファス薄帯における磁気ひずみの測定周波数依存性を測定したものである。測定周波数の増加にともない、 $\lambda_s$  が増加していることが分かる。周波数 1kHz では  $\lambda_s$  は 27.7ppm であり、公称値の 27.0ppm と同等の値が得られた。周波数が 1MHz まで増加すると  $\lambda_s$  は 30.7ppm となり、およそ 10% 増加している。周波数が高くなるにつれて磁気ひずみが増加する傾向は、磁性材の鉄損の周波数特性と合致する。今後は磁気ひずみと鉄損の関係の妥当性について検討していく予定である。

### 参考文献

- 1) 荒井賢一, 津屋昇, 日本応用磁気学会 2, 5 (1978).
- 2) 遠藤恭, 島田寛, 森修, 佐藤茂行, 内海良一, 第 44 回日本応用磁気学会学術講演、14aD-5.

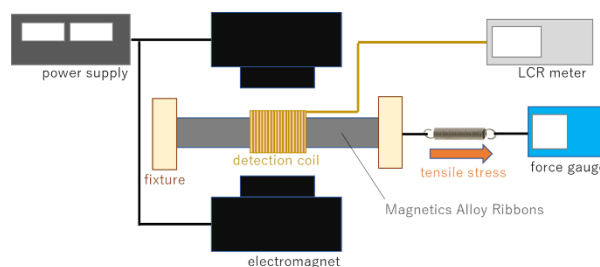


Fig.1 Measurement system for magnetostriction

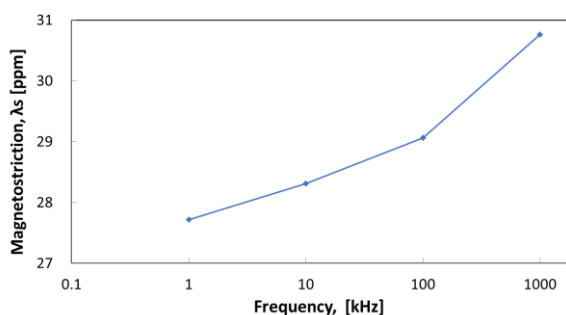


Fig.2 Frequency response of magnetostriction

## STT-MRAM 向け垂直磁気異方性膜の独創的磁気光学計測装置

小澤 謙、鈴木健司、上山真司、Jinseob Kim\*, Wookrae Kim\*, Ingi Kim\*

(日本サムスン Samsung デバイスソリューションズ研究所、\* Samsung Electronics Co., Ltd)

Novel Magneto-optical Kerr Effect Measurement System for Perpendicular Magnetic Anisotropy Films in STT-MRAM

Ken Ozawa, Kenji Suzuki, Shinji Ueyama, Jinseob Kim, Wookrae Kim, Ingi Kim

(Samsung Device Solutions R&D Japan, Samsung Japan Corporation, Japan,  
Mechatronics Research, Samsung Electronics Co., Ltd., Korea)

### はじめに

STT-MRAM は不揮発性メモリの低消費電力と言う特徴を活かし、多くのアプリケーションへの適用が期待されている。今後、IOT/MCU デバイス、車載、AI Computing などへの展開では信頼性、安定性、データ保持性が重要になる。垂直磁気異方性 (PMA) はそれらの主要な特性指標である。現状の半導体製造工程では振動型磁力計 (VSM) が主に使われているが、ウエハの状態では計測が困難であり、オンサイトで評価は困難である。今回、我々は半導体製造ラインでのインライン計測化が可能である新概念の磁気光学計測システム (MOKE) を設計、製作した。試料を用いた評価結果と合わせて報告する。

### 実験方法

Fig. 1 に示すようなウエハ計測を想定した片面からの磁場印可、且つ、電氣的に磁場方位が面内、面直で切り替え可能な電磁石を新たに設計、製作して極 Kerr MOKE システムを構築した。 $H_{k\text{eff}}$  の計測は、最初に面直磁場で試料を飽和磁化させ、ゼロ磁場に戻した後に、面内磁場を一斉磁化回転が成立する範囲内で掃引させて極 Kerr 応答を信号として検出、簡単な理論モデルを用いて  $H_{k\text{eff}}$  を Fitting、外挿から導出するというスキームである<sup>1</sup>。この手法では比較的小さな外部磁場での  $H_{k\text{eff}}$  計測が可能であり、電磁石の小型化が可能のため、半導体製造装置への実装が容易である。

### 実験結果

STT-MRAM の記録層を模した CoFeB/MgO 膜試料を用いて評価した。本手法では、fitting に用いる理論式に適合させるために、試料計測点における面内磁場方位を正確に試料面と平行にする必要がある。我々は 3 次元磁場カメラによる磁場ベクトル分布をもとに磁場方位を厳密に調整した (Fig. 2)。さらに、PMA 水準の異なる 5 種類の試料に対して同様に  $H_{k\text{eff}}$  を計測。VSM による困難軸 Loop 計測から得られた  $H_k$  と比較したところ、Fig. 3 に示すような良好な相関が得られ、本技術の有効性が確認された。

### 参考文献

1) G.Ju, et.al., J. Appl. Phys., Vol. 93, No. 10, Parts 2 & 3, 15 May 2003

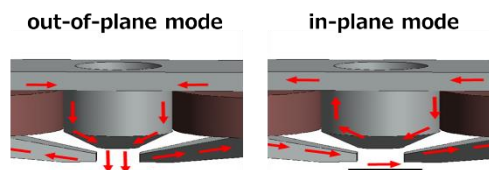


Fig.1: Schematic of the electrically switchable electromagnet

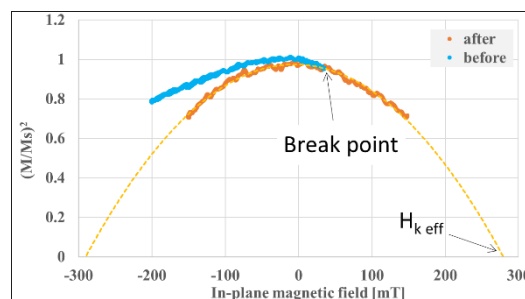


Fig.2 Polar magnetization response to the IP field

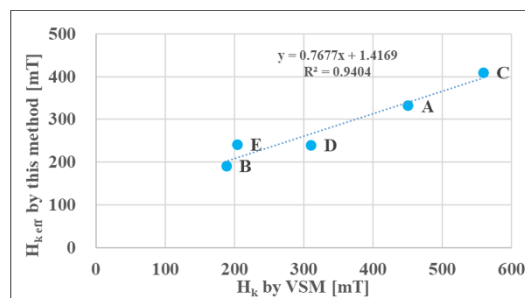


Fig.3: Correlation with VSM results for five test samples

# 閉ループ化した磁壁位置変調型 GMR センサの基礎特性

小室虎祐, 大島大輝, 加藤剛志  
(名古屋大学)

Fundamental properties of domain wall displacement GMR sensors with closed loop operation

K. Komuro, D. Oshima, T. Kato  
(Nagoya Univ.)

## はじめに

GMR (Giant Magnetic Resistance) センサは作製プロセスが比較的簡単であり、高感度かつ室温動作、集積化、低価格化が可能なセンサデバイスとして期待されている。これまで我々の研究グループでは、電流磁界フィードバックを用いた逆位相磁化変調型 GMR センサを提案しており、GMR センサの課題であった線形性、温度ドリフトが改善されることを示した。しかし、本方式は磁化困難軸方向の磁場を検出するため、GMR 素子の出力電圧が小さく、pT レベルの磁場検出には不利と考えられる。本研究ではセンサの高感度化を目的に、過去に我々の研究グループで検討した磁壁位置変調型センサ<sup>2)</sup>に対し、電流磁界フィードバック機構を組み合わせたことを検討した。磁壁位置変調型センサは磁化容易軸方向の磁場を検出することから、逆位相磁化変調型センサより1桁以上出力を上げることができ、文献<sup>2)</sup>では数 nT 程度の磁場検出を実証している。しかし、抵抗値の変化から磁場を検出するため、ヒステリシスの影響が大きく線形性の確保が課題であった。これに対し今回我々は、電流磁界フィードバックを導入することで出力のヒステリシス抑制に成功したので報告する。

## 実験手法

微細加工により、GMR 素子上にフィードバック磁場  $H_f$  および変調磁界  $H_{mod}$  印加用のアルミワイヤを配置し、Fig. 1 に示す回路に挿入した。 $H_{mod}$  は検出磁場  $H_{det}$  の周波数に比べて十分高く、 $H_{det}$  と共に磁化容易軸方向に印加される。したがって、ブリッジ回路の中間端子間で出力される信号には、 $H_{det}$  のほか  $H_{mod}$  による高周波成分が重畳する。これを計装アンプで増幅させ、後段のローパスフィルタ (Low pass filter: LPF) で高周波成分をカットする。また、LPF 出力に比例した信号を Al ワイヤに流すことで  $H_{det}$  を  $H_f$  で補償する。これにより磁壁の状態を常に零点に保つことができ、ヒステリシスを抑制できる。

## 結果

提案した閉ループ磁壁位置変調型センサおよび、電流磁界フィードバックを用いない開ループ磁壁位置変調型センサに対し、周波数 1 Hz、振幅が  $100 \mu T_{rms}$  の  $H_{det}$  を印加した。なお、 $H_{mod}$  は周波数 100 kHz、振幅  $94.0 \mu T_{rms}$  であり、開ループの場合、センサ出力  $V_{out}$  と Al ワイヤ間を切断している。Fig. 2 に、各モードにおける  $H_{det}-V_{out}$  のリサージュ図形 (青) ならびにその線形近似直線 (オレンジ) を示す。(a) に示す従来型 (開ループ) では非線形性が 7.8% であるのに対し、閉ループでは 1.2% と大幅な線形性向上に成功した。なお発表では、変調磁場の周波数および振幅と線形性の関係についても報告する。

## 参考文献

- 1) K.Komuro, D. Oshima, T.Kato, IEEE Trans. Magn. (2023), DOI: 10.1109/TMAG.2023.3284398.
- 2) G. A. Wang *et al.*, J. Phys. D: Appl. Phys. **44**, 235003 (2011).

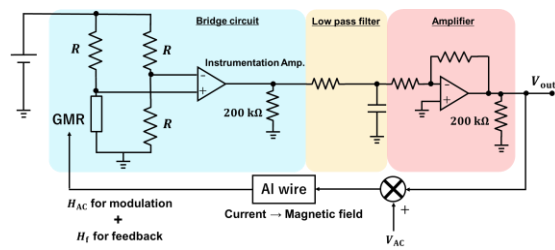


Fig.1. 検討した GMR センサ回路.

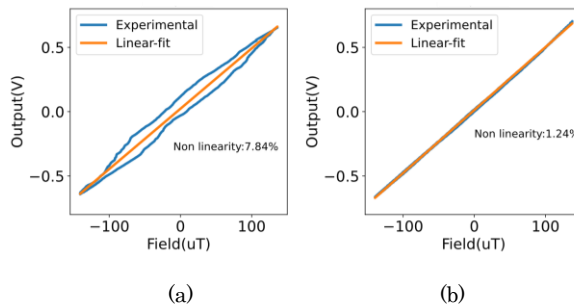


Fig. 2. (a) 開ループおよび (b) 閉ループ動作での  $H_{det}-V_{out}$  のリサージュ図形.

# 高対称な偶関数抵抗-磁界特性を示すトンネル磁気抵抗センサ

中谷友也, 岩崎仁志  
(物質・材料研究機構)

Tunnel magnetoresistive sensors exhibiting highly symmetric resistance-magnetic field response  
Tomoya Nakatani, Hitoshi Iwasaki  
(National Institute for Materials Science)

多くのトンネル磁気抵抗 (TMR) を用いた磁気センサは, 素子抵抗 ( $R$ ) が磁界 ( $H$ ) に対して線形に変化する, 奇関数  $R$ - $H$  特性を利用する. その一方, 素子抵抗が磁界の符号に対して対称に変化する偶関数  $R$ - $H$  特性も, 位置・回転センサ (エンコーダ) や高感度磁界センサとして重要である. 巨大磁気抵抗 (GMR) 素子の場合, 非磁性スペーサー層を介した強磁性層間の磁気結合を利用して, 偶関数  $R$ - $H$  特性が容易に得られる. それに対して, TMR 素子において偶関数  $R$ - $H$  特性を得るためには, 図 1(a) のように自由層の磁化に弱い一方向き磁気異方性を付与した, ソフトピン構造が必要である[1]. しかし, 図 1(a) のようなシングルソフトピン構造では, 自由層と参照層の直交磁化配列時が最小抵抗となり, TMR 比をロスすること, および印加磁界方向が自由層の困難軸からずれると  $R$ - $H$  曲線が非対称になることが欠点である. そこで図 1(b) のように, MgO バリアの上下にソフトピン自由層をもつ, デュアルソフトピン構造を考案した[2].

## 実験方法

マグネトロンスパッタリングにより, 図 1(b) のデュアルソフトピン TMR 構造を作製した. ソフトピン自由層は軟磁性に優れた CoFeBTa と CoFeB との積層であり, スペーサー層は Ag<sub>90</sub>Sn<sub>10</sub>, 固定層と参照層は Co<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub> を用いた (組成は at. %). 積層構造の詳細は文献[2]を参照されたい. フォトリソグラフィと Ar イオンミリングによる TMR 素子の微細加工後に, 300 °C にて 1 h の磁界中熱処理をおこなった.

## 結果

図 2(a) にデュアルソフトピン TMR 素子の  $R$ - $H$  曲線を示す. 容易軸に対しては台形の  $R$ - $H$  曲線を示し,  $H$  の正負領域における抵抗変化はそれぞれソフトピン自由層 1 および 2 の磁化反転による. 困難軸に対しては, 両方のソフトピン自由層の磁化が回転し, 偶関数  $R$ - $H$  曲線を示す. 図 2(b) は,  $H$  の印加方向を困難軸から  $\phi = 20^\circ$  ずらした場合の  $R$ - $H$  曲線である. デュアルソフトピン素子は依然, 対称性のよい  $R$ - $H$  曲線を示す. その一方, シングルソフトピン素子の  $R$ - $H$  曲線は,  $H$  の正負に対し著しく非対称となる. この違いは, Stoner-Wohlfarth モデルによる磁化角度の計算から, デュアルソフトピン素子の自由層磁化の相対角度が  $\phi$  に大きくは依存しないためであることがわかった. これは磁気センサとしての実装時に利点となる特性である.

文献 [1] Nakatani *et al.* Appl. Phys. Lett. **121**, 192406 (2022). [2] Nakatani & Iwasaki, J. Appl. Phys. **132**, 223904 (2022).

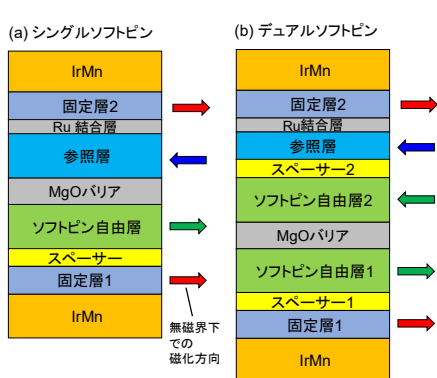


図 1 (a) シングルおよび, (b) デュアルソフトピン TMR 構造.

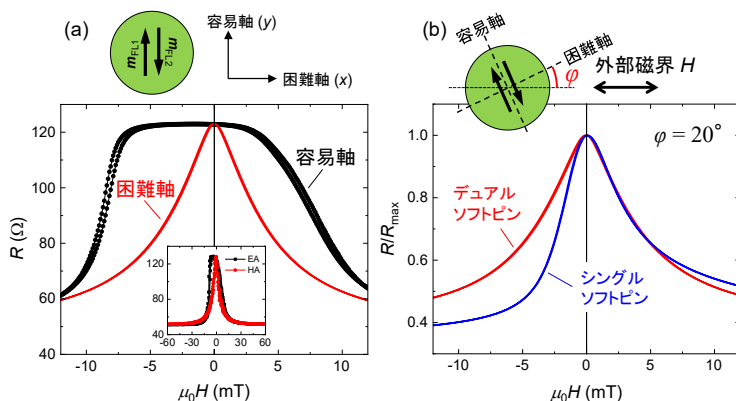


図 2 (a) デュアルソフトピン TMR センサの  $R$ - $H$  曲線, (b) 磁界方向が困難軸から  $20^\circ$  ずれた場合の  $R$ - $H$  曲線.

# 高感度 GMR センサの磁場顕微鏡応用時の MFC ゲイン

喜々津哲、東祥弘、黒崎義成、白鳥聡志、\*鈴木一博、\*照井裕二  
(株)東芝、\*東芝ナノアナリシス(株)

MFC Gain of High-Sensitive GMR Sensor Used for a Magnetic Field Microscope

A. Kikitsu, Y. Higashi, Y. Kurosaki, S. Shirotori, \*K. Suzuki, \*Y. Terui  
(Toshiba Corp., \*Toshiba Nanoanalysis Corp.)

## はじめに

偶関数 GMR を AC 磁界変調する高感度磁界センサを開発し、半導体チップなどにおける微弱な欠陥電流を磁界で可視化する磁場顕微鏡への適用を検討している<sup>2)</sup>。センサは GMR ラインの両端に矩形 MFC (Magnetic Field Concentrator) を設けたものを 4 組用いたフルブリッジ構成である。感度分布関数解析により、空間分解能は感度方向の 2 つの GMR ラインの間隔程度になることがわかった<sup>3)</sup>。サンプルからの磁界が MFC に均一に印加されないためであるが、そのような状況における MFC ゲインについても挙動を解析し、空間分解能を含めて実験との比較を行ったので報告する。

## 実験方法

解析手法はこれまでのもの<sup>3)</sup>と同様である。相反定理に基づき GMR の位置から発生する磁界を有限要素法によって計算し、磁界分布を感度分布とした。感度分布のピーク値をセンサ感度とみなし、MFC がある場合とない場合との感度比を MFC ゲインとした。Fig.1 に示す種々の MFC 形状に対して解析を行った。

## 結果および検討

Fig.1 に、均一磁界下での値で規格化した MFC ゲインを示す。MFC 形状によらずサンプルセンサ間距離と共に MFC ゲインは減少し、距離 1 mm では半分程度になることがわかる。サンプルを Cu 配線とし、そこから発生する電流磁界の MFC 直上 (0.1 mm) での分布を有限要素法で計算した結果を Fig.2 に示す。MFC 形状は Fig.1 の ref とした。サンプルセンサ間距離(z)が 1 mm の場合、磁界が MFC の全幅の 1/4 ほどに集中しているが、5 mm では半分ほどまでに広がっている。この磁界集中により MFC がフルに機能せずゲインが低下すると思われる。

これらの解析結果の確認のために、Cu 配線からの磁界を可視化する実験も行った。空間分解能や MFC ゲインの z 依存性は、上記の解析結果と定性的に同じであり、MFC 形状依存性も概ね再現することを確認した。

This work was supported by the Cabinet Office (CAO), Cross-ministerial Strategic Innovation Promotion Program (SIP), "Intelligent Processing Infrastructure of Cyber and Physical Systems" (funding agency: NEDO).

## 参考文献

- 1) S. Shirotori et. al.: *IEEE Trans. Magn.*, **57**, 4000305 (2021)
- 2) A. Kikitsu et al.: *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 62, SB 1007, (2023)
- 3) 喜々津 他: 第 46 回日本磁気学会学術講演会 06pD-3 (2022), A. Kikitsu et al.: *Intermag 2023*, POC-08 (2023)

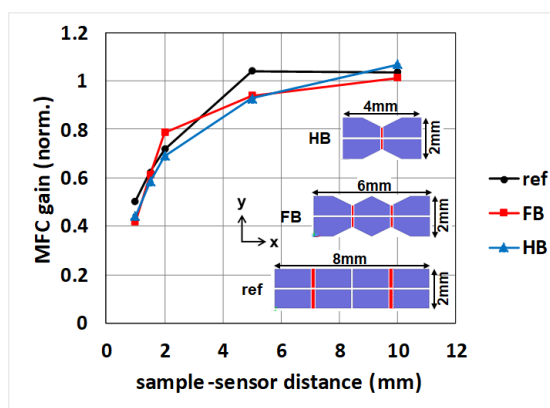


Fig.1 Normalized MFC gain as a function of sensor to sample distance, x.

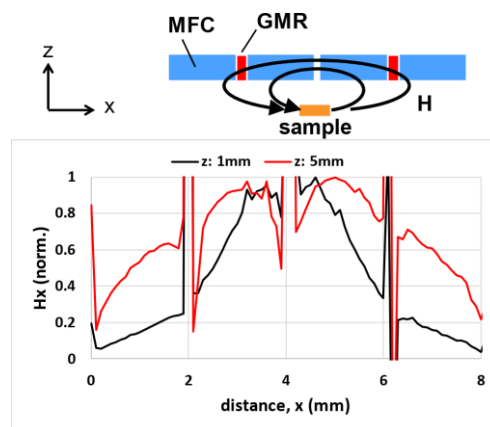


Fig.2 Distribution of magnetic field from a sample at the surface of MFCs.

## Enhancing Leaked Magnetic Field Measurement with Thin Film Magnetic Field Sensor

Loi Tonthat<sup>1</sup>, Ryota Suzuki<sup>1</sup>, Junichi Honda<sup>1</sup>, Kazuhiko Okita<sup>1</sup>, Jerdvisanop Chakarothai<sup>2</sup>, Katsumi Fujii<sup>2</sup>,  
Shin Yabukami<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Tohoku University, Miyagi 980-8579, Japan

<sup>2</sup>National Institute of Information and Communications Technology, Tokyo 184-8795, Japan

The leaked magnetic field generated by wireless charging systems and RFID card readers has presented significant challenges in ensuring the reliable operation of sensitive electronic devices and systems across various industrial and residential environments. Accurate measurement and characterization of leaked magnetic field sources are crucial for devising effective mitigation strategies. While conventional evaluation methods utilizing antennas, such as loop antennas, have been employed in previous studies <sup>(1)</sup>, they suffer from limitations in terms of frequency bandwidth and spatial resolution. In response, this study introduces a novel approach by utilizing the potential of thin film magnetic field sensors to overcome these limitations. Our high-frequency-driven thin film magnetic field sensors offer superior capabilities in detecting magnetic fields in the pT range while achieving spatial resolutions below a few millimeters at room temperature <sup>(2)</sup>. To validate the effectiveness of this approach, we constructed an experimental setup specifically designed for measuring leaked magnetic fields from wireless charging devices. The setup comprises a thin film magnetic field sensor, a signal generator, and a spectrum analyzer. Figure 1(a) depicts a circuit configuration where the leaked magnetic field is detected and analyzed in the spectrum analyzer. The AC magnetic field signal emitted by the wireless charging device is applied to the sensor, resulting in an AC modulated signal due to the change in sensor impedance. In this circuit, the sensor element is electrically connected to a microstrip line with a characteristic impedance of 50 ohms. Figure 1(b) illustrates an AM spectrum, where  $f_c$  represents the carrier frequency and  $f_s$  denotes the signal frequency. The intensity of the sideband is directly proportional to the impedance change of the sensor. Figure 1(c) shows preliminary experimental results, demonstrating a measured spectrum for a wireless charging device in the presence of a varying DC bias field applied along the longitudinal axis of the sensor. The internal noise floor was approximately -107 dBm, while the signal at a frequency of around 109 kHz reached a maximum value of approximately -83 dBm, corresponding to a DC bias field of 10 Oe. The outcomes show the efficacy of thin film magnetic field sensors in accurately capturing and analyzing leaked magnetic field. We are currently conducting detailed experiments to compare the results obtained with conventional antennas.

(1) Fujii, K., "Basic characteristics of magnetic field antenna factor of loop antennas for EMI measurements", *IEICE Communications Express*, 11(10), pp.643-648 (2022).

(2) 村山芳隆, 小澤哲也, 藪上信, 石山和志, 荒井賢一, "10-13T 台の磁界検出分解能を有する高周波伝送線路型薄膜磁界センサ", *日本応用磁気学会誌*, 31(1), pp.17-22 (2007).

**Acknowledgements:** This research was supported by Matching Research Support Project 2023 of Tohoku University and National Institute of Information and Communications Technology.

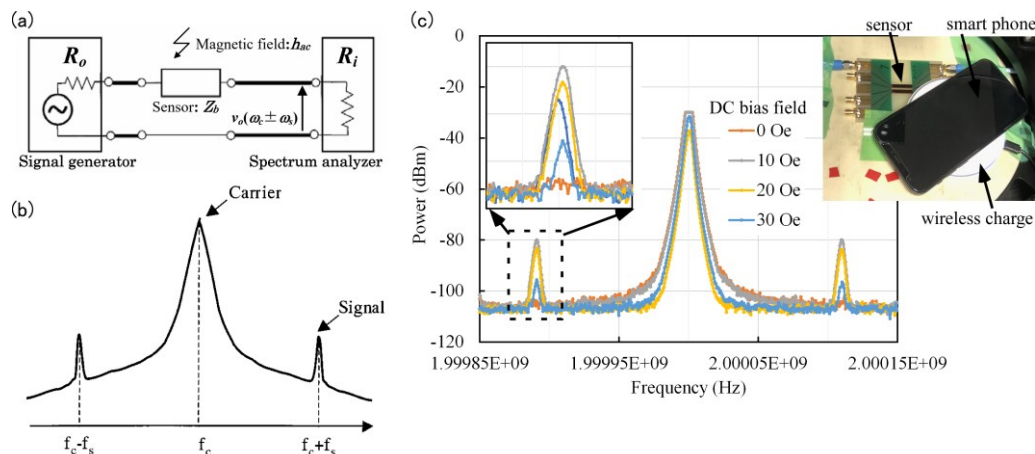


Fig. 1. (a) Equivalent circuit, (b) amplitude modulation spectrum, and (c) power spectrum for wireless charge.



# 直交フラックスゲート型歪センサの特性評価

千田健太<sup>1,2</sup>, 後藤太一<sup>2</sup>, 石山和志<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>東北大学大学院 工学研究科、<sup>2</sup>東北大学 電気通信研究所)

Evaluating characteristics of orthogonal fluxgate strain sensor

K. Chida<sup>1,2</sup>, T. Goto<sup>2</sup>, K. Ishiyama<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Graduate School of Engineering, Tohoku University, <sup>2</sup>RIEC, Tohoku University)

## 1. はじめに

近年、橋梁の老朽化は深刻な問題<sup>1)</sup>であり、その健全性診断を目的として逆磁歪効果を用いた高感度歪センサの研究が行われている<sup>2)</sup>。本研究では僅かな歪に対して大きな磁束変化量を得るために断面積が大きなバルク材に着目し、直交フラックスゲート磁界センサに着想を得た新しい方式<sup>3)</sup>を提案してきた。直交フラックスゲート磁界センサは高周波電流を通電した磁性材料に磁界を印加する事で、磁気モーメントの方向が変化し、通電方向の磁化変化が生じる事を利用している。そこで、磁界の代わりに歪印加による逆磁歪効果を利用して磁気モーメントの方向を変化させ、出力を得るものである。

本報告では、直交フラックスゲート型歪センサの高感度化に向け、特性評価を行った結果を述べる。

## 2. 実験方法

アルミ基板(13 mm×26 mm×0.4 mm)上に幅方向異方性を誘導したアモルファスリボン(日立金属製 2605SA1、1 mm×26 mm×25 μm)を貼り付け、片側を固定し、カンチレバーを構成した。Fig.1には歪印加装置の構成を示す。自由端から5 mmの位置をマイクロメータで変位させ、逆磁歪効果により磁気モーメントの方向を変化させた。また、

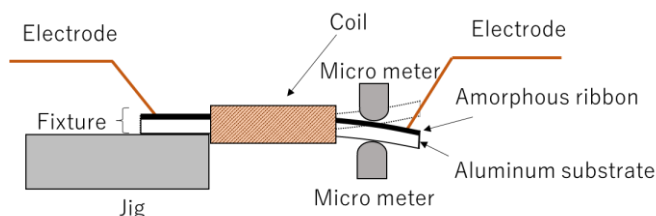


Fig.1. Configuration of strain applying device

アモルファスリボン中の磁気モーメントを長手方向に揃えるために、約 2 Oe のバイアス磁界を印加した。アモルファスリボンに高周波電流を通電する事で幅方向交流磁界を与えた際の磁化変化をセンサ素子に巻かれたコイル(300 ターン) で電圧として検出した。この際、幅方向交流磁界 1 周期の間に長手方向の磁化変化が 2 度生じるため、倍周期成分を測定した。高周波電流は正弦波(0.2 Arms)とし、周波数を 100、200、250、300、400、500 kHz と変化させて測定を行った。

## 3. 実験結果

Fig.2 にはセンサ素子に引張 266 ppm から圧縮 266 ppm まで 26.6 ppm 間隔で変形させた際のセンサ出力結果を示す。出力には周波数特性があり、250 kHz 付近で最大となった。出力電圧はファラデーの電磁誘導により磁化変化を時間微分しているため、250 kHz 以下では、周波数が増えるにつれ出力、変化量が増加したのに対し、250 kHz 以上では、コイルの浮遊容量に起因する共振により低下したと考えられる。250 kHz における最大の出力変化量は 6.72 mV/ppm であり、金属歪ゲージ(ゲージ率:2)の 6720 倍と極めて大きな値となった。今後は周波数以外の動作条件から高感度化に向けて検討する。

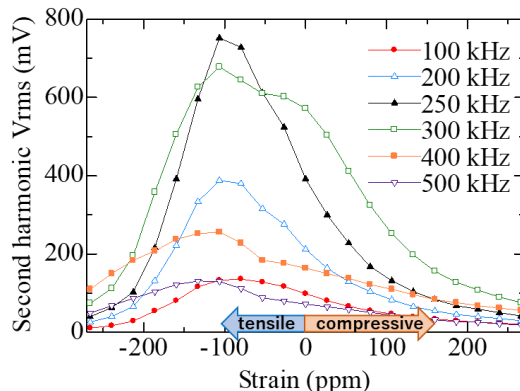


Fig.2. Result of static characteristics

## 参考文献

- 1) 国土交通省, 「道路の老朽化対策の本格実施に関する提言」(2014)
- 2) 曾良, 栢, 石山, 日本磁気学会論文特集号, 4, 41(2020)
- 3) 千田, 後藤, 石山, 令和 5 年電気学会全国大会 2-099(2023)

## 2軸MIセンサを用いた交通監視用車両計測装置に関する研究

姚 睿軒, 内山 剛  
(名古屋大学)

Vehicle Detection Device Using 2-Axis Magneto-Impedance Sensors for Traffic Monitoring

R. Yao, T. Uchiyama  
(Nagoya Univ.)

### はじめに

2021年12月時点で、日本の自動車の保有台数は8000万台を超えました。道路の監視と管理において、主要道路や高速道路などには多くのCCTVカメラや道路センサなどが設置されていますが、一般道路の監視装置の設置はまだ不十分です。理想的な道路監視装置は、設置が容易で、メンテナンスが簡単で、コストが低く、耐久性が高く、安定性が良いことが必要です。本研究では、~~2~~2軸の磁気インピーダンス(MI)センサを路脇に設置し、道路上を通行する車両による磁場の変動を計測しました。計測により得られたデータを適切なアルゴリズムによって処理し、リアルタイムで走行速度、車種、車長、道路の混雑状況などの情報を推定することを目的としました。センサ設置の高さ、センサから車体までの距離、通行車両の種類などが検知精度に与える影響についても検討しました。

### 実験方法

路脇設置型の検知方式において、車両の進行方向および垂直方向の磁場を測定するために、2軸のMIセンサを使用しました。一定間隔で配置された2組の2軸MIセンサを使用して、車速測定および道路の渋滞検知を行いました。日本の一般道路で一般的な3種類の車両(軽自動車、乗用車、ワゴン)について測定を行いました。異なるセンサの設置高さ、間隔、車体からの距離、走行状況(通常走行、追い越し、対向走行)における検知状況などのパラメータが実験結果に与える影響について検討し、最適な検知条件を確立しました。

### 実験結果

計測された車両による磁場波形の最大値と最小値の差(磁場変動量)、最大値と最小値の間の時間間隔(ピーク間時間: Time peak to peak)、2つのセンサ間で同じ波形の最大値を取るまでの時間間隔( $\Delta t$ )、および車両通過時の信号スペクトルを分析しました。センサの設置高さは、検出信号の磁場変動量に主な影響を与えます。時速50kmで走行している乗用車

の場合、センサを高さ66cmに設置すると、水平方向の磁場変動量は $12.97 \mu\text{T}$ 、垂直方向では $23.27 \mu\text{T}$ となります。一方、センサを高さ110cmに設置すると、水平方向の磁場変動量は $9.71 \mu\text{T}$ 、垂直方向では $15.05 \mu\text{T}$ に減衰します。ただし、センサの設置高さはピーク間時間には大きく影響していません。最小の設置高さ22cmから最大の設置高さ110cmまで、車両の長さが3.94m時速50kmで走行する乗用車の場合、ピーク間時間(Time peak to peak)の最大変化はわずか3msです(平均値: 236ms)。車体とセンサの距離は、磁場の変化量とピーク間時間の両方に影響を与えます。障害物を避けるとき車体とセンサの距離は約2.4mであり、対向車の場合は5mです。これにより、磁場の変化量はそれぞれ正常な走行時の17.19%、0.09%になります。また、ピーク間時間も約17.93%増加します。しかし、5mの距離ではピーク値を検出することはできなくなります。2つのセンサの最大値の時間差を利用して速度を計算しました。Fig.1に示す通り、センサの間隔が80cmの場合、同一の車両の速度推定精度は $\pm 3\text{km/h}$ の範囲で81.67%、 $5\text{km/h}$ の範囲で98.33%に達しました。

### 参考文献

- 1) S. Taghvaeyan et al., "Portable Roadside Sensors for Vehicle Counting, Classification, and Speed Measurement,"

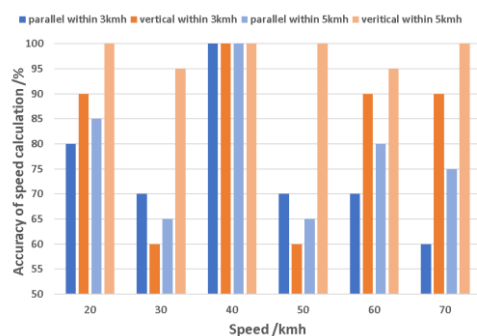


Fig.1 Accuracy of speed measurement at different speeds.

# シングルコイルフィードバック MI センサのダイナミックレンジ拡張効果の評価

井立聖二、内山剛  
(名古屋大学)

Evaluation of Dynamic Range Enhancement Effects through Single-Coil Feedback

S. Idachi, T. Uchiyama  
(Nagoya University)

## はじめに

磁気インピーダンス効果を利用した Magneto-Impedance (MI) センサは、磁気シールドルームを使用しない、生体磁気計測手法として期待されるセンサである。MI センサの磁場感度とダイナミックレンジはトレードオフの関係にあるため、生体磁気計測可能な磁場感度と磁気シールドルーム外における安定動作の両立が難しいという課題がある。その問題の解決手法として、MI センサ周りにフィードバックコイルを設置することによりバイアス磁場を発生させ、地磁気を打ち消す磁気フィードバックなどが存在する<sup>[1]</sup>。MI センサのピックアップコイルとフィードバックコイルを兼用し、シングルコイルによる磁気フィードバックを行う手法も報告されているが、低周波ノイズが増加してしまうという問題がある<sup>[2]</sup>。本報告では、パルス電流励磁方式 MI センサにシングルコイルフィードバック技術を適用することで、ダイナミックレンジの拡張を目指す。

## 実験方法

Fig. 1 にシングルコイルフィードバック MI センサの回路ブロック図を示す。センサヘッドは 400 ターンの 1 cm 長ソレノイドコイルに  $\phi 30 \mu\text{m}$  の FeCoSiB アモルファスワイヤを通すことで構成される。MI センサは -80 dB の磁気シールドボックス内で動作する。

還送差  $F=1+\alpha\beta$  を変化させた時の MI センサの磁場感度、及び磁気ノイズスペクトル密度を計測する。磁気ノイズスペクトル密度は、MI センサ出力電圧をバンドパスフィルタ (0.1 Hz ~ 1 kHz)、10 倍増幅器を介して FFT Analyzer により計測される。

## 実験結果

Fig. 2 では、還送差  $F$  の変化による、シングルコイルフィードバック MI センサの磁気特性の変化を示す。磁気フィードバックにより、磁気特性の線形範囲が拡張されていることが確認できる。Fig. 3 に MI センサの磁気ノイズスペクトル密度を示す。ノイズフロアは  $30 \text{ pT}/\sqrt{\text{Hz}}$  (at 10 Hz) となり、磁気フィードバックの前後で変化しないことがわかった。これらの結果より、シングルコイルフィードバックによってダイナミックレンジを 120dB 以上に拡張することができ、ノイズの増加をなくすことができた。

## 参考文献

- 1) Han et al., Virtual Reality & Intelligent Hardware, 4(1), 38-54, 2022
- 2) Gudoshnikov et al., Phys. Status Solidi A, 211(5), 2014

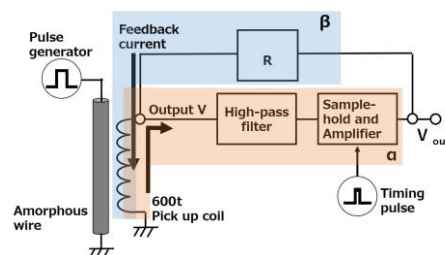


Fig.1 Block Diagram of Single Coil Feedback MI Sensor

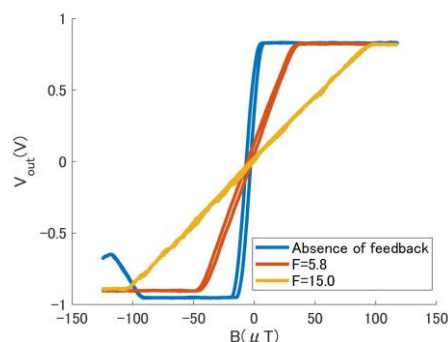


Fig.2 Change in the Magnetic Properties of a Single-Coil Feedback MI Sensor Due to the Feedback

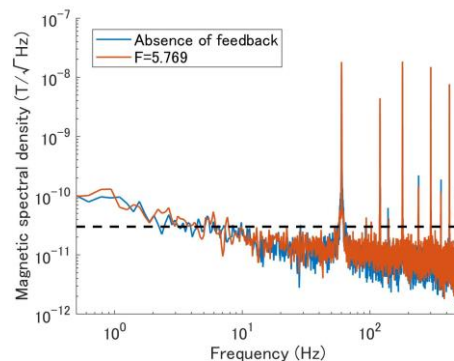


Fig.3 Comparison of magnetic noise spectral density for absence of feedback and  $F=5.8$ .

# Wiegand ワイヤの励磁・検出位置とパルス出力特性

鈴木丈士, 竹村泰司 (横浜国立大学)

Pulse voltage of Wiegand wire depending on positions of excitation and detection

Hiroto Suzuki, Yasushi Takemura

(Yokohama National University)

## はじめに

磁氣的二層構造を形成している Wiegand ワイヤは、外部磁界の印加により保磁力の低いソフト層を反転させた際に大バルクハウゼンジャンプという急峻な磁化反転が生じる<sup>1)</sup>。周りに検出コイルを取り付けることで一定電圧のパルス出力を得ることができ、小型発電素子への応用が期待されている<sup>2,4)</sup>。本稿では出力特性として磁壁発生位置や、パルス波高値、面積などの、Wiegand ワイヤの位置依存を考察した。

## 実験方法

Fig. 1 に示すように 1 mm 長、100 turn の検出コイルが 7 つ連続したものを作製し、0.25 mm 径、15.5 mm 長の Wiegand ワイヤの外周に設置した<sup>5)</sup>。ワイヤの両端にはフェライトビーズを装着した。そして 10 mm 径、2 mm 幅の小型円形の NdFeB 磁石を回転させ、ワイヤに交番磁界を印加した。この状態でパルスを 1000 回観測し、磁壁発生位置、波高値、半値幅、パルス面積を考察した。

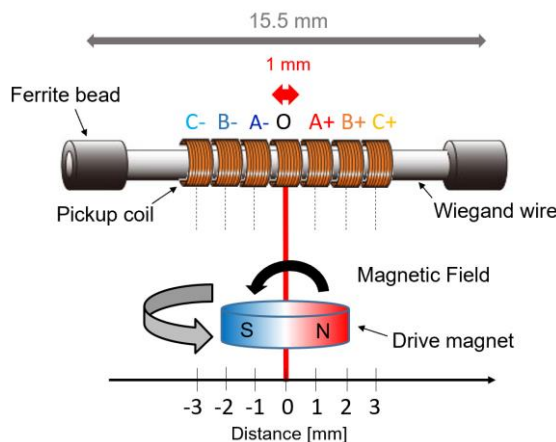


Fig. 1 Measurement setup.

## 実験結果

ワイヤの中心に磁界を印加したときの磁壁発生位置の分布を Fig. 2 に示す。中心のコイル O 付近で磁壁が多く発生していることが分かる。

また、各コイルのパルス面積の分布を Fig. 3 に示す。中心のコイル O 付近のパルス面積が大きい傾向にあることが分かる。

当日は、磁壁発生位置と波高値や面積の相関関係や、励磁条件を中心から変えた場合の測定結果など、より詳細な内容を報告する。

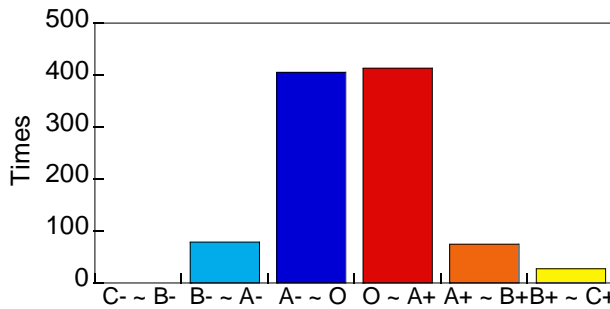


Fig. 2 Coils detecting the first pulse.

## 参考文献

- 1) J. R. Wiegand and M. Velinsky, U.S. Patent 3,820,090, (1974).
- 2) Products Wiegand sensor, POSITAL: [https://www.posital.com/jp/produkte/wiegand\\_sensors/Wiegand\\_Sensors.php](https://www.posital.com/jp/produkte/wiegand_sensors/Wiegand_Sensors.php)
- 3) S. Saggini, F. Ongaro, L. Corradini, A. Affanni, IEEE Trans. Emerg. Sel. Topics Power Electron., 3, 766, 2015.
- 4) Y. Takemura, N. Fujinaga, A. Takebuchi, and T. Yamada, IEEE Trans. Magn., 53, 4002706, 2017.
- 5) 鈴木, 梶原, 竹村, 令和 5 年 電気学会全国大会, 2-098, 2023 年 3 月.

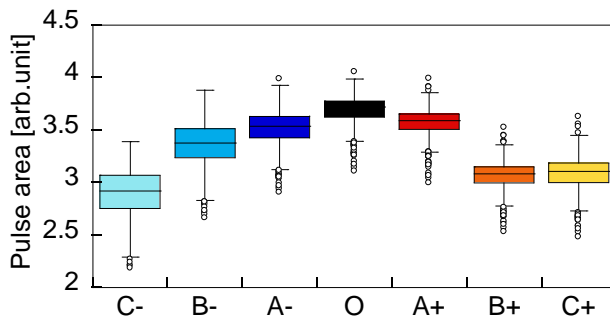


Fig. 3. Area of Wiegand pulse.

# 新しい振動発電デバイス：垂直磁界アシスト式電磁誘導型振動発電デバイス

大竹充・中村優太・石川瑛士・川井哲郎・二本正昭  
(横浜国大)

New Vibration Powered Generator: Perpendicular Magnetic Field Assisted Electromagnetic Vibration Powered Generator

Mitsuru Ohtake, Yuta Nakamura, Eishi Ishikawa, Tetsuroh Kawai, and Masaaki Futamoto

(Yokohama Nat. Univ.)

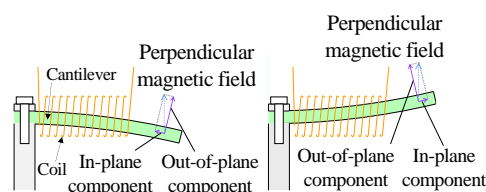
**はじめに** 環境発電デバイスは、IoTデバイスなどの自立型電源への適用に向けて注目されている。振動発電には、電磁誘導型に加え、圧電型や静電誘導型があるが、電磁誘導型は内部抵抗が小さく、高出力化が可能で、また、耐久性が高く、動作可能温度域が広いという特徴がある。本講演では、電磁誘導型の更なる高出力化を可能にさせ、また、使用できる磁性材料の選択幅を拡大させる新たな方式を開発したため、その基本原理とデバイス構造を説明する。

**発電原理** 本方式では、片持ち梁状の磁性材料を使用する。磁性材料は、梁長手方向に良好な軟磁気特性を持つことが好ましいが、結晶配向の有無は問わず、多結晶や非晶質材料でも使用できる。重要なことは、梁に垂直磁界を印加することである。振動前の梁に印加される磁界の面内成分はゼロであるが、振動による梁のたわみは Fig. 1 に示すように面内成分を発生させる。また、振動により、面内磁界は梁の長手方向に沿って正負で変化することになり、この磁界が磁性材料の磁化を反転させる。そして、梁の周りにコイルを設置することにより、磁束変化が検出され、出力が得られる。

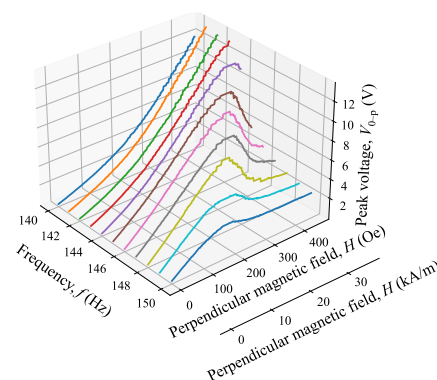
**出力特性** Fig. 2 は、梁として無方向性珪素鋼板 (50 mm × 10 mm × 350 μm) を用い、長手方向の端から 10 mm の部分までを固定することにより片持ちの状態にし、発電コイル (抵抗: 1.2 kΩ, 巻数: 8000 回, 最内径: 幅 12 mm × 高さ 16 mm, 全長: 40 mm) を挿入し、梁のみを振動試験機を用いて強制振動させたときの出力特性の例である。このときの振動の加速度は 1.5 G で一定とし、垂直磁界はヘルムホルツコイルを用いることにより印加した。印加磁界の増加に伴い、梁内の磁束変化速度も増加するため、より大きな出力が得られている。この実験条件では、450 Oe の垂直磁界で、13.6 V の出力となっている。

**デバイス構造** 本方式をデバイスとして構成する際の一例として、永久磁石の使用が考えられる。Fig. 3 は、永久磁石の設置場所 (Fig. 3(a)) による梁の長手方向の垂直磁界の強度分布 (Fig. 3(b)) と設置場所を変えた場合における出力特性 (Fig. 3(c)) の例である。自由端近傍に永久磁石を設置することにより、効率的に梁に面内磁界が印加され、大きな出力が得られていることが分かる。

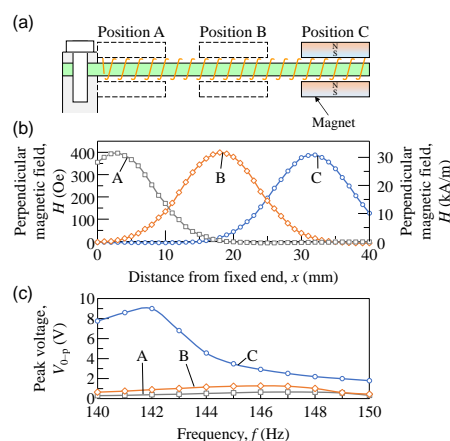
1) 大竹充, 川井哲郎, 二本正昭「発電装置」特願 2022-086851 (2022年5月27日)。



**Fig. 1** Cross-sectional schematic diagram of a perpendicular magnetic field assisted electromagnetic vibration powered generator.



**Fig. 2** Perpendicular magnetic field dependences of peak voltages of a powered generator vibrated at different frequencies.



**Fig. 3** (a) Cross-sectional schematic diagram of a perpendicular magnetic field assisted vibration powered generator using a pair of permanent magnets. (b) Distributions of perpendicular magnetic field and (c) frequency dependences of peak voltage of powered generators where permanent magnets are set at positions shown in (a).

# 垂直磁界アシスト式および逆磁歪式電磁誘導型振動発電デバイスの梁形状が衝撃による出力特性に及ぼす効果

神谷颯・石川瑛士・明田俊祐・中村優太・大竹充・川井哲郎・二本正昭  
(横浜国大)

Effect of Beam shape on the Shock-Induced Output Characteristics of Perpendicular Magnetic Field Assisted and Inverse Magnetostrictive Electromagnetic Vibration Powered Generators

Soh Kamiya, Eishi Ishikawa, Shunsuke Aketa, Yuta Nakamura,

Mitsuru Ohtake, Tetsuroh Kawai, Masaaki Futamoto

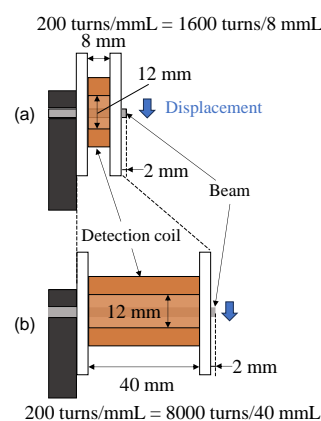
(Yokohama Nat. Univ.)

**はじめに** 垂直磁界アシスト式<sup>1)</sup>および逆磁歪式<sup>2-4)</sup>の電磁誘導型振動発電デバイスでは、磁性体梁材料が用いられる。通常、振動発電で効率的に出力を得るためには、振動と梁の共振周波数を合わせる必要がある。一方、衝撃により発電を行う場合、振動よりも共振周波数が高い梁材料も使用可能である。一般に、短い梁材料を用いると、周囲に設置するコイルの巻数が減少してしまうが、一方で、共振周波数が上昇するため、磁束の時間変化量が多くなるというメリットもある。本研究では、梁とコイルの長さを系統的に変化させ、衝撃による垂直磁界アシスト式および逆磁歪式の発電試験を行い、発電に適する梁形状の検討を行った。

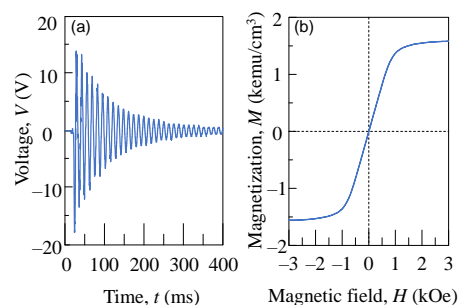
**実験方法** 梁材料には無方向性珪素鋼板を用いた。幅と厚さはそれぞれ 10 mm と 350  $\mu\text{m}$  で一定とし、長さを  $L_{\text{beam}} = 28$  から 60 mm の間で変化させた。そして、長手方向の端から 10 mm の部分までを固定することにより片持ち梁の状態とした。発電コイルの最内径は幅 12 mm  $\times$  高さ 16 mm、長さは  $L_{\text{coil}} = L_{\text{beam}} - 20$  mm とし、単位長さ当たりの巻き数は 200 回/mm で一定とした。Fig. 1 にこれらの関係を纏めたものを示す。そして、コイルから僅かにはみ出た自由端の先端に変位を与えることで、衝撃による発電試験を行った。このとき、バイアス磁界を、垂直磁界アシスト式では垂直方向に、逆磁歪式では長手方向に、ヘルムホルツコイルを用いて印加した。

**実験結果** Fig. 2(a)に長さ 60 mm の梁（振動部は 50 mm）に対して 6 mm の変位を与えることにより得られた垂直磁界アシスト式での出力波形を示す。瞬間的に 18.2 V の大きな出力が得られていることが分かる。また、梁の振動が共振周波数で減衰していくため、それに伴い出力電圧も減衰していくことが分かる。Fig. 2(b)に無方向性ケイ素鋼板の磁化曲線を示す。梁は減衰振動中、面内方向に正負の磁界が交互にかかり、磁化が反転されることで、磁束変化が検出され、出力が得られる。振幅の減衰に伴い、面内方向の磁界の変化域およびそれによる磁化の変化域が小さくなって、出力電圧が減少していることが考えられる。Fig. 3 に全長が 28 mm と 60 mm の試料に垂直磁界アシスト式で 400 Oe の磁界を印加したときの最大出力電圧の変位依存性を示す。変位の増加に伴い、最大出力電圧は増大している。一方、28 mm の試料では、磁性体の体積や検出コイルの巻数が 1/5 に減少しているにもかかわらず、60 mm の試料の 1/3 以上の出力が得られている。当日は、逆磁歪式の場合も含め、梁形状が振動と発電特性に与える効果について詳細に報告する。

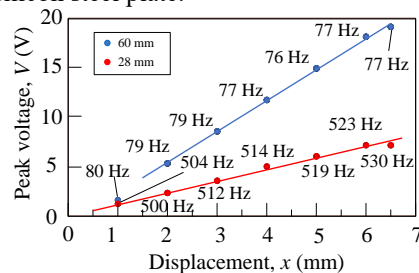
- 1) I. Kanno: *J. Surf. Finish. Soc. Jpn.*, **67**, 16 (2016).
- 2) Z. Yang, K. Nakajima, R. Onodera, T. Tayama, D. Chiba, F. Narita: *Appl. Phys. Lett.*, **112**, 073902 (2018).
- 3) T. Ueno and S. Yamada: *IEEE Trans. Magn.*, **47**, 2407 (2011).



**Fig. 1** Schematic diagrams showing positional relationships between beams and coils with different lengths.



**Fig. 2** (a) Output voltage waveform and (b) magnetization curve of non-oriented silicon steel plate.



**Fig. 3** Displacement dependences of peak voltages.

# 垂直磁界アシスト式および逆磁歪式電磁誘導型振動発電デバイスの磁性体梁中の磁束変化挙動の解析

石川瑛士・大竹充・中村優太・川井哲郎・二本正昭  
(横浜国大)

Analysis of Magnetic Flux Variation Behavior in Magnetic Beams

of Perpendicular Magnetic Field Assisted and Inverse Magnetostrictive Electromagnetic Vibration Powered Generators

Eishi Ishikawa, Mitsuru Ohtake, Yuta Nakamura, Tetsuroh Kawai, and Masaaki Futamoto

(Yokohama Nat. Univ.)

**はじめに** 電磁誘導型振動発電の方式として、逆磁歪式<sup>1-3)</sup>に加え、最近、著者らが開発した垂直磁界アシスト式<sup>4)</sup>がある。いずれの方式も、磁性体を含む梁を片持ち状態にし、磁性体内の磁束変化を梁周囲に設置したコイルにより検出し、出力を得る。また、梁に対して、垂直磁界アシスト式では垂直方向、逆磁歪式では長手方向にバイアス磁界を印加する。各方式で、磁化反転メカニズムは異なり、固定端（もしくは自由端）からの距離により磁性体内の磁束変化量も異なることが考えられる。本研究では、同一磁性体梁を用いて、垂直磁界アシスト式および逆磁歪式による振動発電試験を行い、固定端（もしくは自由端）からの距離による磁性体内の磁束変化の特徴を明らかにすることを目的とした。

**実験方法** 梁はCu板 (50 mm×10 mm×300 μm) にFe-B-Si系アモルファス薄帯 (日立金属製 SA1, 厚さ: 25 μm) をエポキシ接着材で貼り付けることにより作製した。梁は端部から10 mmの部分までを固定し、振動部の全長が40 mmとなるようにした。梁の場所ごとの磁束変化を検出するコイルとして、全長が8 mmで、最内径が12 mm×16 mm、巻数が1600回、抵抗が280 Ωのものを使用し、Fig. 1に示すように梁材料に挿入した。そして、梁のみを振動試験機を用いて強制振動させた。このときの加速度は1.5 Gとし、バイアス磁界はヘルムホルツ・コイルを用いて検出コイルを含めた全体に印加した。

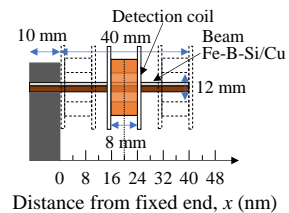


Fig. 1 Positional relationship between beam and coil.

**実験結果** コイルの位置  $x$  を変化させた場合の垂直磁界アシスト式および逆磁歪式における出力ピーク電圧のバイアス磁界強度依存性を、それぞれ、Fig. 2(a)および(b)に示す。垂直磁界アシスト式では、バイアス磁界の増加に伴いピーク電圧もほぼ線形的に増加している。本研究で用いたヘルムホルツコイルの最大印加磁界が430 Oeであったため、その磁界でピーク電圧が最大となっているが、更に強い磁界を印加すればより大きな出力が得られることが考えられる。一方、逆磁歪式では、10 Oe 付近でピーク電圧が最大となり、その後、減少に転じた。Fig. 2(c)および(d)に、それぞれ、垂直磁界アシスト式と逆磁歪式における最大ピーク電圧のコイル位置依存性を示す。垂直磁界アシスト式では、自由端側で、より大きな面内成分が発生するため、コイル位置  $x$  の増加にともない、最大ピーク電圧も増加することが予想されたが、梁中央部で最大ピーク電圧が極大となる結果になった。この理由として、梁端部では、磁極の形成に伴い、複雑な磁区構造が形成され、磁束の方向が一様に定まらないためであると考えられる。一方、逆磁歪式では、固定端側で最大ピーク電圧が最も高くなった。片持ち梁では固定端側で応力が最大になり、その結果、固定端でより大きな磁気弾性エネルギーが発生することになる。また、本実験における固定端は梁の端部から10 mmの位置となっているため、磁極形成の影響が小さいことが考えられる。そのため、固定端側で大きな磁束変化が生じたことが考えられる。

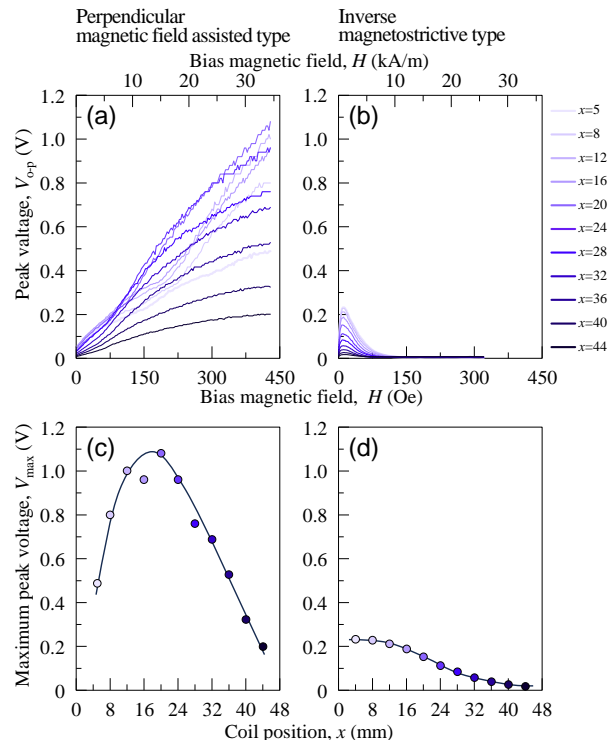


Fig. 2 (a, b) Bias magnetic field dependences of peak voltage and (c, d) coil position dependences of maximum peak voltage of (a, c) perpendicular magnetic field assisted and (b, d) inverse magnetostrictive vibration powered generators.

- 1) T. Ueno and S. Yamada: *IEEE Trans. Magn.*, **47**, 2407 (2011).
- 2) S. Fujieda, S. Suzuki, A. Minato, T. Fukuda, and T. Ueno: *IEEE Trans. Magn.*, **50**, 2505204 (2014).
- 3) 長内史也, 杉修一郎, 石山和志: 平成31年電気学会全国大会論文集, p. 146 (2019).
- 4) 大竹充, 川井哲郎, 二本正昭「発電装置」特願2022-086851 (2022年5月27日), 謝辞 日立金属株式会社の備前嘉雄様にアモルファス薄帯をご提供頂きました。

# 磁歪材料を使った振動発電デバイスの発電コイルの性能指数

川井哲郎・石川瑛士・中村優太・大竹 充・二本正昭  
(横浜国大)

Quality Factor of Power Generation Coil on the Vibration Power Generation using Magnetostriction Material

Tetsuroh Kawai, Eishi Ishikawa, Yuta Nakamura, Mitsuru Ohtake, and Masaaki Futamoto

(Yokohama Nat. Univ.)

**はじめに** 環境からエネルギーを取り込む、いわゆるエネルギーハーベスト型電源として磁歪材料を使った振動発電が有力視されている<sup>1)</sup>。この振動発電ではファラデーの法則に従って発電するので発電コイルの巻き数を多くすると発電電圧が高くなるが、内部抵抗も大きくなる。そのため、負荷抵抗での発電電力を最大にする発電コイルの設計が必要である。本報告では発電コイルの1Ω当たりの発電電圧に着目して、片持ち梁を使った振動発電デバイスの発電コイルの性能指数(1Ω当たりの発電電圧)を解析的に求める。

**解析方法** 非磁性片持ち梁にはCu基板(長さ:40mm,幅:10mm,厚さ:0.3mm),磁歪材料にはFe-B-Si系アモルファスリボン(厚さ:25μm)を想定した。片持ち梁の自由端に集中荷重が加わって梁がたわむと仮定して、梁表面の曲げ応力および磁歪材料の磁気弾性エネルギーを求めた。そのエネルギーにより磁歪材料の磁化状態が変化すると仮定した。発電には寄与するのは梁の長手方向の磁化変化であり、大きな圧縮応力が印可されても零に近づくが負にはならないと仮定した<sup>2)</sup>。発電コイルの効率はコイルが作る磁場の大きさが効率に対応すると仮定して計算した。

**解析結果と考察** 自由端のたわみを1.86mmとすると、固定端の曲げ応力は61.2MPa,この曲げ応力により生じる磁気弾性エネルギーは2.48kJ/m<sup>3</sup>であり、固定端で最も大きく、自由端に向けて低下する。このエネルギーと等しくなる磁気エネルギーを持つように磁歪材料が磁化されると仮定すると、arctangent関数近似した磁化曲線( $M_s=1.62$ T, $\mu_r=350$ )では有効磁場として75.7Oeが働いていることに相当する。コイル1ターン当たりの発電電圧は固定端から自由端に向けてFig.1に示すように変化する。したがって、固定端近くに集中してコイルを巻くと効率が良いかのように見える。しかし、コイルの感度(コイルを積層すると外周のコイルは感度が低下)を考慮すると、コイルの性能指数のコイル幅依存性はFig.2のようになる。いずれの巻き数においても固定端から梁の長さの1/2ないし2/3の長さにコイルを巻くと性能指数の高いデバイスが得られることがわかる。

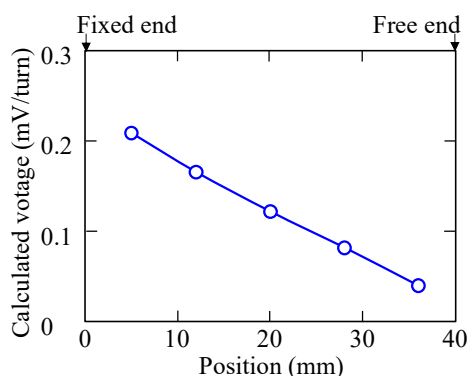


Fig. 1 Calculated generated voltage as a function of position.

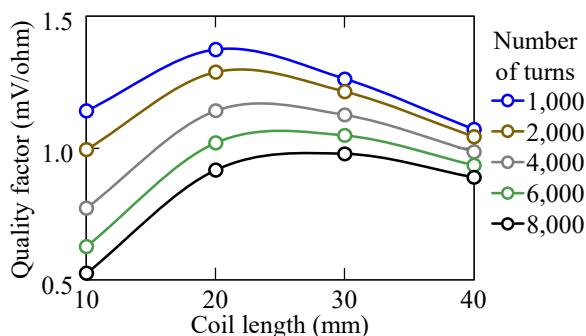


Fig. 2 Calculated quality factor as a function of coil length. The parameter is number of turns.

## 参考文献

- 1) 上野敏幸: 応用物理, **89**, 82-86 (2020).
- 2) T. Kawai, E. Ishikawa, Y. Nakamura, M. Ohtake, and M. Futamoto: to be published in INTERMAG 2023 Conference Paper.



# 垂直磁界アシスト式および逆磁歪式電磁誘導型振動発電デバイスの磁性体梁材料への電解めっき Fe-Co 合金厚膜の適用

中村優太<sup>1</sup>・明田俊祐<sup>1</sup>・大竹充<sup>1</sup>・鴨川宏幸<sup>2</sup>・川井哲郎<sup>1</sup>・二本正昭<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>横浜国大, <sup>2</sup>関東化成)

Application of Electroplated Fe-Co Alloy Thick Film to Magnetic Beam Material

in Perpendicular Magnetic Field Assisted and Inverse Magnetostrictive Electromagnetic Vibration Powered Generators

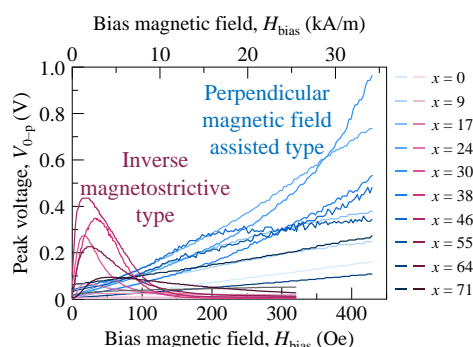
Yuta Nakamura<sup>1</sup>, Shunsuke Aketa<sup>1</sup>, Mitsuru Ohtake<sup>1</sup>, Hiroyuki Kamogawa<sup>2</sup>, Tetsuroh Kawai<sup>1</sup>, Masaaki Futamoto<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Yokohama Nat. Univ., <sup>2</sup>Kanto Kasei Co., Ltd.)

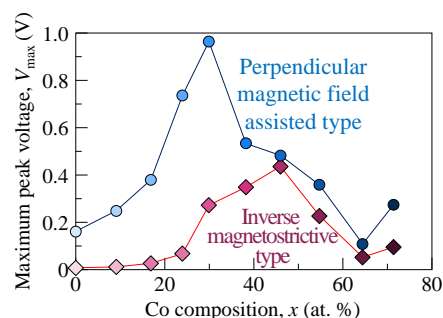
**はじめに** 垂直磁界アシスト<sup>1)</sup>および逆磁歪<sup>2-4)</sup>のいずれの方式の電磁誘導型振動発電デバイスにおいても、磁性体を含む梁材料が用いられ、その磁気特性は発電性能に大きな影響を与える。Fe-Co 合金は最大の飽和磁束密度を持つ代表的な軟磁性材料であり、垂直磁界アシスト式において大きな磁束変化が得られることが期待される。また、Fe-Co 合金は大きな磁歪を示すことから逆磁歪式に対しても有効であると考えられる。昨年度の学術講演会では、Cu 薄板の片面上に Fe-Co 合金厚膜を電解めっきすることにより形成した梁材料を用いて、逆磁歪式振動発電を行った結果を報告した<sup>5)</sup>。本研究では、組成が異なる Fe-Co 合金厚膜をめっきした梁材料を用いて、垂直磁界アシスト式および逆磁歪式の振動発電試験を行い、材料特性が発電性能に及ぼす影響について調べることを目的とした。

**実験方法** 膜形成には、陽極を Fe 板、陰極を Cu 薄板 (50 mm × 10 mm × 0.3 mm) とした電解めっき装置を用いた。めっき浴中の Fe と Co のイオン比率を調整することで膜組成を変化させた。形成しためっき膜の厚さは  $32 \pm 4 \mu\text{m}$  であった。膜の組成分析には EDS、結晶構造解析には XRD、磁気特性評価には VSM、磁歪測定には片持ち梁法を用いた。発電特性は、めっきした梁材料を片持ち状に固定し、検出コイル (抵抗: 1.2 k $\Omega$ , 巻数: 8000 回, 最内径: 12 mm × 16 mm, 全長: 40 mm) に挿入して、梁のみを強制振動させ、コイルの出力波形をオシロスコープで観察することにより評価した。このとき、垂直磁界アシスト式の試験では垂直方向に、逆磁歪式では長手方向にバイアス磁界をヘルムホルツコイルを用いて印加した。

**実験結果** Fig. 1 に垂直磁界アシスト式および逆磁歪式における出力電圧のバイアス磁界依存性を示す。垂直磁界アシスト式では、磁界の増加に伴い、出力電圧が増大している。一方、逆磁歪式では、低いバイアス磁界で出力電圧が極大を迎え、以後は徐々に減少していく傾向となった。したがって、バイアス磁界が小さいデバイスでは逆磁歪式が有効であるが、強いバイアス磁界を用いることが出来る場合、垂直磁界アシスト式でより大きな出力が得られることが分かる。Fig. 2 には、垂直磁界アシスト式および逆磁歪式におけるピーク電圧の Co 組成依存性を示す。垂直磁界アシスト式では軟磁気特性が優れる Fe<sub>70</sub>Co<sub>30</sub> の膜組成で、逆磁歪式では磁歪が大きくなる Fe<sub>54</sub>Co<sub>46</sub> の膜組成で、それぞれ最大の出力電圧となった。当日は、めっき膜の物性に基づき、組成と出力特性の関係について議論する。



**Fig. 1** Bias magnetic field dependences of peak voltages of perpendicular magnetic field assisted and inverse magnetostrictive vibration powered generators using Fe<sub>100-x</sub>Co<sub>x</sub> films with different compositions.



**Fig. 2** Compositional dependences of maximum peak voltages of perpendicular magnetic field assisted and inverse magnetostrictive vibration powered generators using Fe<sub>100-x</sub>Co<sub>x</sub> films with different compositions.

- 1) 大竹充, 川井哲郎, 二本正昭「発電装置」特願 2022-086851 (2022 年 5 月 27 日).
- 2) T. Ueno and S. Yamada: *IEEE Trans. Magn.*, **47**, 2407 (2011).
- 3) S. Fujieda, S. Suzuki, A. Minato, T. Fukuda, and T. Ueno: *IEEE Trans. Magn.*, **50**, 2505204 (2014).
- 4) 長内史也, 栢修一郎, 石山和志: 平成 31 年電気学会全国大会論文集, p. 146 (2019).
- 5) 明田俊祐, 石川瑛士, 中村優太, 大竹充, 川井哲郎, 二本正昭: 第 46 回日本磁気学会学術講演会概要集, p. 37 (2022).

# 垂直磁界アシスト式および逆磁歪式電磁誘導型振動発電デバイスの 磁性体梁材料への電解めっき Ni-Fe 合金厚膜の適用

明田俊祐<sup>1</sup>・中村優太<sup>1</sup>・大竹充<sup>1</sup>・鴨川宏幸<sup>2</sup>・川井哲郎<sup>1</sup>・二本正昭<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>横浜国大, <sup>2</sup>関東化成)

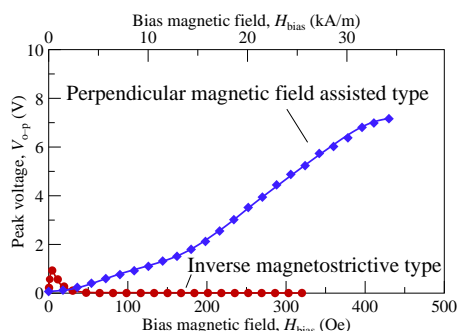
## Application of Electroplated Ni-Fe Alloy Thick Film to Magnetic Beam Material

in Perpendicular Magnetic Field Assisted and Inverse Magnetostrictive Electromagnetic Vibration Powered Generators  
Shunsuke Aketa<sup>1</sup>, Yuta Nakamura<sup>1</sup>, Mitsuru Ohtake<sup>1</sup>, Hiroyuki Kamogawa<sup>2</sup>, Tetsuroh Kawai<sup>1</sup>, Masaaki Futamoto<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>Yokohama Nat. Univ., <sup>2</sup>Kanto Kasei Co., Ltd.)

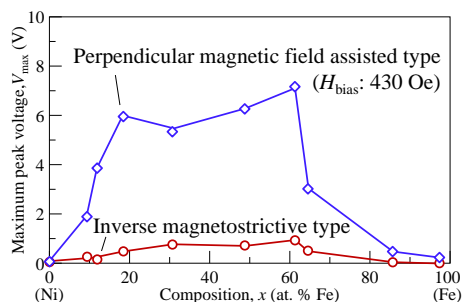
**はじめに** 垂直磁界アシスト式<sup>1)</sup>および逆磁歪式<sup>2-4)</sup>の電磁誘導型振動発電の出力特性は、用いる磁性体梁材料における磁束変化の容易性に影響を受けるため、磁気異方性エネルギーが小さい材料を用いることが有効であると考えられる。Ni-Fe合金は代表的な高透磁率材料であり、バルク状態では組成により $10^3 \text{ J/m}^3$ オーダーの低い結晶磁気異方性エネルギーを示す<sup>5)</sup>。これまで、著者らは、Cu薄板の片面にNi-Fe合金厚膜を電解めっきし、磁歪式デバイスの梁材料として用いることが出来ることを報告してきた<sup>6)</sup>。本研究では、組成の異なるNi-Fe合金膜をめっきした梁材料を用いて、垂直磁界アシスト式および磁歪式の発電評価を行い、材料特性が発電特性に及ぼす影響を系統的に調べた。

**実験方法** 膜形成には陽極がNi板、陰極がCu薄板(50 mm × 10 mm × 300 μm)の電解めっき装置を使用した。浴中のNiとFeイオンの比率を変えることで膜組成を変化させた。膜厚は $31 \pm 4 \mu\text{m}$ であった。構造解析にはXRD、磁気特性評価にはVSM、磁歪測定には片持ち梁法を用いた。発電性能の評価には、ヘルムホルツ・コイルにより外部からバイアス磁界を印加できる試験装置を用いた。めっきした梁材料の端から長手方向に10 mmの部分までを固定し、片持ちの状態とし、検出コイル(抵抗: 1223 Ω, 巻数: 8000回, 最内径: 16 mm × 12 mm, 全長: 40 mm)に挿入した。このとき、コイルは振動させず、梁のみを振動させた。また、梁に対して、垂直磁界アシスト式では垂直方向に、磁歪式では長手方向にバイアス磁界を印加した。

**実験結果** Fig. 1にNi<sub>39</sub>Fe<sub>61</sub>(at.%)膜をめっきした梁を約110 Hzで共振させたときにおける、垂直磁界アシスト式および逆磁歪式のピーク電圧のバイアス磁界依存性を示す。垂直磁界アシスト式では、バイアス磁界の増加に伴い、ピーク電圧が増加し、バイアス磁界が430 Oe時点で7.2 Vの出力が得られている。一方で、磁歪式では、バイアス磁界が4 Oeまではピーク電圧が増加していき、最大値となる0.9 Vの電圧が観測され、それ以降は減少していった。Ni-Feめっき膜の場合、垂直磁界アシスト式では磁歪式を大きく上回る出力が得られることが分かった。Fig. 2に最大ピーク電圧の組成依存性を示す。両方式においても最大ピーク電圧は組成に強く影響を受けていることが分かる。当日は、この因果関係をめっき膜の磁気・磁歪特性に基づいて詳細に議論する。



**Fig. 1** Bias magnetic field dependences of peak voltages of perpendicular magnetic field assisted and inverse magnetostrictive vibration powered generators using a Ni<sub>39</sub>Fe<sub>61</sub> film.



**Fig. 2** Compositional dependences of maximum peak voltages of perpendicular magnetic field assisted and inverse magnetostrictive vibration powered generators using Ni<sub>100-x</sub>Fe<sub>x</sub> films with different compositions.

- 1) 大竹充, 川井哲郎, 二本正昭「発電装置」特願 2022-086851 (2022年5月27日).
- 2) T. Ueno and S. Yamada: *IEEE Trans. Magn.*, **47**, 2407 (2011).
- 3) S. Fujieda, S. Suzuki, A. Minato, T. Fukuda, and T. Ueno: *IEEE Trans. Magn.*, **50**, 2505204 (2014).
- 4) 長内史也, 栢修一郎, 石山和志: 平成31年電気学会全国大会論文集, p. 146 (2019).
- 5) A. Chikazumi, *Physics of magnetism*, p. 145 (Wiley, Van Nostrand, New York, 1964).
- 6) S. Aketa, M. Ohtake, E. Ishikawa, Y. Nakamura, T. Kawai, and M. Futamoto: *AIP Adv.*, **13**, 035201 (2023).

## 複合アモルファスリボンを用いた振動発電

上倉 拓郎<sup>1,2\*</sup>, 後藤 太一<sup>2</sup>, 石山 和志<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>東北大学大学院 工学研究科,<sup>2</sup>東北大学 電気通信研究所)

Vibration energy harvesting using composite amorphous ribbon

Takuo Kamikura<sup>1,2\*</sup>, Taichi Goto<sup>2</sup>, Kazushi Ishiyama<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Graduate School of Engineering, Tohoku Univ.,<sup>2</sup>RIEC, Tohoku Univ.)

### はじめに

近年、IoT デバイスの動力源である電池の交換や廃棄に関する諸問題がネットワーク社会に対する大きな課題とされている<sup>1)</sup>。そこで電池の代替として注目されているのが環境発電である。本研究では特に、磁歪材料であるアモルファスリボンが持つ逆磁歪効果を利用した振動発電に注目してきた<sup>2)</sup>。また、これまで同種の研究で行われていた片持ち梁構造に代えて発電可能な振動の周波数帯域が広く、バイアス磁界の均一性にも優れた筒状にアモルファスリボンを成形した構造を提案した<sup>3)</sup>。本報告では、酸化防止や耐久性の向上を目的として紫外線硬化樹脂を用いて筒状アモルファスリボンを複合材料化し、応力印加時のBHループの測定・振動実験を行った。

### 実験方法

短冊状のアモルファスリボン(日立金属製 2605HB1M、20 mm × 100 mm × 25 μm)を筒状に丸め、軸方向に直流磁界を印加して磁場中熱処理を施し、残留応力の除去と磁気異方性の誘導を行った。そのアモルファスリボンを紫外線硬化樹脂に埋めることで複合材料化した。圧力印加下での磁気特性はBHループトレーサ<sup>3)</sup>を用いて測定した。Fig. 1は振動実験の概略図である。作製した試料にコイル(60 μm φ、3840 turn、880 Ω)を巻き、固定治具と加振機に挟むよう設置することで振動(軸方向の寸法変化)を与えた。このとき逆磁歪効果によりアモルファスリボン内の磁束が時間変化し、ピックアップコイルに電圧が誘起される。寸法変化量はレーザードップラー変位計(LDV)を用いて計測し、理論的な磁化変化量と発生電力を算出した。

### 結果・考察

Fig. 2にBHループの結果から算出した試料の静的な寸法変化量と磁化変化量の関係を示す。寸法変化量の増加に伴って磁化は減少した。Fig. 3に試料を700 Hzで振動させた際の、試料の寸法変化量の測定結果を示す。175 ppm程度の寸法変化量を持つことがわかり、Fig. 2から160 mT程度の磁化変化量があると推定できる。これらの測定値から算出される発電量は1.62 mWとなった。

### 参考文献

- 1) T. Ueno: *J. Insy. Elect. Engr. Jpn.*, 139, 22-25, (2019).
- 2) 長内史也, 栢修一郎, 石山和志, 平成31年電気学会全国大会講演論文集, 146, (2019).
- 3) 上倉拓郎, 後藤太一, 石山和志, 令和5年電気学会全国大会講演論文集, 119, (2023).

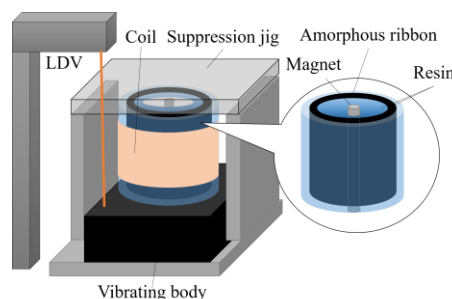


Fig. 1. Schematic diagram of the constructed setup of vibration power generation system.

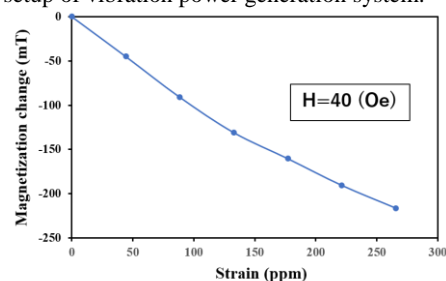


Fig. 2. Relationship between amount of strain and magnetization change.

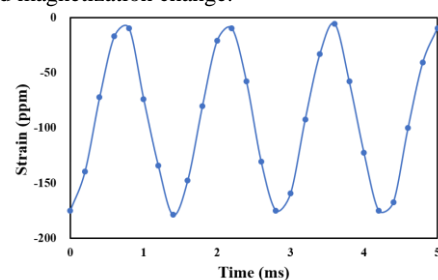


Fig. 3. Sample displacement at a frequency of 700 Hz.

## バイモルフ型振動発電を想定した 負磁歪軟磁性材料の開発に関する基礎検討

阿部宏恒<sup>\*,\*\*</sup>, 後藤太一<sup>\*\*</sup>, 直江正幸<sup>\*\*\*</sup>, 荒井賢一<sup>\*\*\*</sup>, 石山和志<sup>\*\*</sup>  
(\*東北大院 工学研究科, \*\*東北大 通研, \*\*\*電磁研)

Study on Development of Negative Magnetostrictive Soft Magnetic Material  
for Bimorph Vibration Power Generation

Hirohisa Abe<sup>\*,\*\*</sup>, Taichi Goto<sup>\*\*</sup>, Masayuki Naoe<sup>\*\*\*</sup>, Ken Ichi Arai<sup>\*\*\*</sup>, Kazushi Ishiyama<sup>\*\*</sup>  
(\*Graduate school of engineering, Tohoku Univ., \*\*RIEC, Tohoku Univ., \*\*\*Res. Inst. for EM Mater.)

### はじめに

近年、環境振動を電力に変換する振動発電が注目を集めている。中でも、強磁性材料の逆磁歪効果を用いた発電デバイスが注目されている。現在検討されている逆磁歪式振動発電デバイスは、正磁歪材料を用いたユニモルフ型カンチレバーが主流である<sup>2)</sup>。しかし、正磁歪材料の裏面に負磁歪材料を接合したバイモルフ型カンチレバーにすることで、より多くの磁化変化量が得られると考える。ところが、多くの材料開発が進められている正磁歪材料に比べて、負磁歪材料の応用へ向けた検討は少ない。そこで、我々は負磁歪材料の中でも $-10^3$  ppmを超える大きな磁歪量と比較的大きな電気機械結合係数を有するSmFe<sup>3)</sup>非晶質薄膜に着目している。非晶質化により軟磁気特性を改善し磁化回転を容易にすることで、高透磁率バイモルフ型発電デバイスの実現を目指している。本報告では、負磁歪軟磁性材料の保磁力・磁歪定数・磁化回転に着目しバイモルフ型発電デバイスへの応用を検討した結果を述べる。

### 実験方法

SmFeの成膜には、高周波マグネトロンスパッタ装置を使用した。Feターゲット上にSmチップを配置した複合ターゲットのSmチップ数を変え、Sm組成を7~67 at.%の範囲で変化させた。膜の結晶構造をXRDで保磁力 $H_c$ をVSMにより計測した磁化曲線から評価した。また、Sm組成が13および20 at.%の試料の磁歪量 $\lambda$ を、強度が最大3 kOeの回転磁界中で光てこ法を用いて計測した。

### 実験結果

Fig. 1に $H_c$ の組成依存性を示す。XRDで結晶ピークの観測されたSm組成が8 at.%以外の組成で、150 Oe以下の低保磁力化に成功した。Fig. 2に特に保磁力の小さいSm組成近傍である13および20 at.%の試料の $\lambda$ と磁界強度 $H_{ex}$ の関係を示す。 $H_{ex}$ を3 kOeにすると、 $\lambda$ はSm組成が13 at.%の時よりもSm組成が20 at.%の時の方が大きくなったが、曲線はSm組成が20 at.%の時よりもSm組成が13 at.%の時の方が弱い磁界で立ち上がった。誘導起電力の増加には磁歪量よりも磁化回転の容易さが重要であり、Sm組成が13~14 at.%の試料が発電デバイスへの応用に最適である。

当日はSm組成が13~14 at.%の試料を用いたデバイスの発電特性についても議論する。

### 参考文献

- 1) I. Kanno: *J. Surf. Finish. Soc. Jpn.*, **67**, pp. 348-352 (2016).
- 2) T. Ueno: *Materia Japan.*, **59**, pp. 6-9 (2020).
- 3) A. E. Clark and H. Eda: "Giant magnetostrictive material", pp. 262-264 (1995)

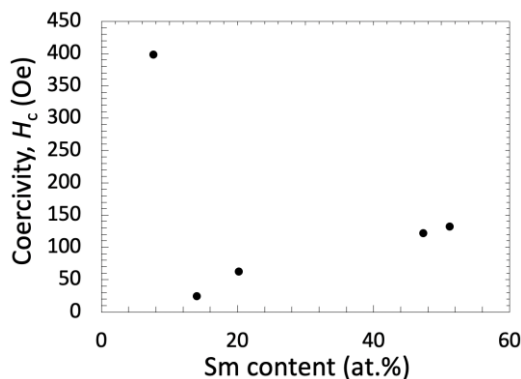


Fig. 1 Composition dependence of coercivity.

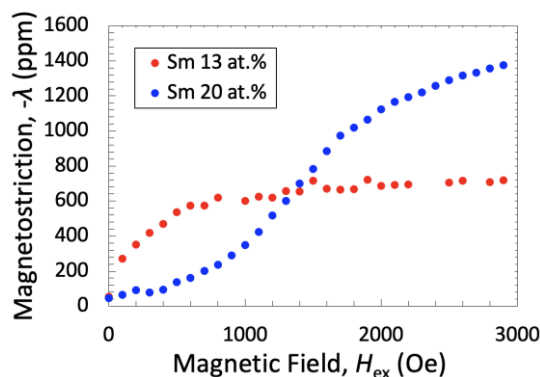


Fig. 2 Relationship between magnetostriction and rotating magnetic field strength when Sm content is 13 and 20 at. %.

## 負の磁歪材料のユニモルフ U 字型デバイスへの応用

杉山 太一、岡田 拓、清野 智史、中川 貴、大石 佑治、牟田 浩明、藤枝 俊  
(大阪大学 大学院 工学研究科)

Application of negative magnetostrictive materials to unimorph U-shaped device

T. Sugiyama, T. Okada, S. Seino, T. Nakagawa, Y. Ohishi, H. Muta, S. Fujieda

(Graduate School of Engineering, Osaka Univ.)

### はじめに

様々なモノがインターネットを通じて繋がる社会の実現に向けて、IoT デバイスの普及が年々進んでいる。これらの電源として、従来、圧電式やエレクトレット式などの振動エネルギーハーベスティングが盛んに研究されており、近年開発された逆磁歪効果を用いた方式が注目を集めている。様々なデバイスが開発されているなか、ユニモルフ U 字型デバイスは高い耐久性と大きな電圧を示す<sup>1)</sup>。本デバイスを用いた発電方法において、正の飽和磁歪を持つ材料の研究は多く行われているが<sup>2)3)</sup>、負の飽和磁歪を持つ材料の研究はほとんど行われていない。そこで、振動発電に用いる材料の選択肢を広げるため、負の飽和磁歪を持つ Ni、Fe および Co をユニモルフ U 字型デバイスに応用し、振動発電特性を評価した。

### 実験方法

本研究ではユニモルフ U 字型デバイス<sup>1)</sup> (0.5 mm 厚の鉄フレーム、コイル 3638 巻) に Ni、Fe および Co を逆磁歪材料 (寸法  $16 \times 4 \times 0.5 \text{ mm}^3$ ) として貼り付け、共振周波数  $f = 100 \text{ Hz}$  で短足側の変位  $d$  が 2.0 mm になるように強制振動させ (Fig. 1(a)および(b)参照)、その際にコイルに発生する電圧  $V_{op}$  を測定した。

### 実験結果

Ni (飽和磁歪  $\lambda_s = -37 \text{ ppm}$ ) をフレームの表側 (Fig. 1(a)) に貼り付けて行った振動発電試験の結果を Fig. 1(c) (Ni front) に示す。発生電圧は、比較のために行ったフレームのみの値 (frame only) よりも小さい。一方、Ni をフレームの裏側 (Fig. 1(b)) に貼り付け、同様の条件で振動発電試験を行った結果、Fig. 1(c) (Ni back) に示すようにフレームのみの値よりも大きな電圧が得られた。また、得られた電圧の大きさから、以下のファラデーの法則を用いて、Ni の磁束密度変  $\Delta B$  を評価した。

$$V_{op} = -N(d\Phi/dt) = -NS(dB/dt)$$

ここで、 $N$  はコイルの巻き数、 $\Phi$  は磁束、 $S$  は試料の断面積である。その結果、Ni の  $\Delta B$  の最大値は、表側および裏側貼り付けの場合でそれぞれ 0.09 T および 0.24 T であった。つまり、負の飽和磁歪を持つ Ni はフレームの裏側貼り付けにより、大きな  $\Delta B$  を示す。また、Fe および Co を用いた振動発電試験においても、Ni の場合と同様の結果が得られた。したがって、ユニモルフ U 字型デバイスを用いた振動発電において、負の磁歪材料は裏側貼り付けが効果的である。

### 参考文献

- 1) T. Ueno, AIP Adv., **9** (2019) 035018.
- 2) S. Fujieda et al., IEEE Trans. Magn., **50** (2014) 2505204.
- 3) T. Okada et al., Mater. Trans., **62** (2021) 1798.

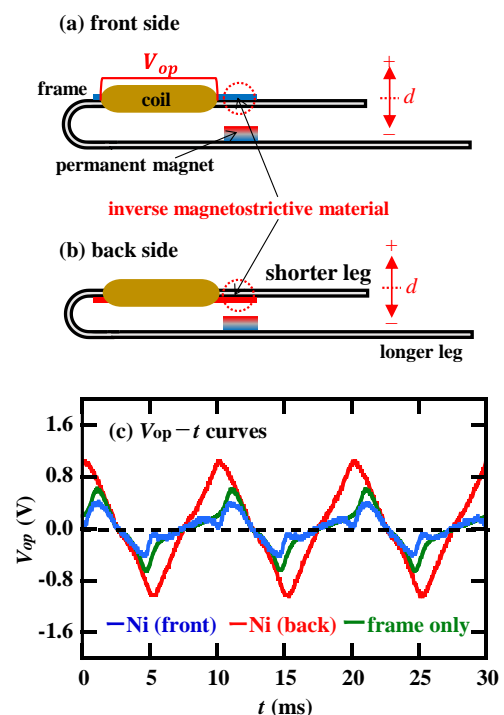


Fig. 1 Schematics of the unimorph U-shaped devices of (a) the front side and (b) the back side setting. (c) Time  $t$  response of open-circuit voltage  $V_{op}$  of the Ni unimorph core. The date of the frame without sample are also shown.

## Cu<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の磁歪特性に及ぼす Cu の Zn 部分置換の影響

藤枝 俊、藤原康太、小杉静花、清野智史、中川 貴  
(阪大 工学研究科)

Influence of partial substitution of Zn for Cu on magnetostrictive properties of Cu<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>

S. Fujieda, K. Fujiwara, S. Kosugi, S. Seino, T. Nakagawa  
(Graduate School of Engineering, Osaka Univ.)

### はじめに

CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 系フェライトは、室温において立方晶スピネルフェライトの中でも特異的に大きな負の磁歪を示す。最近、我々は CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の Co を Cu で部分置換することにより、磁歪特性が飛躍的に向上することを見出した<sup>1)</sup>。Cu<sub>0.6</sub>Co<sub>0.4</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の磁歪特性は、比較的高印加磁場では市販の磁歪材料である Galfenol よりも優れているが、比較的低印加磁場では同程度以下である<sup>1)</sup>。本研究では、比較的低印加磁場での磁歪特性の向上に向けて、Zn<sub>x</sub>Cu<sub>0.5-x</sub>Co<sub>0.5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の磁歪特性を調べた。

### 実験方法

ZnO、Cu<sub>2</sub>O、CoO および α-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を出発原料として用い、それらを混合してペレット化した後、大気中において 950 °C で 20 時間の熱処理を施して立方晶スピネル構造の Zn<sub>x</sub>Cu<sub>0.5-x</sub>Co<sub>0.5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の単相試料を作製した。その円盤状ペレットの上面に歪みゲージを貼り付け、面内に磁場を印加して磁歪特性を評価した。

### 実験結果

Zn<sub>x</sub>Cu<sub>0.5-x</sub>Co<sub>0.5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 試料の  $x = 0.0$  および  $0.1$  の室温における磁化曲線を Fig. 1 に示す。Cu の Zn 部分置換により、飽和磁化は増加する。5 K においても、同様の傾向が観察された。立方晶スピネル構造において、8 個の四面体サイトと 16 個の八面体サイトの磁気モーメントは反強磁性結合する。2 価の Cu および Co は主に八面体サイトを占有し、3 価の Fe が残りの八面体サイトと四面体サイトを占有しているとすると、磁気モーメントを持たない 2 価の Zn は四面体サイトを占有すると推察される。室温における歪みの磁場依存性を Fig. 2 に示す。縦軸は、測定方向に対し平行および垂直に磁場を印加して測定した歪みの差の絶対値  $|\Delta L/L_{\parallel} - \Delta L/L_{\perp}|$  を示す。磁場印加により、 $|\Delta L/L_{\parallel} - \Delta L/L_{\perp}|$  は極大を示した後、徐々に減少して飽和傾向を示す。Zn 部分置換により、最大印加磁場での値は減少する。しかし、 $|\Delta L/L_{\parallel} - \Delta L/L_{\perp}|$  が極大に達する印加磁場は減少し、約 2.7 kOe 以下の比較的低磁場では Zn 部分置換前よりも大きな値を示す。つまり、Cu の Zn 部分置換により、低磁場印加での磁歪特性は向上する。

### 参考文献

- 1) S. Kosugi, M. Hisamatsu, Y. Ohishi, H. Muta, S. Seino, T. Nakagawa, S. Fujieda, Mater. Trans. (2023) in press.

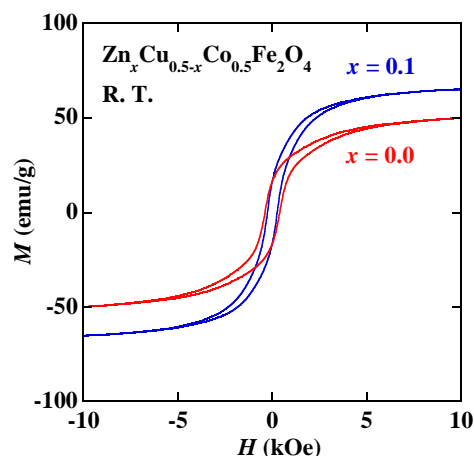


Fig. 1 Magnetization curves at room temperature of Zn<sub>x</sub>Cu<sub>0.5-x</sub>Co<sub>0.5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> with  $x = 0.0$  and  $0.1$ .

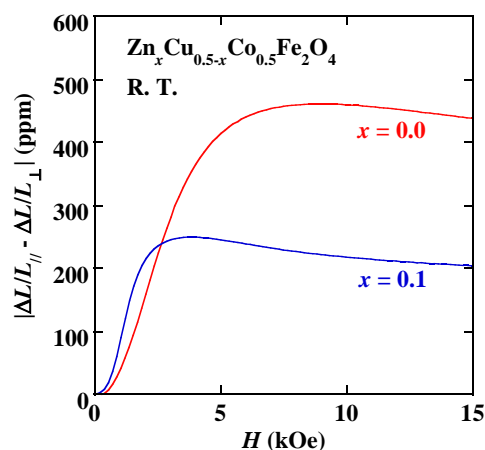


Fig. 2 Magnetic field dependence of strain  $|\Delta L/L_{\parallel} - \Delta L/L_{\perp}|$  at room temperature of Zn<sub>x</sub>Cu<sub>0.5-x</sub>Co<sub>0.5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> with  $x = 0.0$  and  $0.1$ .

## 磁性窒化物薄膜における磁歪と磁気ダンピングの相関

伊藤啓太<sup>1</sup>、Ivan Kurniawan<sup>2</sup>、三浦良雄<sup>2</sup>、遠藤恭<sup>3</sup>、関剛斎<sup>1</sup>

(東北大金研<sup>1</sup>、物材機構<sup>2</sup>、東北大工<sup>3</sup>)

Correlation between magnetostriction and magnetic damping in magnetic nitride films

Keita Ito<sup>1</sup>, Ivan Kurniawan<sup>2</sup>, Yoshio Miura<sup>2</sup>, Yasushi Endo<sup>3</sup>, Takeshi Seki<sup>1</sup>

(IMR, Tohoku Univ.<sup>1</sup>, NIMS<sup>2</sup>, Grad. Sch. Eng. Tohoku Univ.<sup>3</sup>)

**【背景】** 磁歪材料は、振動発電素子やトルクセンサに応用され、近年のフレキシブルスピントロニクスへの展開でも注目されているが、大きな磁歪を示す強磁性材料は Fe-Ga 合金や Tb-Dy-Fe 合金など希少金属や希土類元素を含むものが多い。ごく最近、資源が豊富な元素のみで構成される強磁性窒化鉄の Fe<sub>4</sub>N が、Co や Ni 等の典型的な単体強磁性金属よりも数倍大きい磁歪定数( $\lambda_{100} = -75$  ppm)を示すことが報告された<sup>1)</sup>。したがって、強磁性窒化物は希少金属・希土類フリー高磁歪材料として期待できるが、更なる高磁歪化に向けた材料設計指針は明らかになっていない。本研究では、第三元素として Mn および Co を添加した Fe<sub>4</sub>N 薄膜における磁歪を調べた。第三元素の添加量を系統的に変えて試料を作製し、 $\lambda_{100}$ 、飽和磁化( $M_s$ )、磁気異方性定数( $K_1$ )、ダンピング定数( $\alpha$ )、フェルミ準位における電子の状態密度( $D$ )の大きさとの相関関係を調べることで、 $\lambda_{100}$  の大きさを決める物理量を明らかにし、高磁歪材料を得るための指導原理の確立を試みた。

**【実験方法】** 分子線エピタキシー法により、SrTiO<sub>3</sub>(001)基板上に、Fe<sub>4</sub>N、Fe<sub>4-x</sub>Mn<sub>x</sub>N( $x = 0.1, 0.4, 1.0$ )、Fe<sub>4-y</sub>Co<sub>y</sub>N( $y = 0.2, 0.5, 0.8, 1.7, 2.2$ )薄膜を作製した。成膜温度は 450 °C を基本としたが、Fe<sub>4-y</sub>Co<sub>y</sub>N( $y = 1.7, 2.2$ )薄膜については窒素の脱離が生じたため、温度を 400 °C に下げた。試料の構造は X 線回折測定と反射高速電子回折により評価した。 $\lambda_{100}$  は光てこ法により測定した。窒化物薄膜の膜面内方向に最大 175 Oe の回転外部磁場を印加し、反射レーザー光の変位量を測定することで  $\lambda_{100}$  を測定した。 $M_s$  および  $K_1$  は振動試料型磁力計により、膜面内 [100] 方向および [110] 方向に外部磁場を印加し、磁化曲線を測定することで測定した。 $\alpha$  は 1 ポート型のコプレーナウェーブガイドとベクトルネットワークアナライザを用いた強磁性共鳴法により測定した。1 ~ 25 GHz の高周波および膜面内 [100] 方向に 200 ~ 2400 Oe の外部磁場を印加し、得られた共鳴ピークの線幅の外部磁場依存性から  $\alpha$  を算出した。いずれの測定も、室温において実施した。

**【結果】** 構造評価の結果、Fe<sub>4</sub>N、Fe<sub>4-x</sub>Mn<sub>x</sub>N、Fe<sub>4-y</sub>Co<sub>y</sub>N 薄膜のエピタキシャル成長を確認できた。 $\lambda_{100}$  は Fe<sub>4</sub>N において報告値を超える -110 ppm を示したが、Mn または Co を添加することで絶対値が減少した。 $|\lambda_{100}|$ 、 $M_s$ 、 $|K_1|$ 、 $\alpha$  の添加元素濃度依存性を比較したところ、 $|\lambda_{100}|$  と  $\alpha$  の間に明瞭な正の相関関係が見られた。 $\alpha$  には resistivity-like 項と conductivity-like 項があり<sup>2)</sup>、理論式によれば<sup>3)</sup>、前者は  $\alpha \propto \xi^2 D / \tau M_s$ 、後者は  $\alpha \propto \xi^2 D \tau / M_s$  で表される。 $\xi$  はスピン軌道結合定数、 $\tau$  は電子散乱の緩和時間である。 $|\lambda_{100}|$  と  $\alpha$  の共通項として  $\xi$  が大きく寄与している場合は、 $|\lambda_{100}|$  と  $\alpha$  に加えて  $|K_1|$  との間にも正の相関関係が見られるはずであるが、そのような相関は得られなかったことから、 $\xi$  の寄与だけでは  $|\lambda_{100}|$  と  $\alpha$  の正の相関を説明できない。また  $M_s$  の変化も  $\alpha$  の変化とは違う傾向を示した。 $|\lambda_{100}|$  と  $\alpha$  の共通項として  $\tau$  が大きく寄与していると仮定した場合、 $\alpha$  の機構が resistivity-like が主であれば、 $|\lambda_{100}|$  と  $\alpha$  とともに  $1/\tau$  の依存性が想定される。格子系とスピン系の結合の強い材料では、 $\tau$  は短く、 $|\lambda_{100}|$  は大きく、 $\alpha$  は大きくなることを意味している。講演では、 $D$  の添加元素濃度依存性および  $\alpha$  における conductivity-like 項の寄与について第一原理計算を用いて調べることで上記の仮定を検証し、より大きな磁歪定数を実現するための材料設計指針を議論する。

**【参考文献】** 1) Y. Maeda *et al.*, 信学技報 **121**, MRIS2021-7, 6 (2021). 2) S. M. Bhagat and P. Lubitz, Phys. Rev. B **10**, 179 (1974). 3) V. Kamberský, Can. J. Phys. **48**, 2906 (1970).

# 直接および間接測定による逆磁歪効果に起因した磁束密度変化の比較

岡田 拓、藤枝 俊、清野智史、中川 貴  
(阪大工)

Comparison of magnetic flux density change due to inverse magnetostrictive effect between direct and indirect measurements

T. Okada, S. Fujieda, S. Seino, T. Nakagawa  
(Graduate School of Engineering, Osaka Univ.)

## はじめに

逆磁歪効果を利用した振動発電は、IoT デバイスの次世代電力源として注目されている<sup>1)</sup>。優れた発電特性を実現するには、一定磁場中での応力印加により、逆磁歪効果に起因して大きな磁束密度変化を示す材料が求められる。新規材料開発のためには適切な材料評価が必要だが、従来は一定応力中での磁場印加により測定した磁化曲線の応力依存性から、間接的に磁束密度変化が評価されている<sup>2)</sup>。そこで本研究では、一定磁場中での応力印加による磁束密度変化の直接測定を実施し、従来法の間接測定から得た値と比較した。

## 実験方法

試料には  $50 \times 5 \times 0.5 \text{ mm}^3$  の圧延まま Fe-70 at.% Co 合金 (東北特殊鋼 (株) 提供) を用いた。試料にピックアップコイルを取り付け、Fig.1 (a) に示すように、引張試験機により動的または静的な引張応力を印加した。また、試料の外側に設置したソレノイドコイルにより交流または直流磁場を印加した。間接測定では静的応力印加中に交流磁場を印加し、直接測定では直流磁場印加中に動的応力を印加することで磁束密度変化を評価した。

## 実験結果

間接測定では、無印加応力状態と 160 MPa の引張応力を印加した状態で磁化曲線を測定し、磁束密度変化  $\Delta B$  を求めた。間接測定により得た磁場増加過程と減少過程における  $\Delta B$  の磁場依存性を Fig.1 (b) に示す。間接測定により求めた  $\Delta B$  は、磁場の増加に伴い 0.43 T のピークを示し、その後減少する。磁場が 0 から 40 mT の範囲では、磁場増加過程と減少過程で  $\Delta B$  値が異なり、ヒステリシスの影響を示す。直接測定では、一定磁場を印加した状態で、160 MPa の引張応力を印加した際に発生する電圧から  $\Delta B$  を求めた。Fig.1 (c) に示すように、直接測定により得た  $\Delta B$  のピーク値は 0.31 T であり、間接測定により得た値より小さい。また、直接測定により求めた  $\Delta B$  においても磁場増加過程と減少過程で差が表れるが、間接測定と比べるとその差はわずかであり、ヒステリシスの影響は小さい。このような逆磁歪効果に起因した  $\Delta B$  の違いは、間接測定と直接測定における磁壁移動の違いに起因すると推察される。

## 参考文献

- 1) T. Ueno *et al.*, IEEE Trans. Magn., **47** (2011) 2407.
- 2) S. Inoue *et al.*, AIP Adv., **11** (2021) 069901.

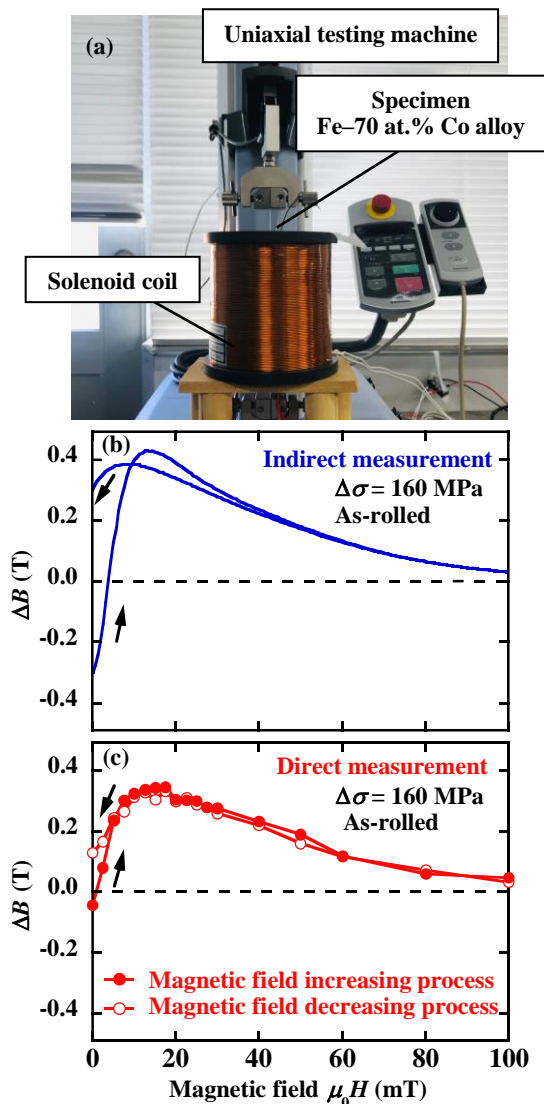


Fig.1 (a) Photograph of setup to evaluate the magnetic flux density change,  $\Delta B$ , in indirect and direct measurements. Magnetic field,  $\mu_0 H$ , dependence of  $\Delta B$  obtained by (b) indirect and (c) direct measurements.



# 時間変調メタマテリアルに向けたスピン注入透磁率制御

児玉俊之<sup>1</sup>, 清水蓮也<sup>2</sup>, 菊池伸明<sup>3</sup>, 岡本聡<sup>3,4</sup>, 大野誠吾<sup>2</sup>, 富田知志<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup>東北大学教機構、<sup>2</sup>東北大理、<sup>3</sup>東北大多元研、<sup>4</sup>東北大 CSIS)

Spin-injection Induced Permeability Control for Time-varying Metamaterials

Toshiyuki Kodama<sup>1</sup>, Renya Shimizu<sup>2</sup>, Nobuaki Kikuchi<sup>3</sup>, Satoshi Okamoto<sup>3,4</sup>, Seigo Ohno<sup>2</sup>,  
Satoshi Tomita<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup>IEHE, <sup>2</sup>Dept. of Physics, <sup>3</sup>IMRAM and <sup>4</sup>CSIS, Tohoku Univ.)

## はじめに

人工物質であるメタマテリアルでは、誘電率や透磁率( $\mu$ )を空間的に制御することで、天然物質では実現困難な負の屈折率や隠れ蓑を生み出してきた。一方近年では時間領域で屈折率を制御する時間変調メタマテリアルが注目されている。我々は磁性体を用いて、 $\mu$ を高周波で時間変調するメタマテリアルの実現を目指している。これによってマイクロ波をミリ波~サブ THz 光に周波数変換する新たな無線通信用光源が実現される。前回の報告では、 $\mu$ が時間変化する媒質を電磁波が通過すると、その周波数が変換されることを数値計算で示した[1]。今回は実験的に、スピントルク強磁性共鳴 (ST-FMR) を起こした NiFe 合金細線の $\mu$ が、スピン注入によって制御できることを示す[2]。

## 試料作製とスピントルク強磁性共鳴

ノンドーパ Si 基板にシード層として Ta(3 nm)を成膜し、その上に NiFe (2 nm)/Pt(5 nm)をスパッタリング成膜した。その後、電子線描画とエッチングで  $5 \mu\text{m} \times 25 \mu\text{m}$  の細線に加工し、両端に金電極を作製した (図 1 挿入図)。電極から NiFe 細線に 6 GHz の交流電流を流し磁化の一斉歳差運動である ST-FMR を励起する。このとき異方性磁気抵抗 (AMR) 効果により電極間に直流電圧  $V_{\text{AMR}}$  が生じる。

## 結果と考察

$V_{\text{AMR}}$  の  $H_{\text{ext}}$  依存性を図 1 に示す。直流電流無しでは、黒線で示すように 60 mT 付近に ST-FMR が観測できる。ここに直流電流  $I_{\text{dc}}$  を印加し、Pt 層からの直流スピン流を NiFe 層に注入した。すると赤線 (青線) で示すように、 $I_{\text{dc}} > 0$  ( $< 0$ ) の場合には信号線幅が狭く (広く) なり、信号ピーク位置が高磁場側 (低磁場側) にシフトした。実験的に得られた ST-FMR 信号線幅とピーク位置の  $I_{\text{dc}}$  による変化量を用いて、 $I_{\text{dc}}$  が +20 mA から -20 mA における NiFe 細線の比透磁率の実部 ( $\mu'_r$ ) を計算した。周波数と  $I_{\text{dc}}$  に対して計算された  $\mu'_r$  を図 2(a) に表示する。破線で示すように  $\mu'_r$  の共鳴周波数が、 $I_{\text{dc}}$  の増加とともに高周波シフトし、強度も増大している。図 2(a) から  $I_{\text{dc}} = \pm 20$  mA における  $\mu'_r$  を抜き出し、図 2(b) に示す。5.74 GHz に着目すると、 $I_{\text{dc}}$  を  $\pm 20$  mA で切り替えることで、 $\mu'_r$  が 0.4 と 17.8 の間で切り替え可能であることが分かる。したがって  $I_{\text{dc}}$  を高周波で変調することで、 $\mu$  の高周波時間変調の実現が期待される。講演では、 $\mu$  の変調媒質を用いた周波数変換の数値計算についても紹介する。

**謝辞** 有益な議論を交わした金森義明博士に、数値計算で助言を頂いた黒澤裕之博士に感謝致します。本研究は JST-CREST (JPMJCR2102) によって支援されています。

[1] 第 46 回日本磁気学会学術講演会 06pC-8, [2] T. Kodama et al., PRAppI. 19, 044080 (2023).

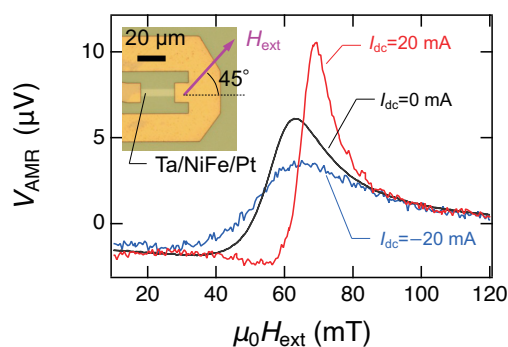


Fig. 1 : ST-FMR signals with  $I_{\text{dc}} = 0, \pm 20$  mA. Inset: sample photograph.

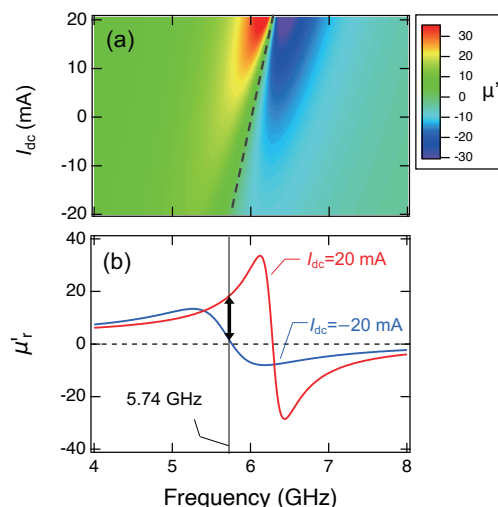


Fig. 2 : (a) 2D plot of real part of magnetic permeability ( $\mu'_r$ ) under dc magnetic field of 58.4 mT. (b)  $\mu'_r$  spectra with  $I_{\text{dc}} = \pm 20$  mA.

# らせん磁性体中の磁化構造に対する数値的研究

金田純、大江純一郎、美藤正樹\*1、大隈理央\*2

(東邦大、\*1 九工大、\*2 物材機構)

Numerical study of magnetization structure in helical magnetic materials

J. Kaneta, J. Ohe, M. Mito, M. Okuma

(Toho Univ., Kyushu Institute of Technology univ., NIMS.)

## はじめに

強磁性結合と 1 軸 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用が共存する磁性体中では、螺旋磁化構造が形成される。さらに、螺旋軸に垂直な磁場を印加することによって、カイラルソリトン格子と呼ばれる磁化構造ができる。そこでは、ねじれた磁化構造がソリトンとしてふるまいトポロジカルに安定のため、磁化曲線はヒステリシスを示す。微少薄膜試料を用いた実験ではヒステリシスが観測されているが、バルク試料ではヒステリシスは観測されていない[1]。この違いを明らかにするため、今回は磁化配置を 3 次元系にし、磁化構造の磁場掃引による変化を数値シミュレーションを用いて解析した。

## 解析方法

古典ハイゼンベルグ模型を用いて、磁化のダイナミクスを表す Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式を数値的に解いた。最近接相互作用と DM 相互作用、磁気異方性効果を用いて螺旋軸に対して垂直方向に磁場を印加し、磁化曲線の計算を行った。また、有限温度の効果として、揺動散逸定理から求められるランダム磁場を印加した。3 次元系のモデルはスピンを六方細密構造のように配置し、ab 平面を三角格子、c 軸を三角格子に対し垂直方向にとり計算を行った。(Fig.1)

## 解析結果

薄膜試料を再現した 2 次元正方格子のモデルでは、増磁過程において、トポロジカルに安定なねじれた磁化構造は解消されず、ある閾磁場において、強制強磁性状態になる。減磁過程においては、ねじれた磁化構造は系の端からしか生成することができず、ゼロ磁場近くの閾磁場において螺旋磁化構造になる。このため磁化曲線はヒステリシス構造になる。2 次元正方格子のモデルを層状に重ねた 3 次元モデルでも同様に磁化曲線にヒステリシス構造が見られた。一方、六方細密構造のようにスピンを配置したモデルではヒステリシス構造を小さくすることができた。この違いは薄膜とバルク結晶を用いた実験結果の違いを説明できる可能性がある。発表では、らせん構造の出入りの仕方、相互作用の大きさを変化させた場合の結果などを報告する。

## 参考文献

1) M. Mito et al., Phys. Rev. B 97, 024408 (2018).

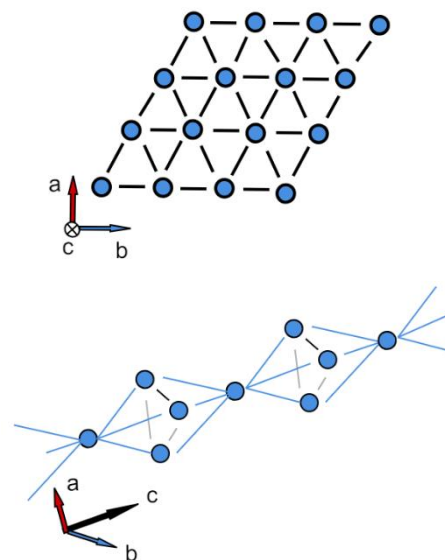


Fig.1 Schematic diagram of the calculation model. Spins arranged like a hexagonal miniature structure.

## 単一磁区に対する反転磁区の確率的生成

Fangfei Luo<sup>1</sup>, 豊木研太郎<sup>1,2,3</sup>, 三俣千春<sup>4</sup>, 中谷亮一<sup>1,2,3</sup>, 白土 優<sup>1,2,3</sup>

(1 大阪大学大学院工学研究科, 2 大阪大学 CSRN

3 大阪大学先導的学際研究機構, 4 東京理科大先進工学部)

Direct observation and stochastic analysis on thermally activated nucleation of individual magnetic domain

Fangfei Luo<sup>1</sup>, Kentaro Toyoki<sup>1,2,3</sup>, Chiharu Mitsumata<sup>4</sup>, Ryoichi Nakatani<sup>1,2,3</sup> and Yu Shiratsuchi<sup>1,2,3</sup>

(1 Grad. Sch. Eng., Osaka Univ., 2 CSRN, Osaka Univ., 3. OTRI, Osaka Univ., Tokyo Univ. Of Sci.)

**緒言** 有限温度における磁化反転は、熱活性過程による確率的なプロセスであり、有限温度における保磁力メカニズムの理解を困難にしている一つの原因となっている。また、磁性材料の磁化反転プロセスが一斉回転を示す一部の系を除いて反転磁区生成と磁壁移動によることは周知の事実である。これまでに、反転磁区生成と磁壁移動の確率的生成過程については、ナノ磁性薄膜や永久磁石において、様々な研究が進められているが、多くの研究では、主として磁化反転体の集合体からの磁気シグナルを統計的に解析する手法が用いられており、単一の磁化反転体に対する確率的反転磁区生成などを直接的に観察した例は極めて限られている。これは、磁化反転プロセスにおける反転磁区生成箇所や磁壁移動がトライアルによって、必ずしも同一にならないことが一因であると考えられる。我々は、Pt/Co/Au/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Pt 積層膜において生成される磁区構造が外部磁場の印加・除去に対してロバストであり、また、外部磁場強度を一定に保持した際に反転磁区生成が時間的に遅れて生成することを報告してきた。[1] 本研究では、この知見を利用して、単一の磁区に対するタイムラプス磁区観察により、反転磁区生成の潜伏時間を直接観測し、確率過程に基づいて解析した結果について報告する。

**実験方法** マグネトロンスパッタリング法を用いて、Pt(2 nm)/Co(0.6 nm)/Au(1.0 nm)/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(130 nm)/Pt(20 nm)を作製した。基板には、 $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001)単結晶基板を用いた。紙面の都合上、各層の作製条件の詳細は、既報[1]などを参照されたい。各層の結晶配向性は、反射高速電子回折と X 線回折によって評価し、交換バイアスを生成させるための反強磁性 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 層が[11\*0]双晶界面を持つ(0001)薄膜を形成していることを確認しており、この結晶配向では Cr スピン方向は膜面垂直方向であることが予測される。磁気特性評価には、振動試料型磁力計 (VSM)、磁気光学 Kerr 効果 (MOKE) 測定装置、MOKE 顕微鏡を用いた。特に、反転磁区生成過程のタイムラプス測定 (測定間隔 1/60 秒) については、MOKE 顕微鏡内に DC 磁場印加用の永久磁石とパルス磁場印加用のコイルを設置することで、磁化を飽和させた後の磁気緩和過程を観察できるシステムを構築した。DC 磁場強度は、永久磁石の種類と試料との距離によって、60 - 190 Oe で変化させた。DC 磁場に重畳させたパルス磁場は、パルス幅 1/60 秒、パルス高さ約 500 Oe とした。測定温度は、ペルチェ素子によって 278 - 281 K の範囲で制御した。

**実験結果** 磁化曲線測定により、作製した薄膜は垂直磁気異方性を示し、また、284 K 以下で垂直交換バイアスを示す。室温 (~295 K) で交流消磁した後、ゼロ磁場冷却することで、磁区毎に交換バイアスの符号が異なる双方向の交換バイアスが現れる。この状態での磁区構造は、磁場の印加前後でロバストであり、磁化を飽和させた後も、磁場を除荷することで初期状態の磁区構造が再現される。磁化飽和後の磁区構造の回復過程を MOKE 顕微鏡によるタイムラプス観察した結果、磁区構造の回復過程は反転磁区生成と磁壁移動によって生じることが分かった。また、反転磁区の生成においては、DC 磁場と温度に依存した潜伏時間が観測された。この結果は、反転磁区の核生成活性過程によって確率的に生成していることを示している。講演では、各温度での潜伏時間の磁場依存性をもとに、反転磁区の確率的生成過程、反転磁区形成のエネルギー障壁について議論する。

**参考文献** 1) Y. Shiratsuchi *et al.*, J. Appl. Phys. 127, 153920 (2020).

# 機械学習を用いた準安定状態からのパラメータ推定

田辺賢士、久野菜、出口慎治、栗野博之  
(豊田工業大学)

Estimation of a parameter from a metastable magnetic image by machine learning

Kenji Tanabe, Shiori Kuno, Shinji Deguchi, and Hiroyuki Awano  
(Toyota Technological Institute)

材料科学分野において、作製した材料の物質パラメータを決めることは、最も重要な実験である。磁気工学分野では、成膜した薄膜を評価するために、磁気パラメータの測定実験が行われている。しかし、ジャロシンスキー守谷相互作用(DMI)定数のように、測定が難しいパラメータや計測に時間が掛かるパラメータも存在する。そこで、より簡便なパラメータの測定法を確立するために、機械学習によって磁区画像からパラメータを推定する研究が進められている<sup>1)-3)</sup>。一般に、強磁性体はM-H曲線においてヒステリシスを持つ。つまり、磁区状態は必ずしも、最安定状態になっているわけではなく、準安定状態になっていることも多い。これまでの先行研究<sup>1)-3)</sup>では、磁区状態が最安定状態になっている状態で、あるいは最安定か準安定か特に制御されずに、実験が行われてきた。本研究では、人工的に準安定状態を複数作成し、その画像からのTbCo合金膜のTb濃度の推定実験を行った<sup>4)</sup>。

スパッタリング法によって $\text{Si}_3\text{N}_4(10\text{ nm})/\text{Tb}_x\text{Co}_{1-x}(t)/\text{Si}_3\text{N}_4(10\text{ nm})$ の多層膜をSi基板上に作製した。組成は垂直磁化膜になる条件を選択し、9種類の組成膜を作製した。磁区構造の作製には、交流消磁法を用いた。交流磁場の振幅の減衰率を変調することによって、複数の準安定状態である磁区構造を作製した(図(a))。図(b)に、実験的に測定されたTb濃度と機械学習によって推定された値の関係を示した。推定値は測定値にほぼ比例しており、準安定状態の画像からTb濃度を推定できることを示唆している。

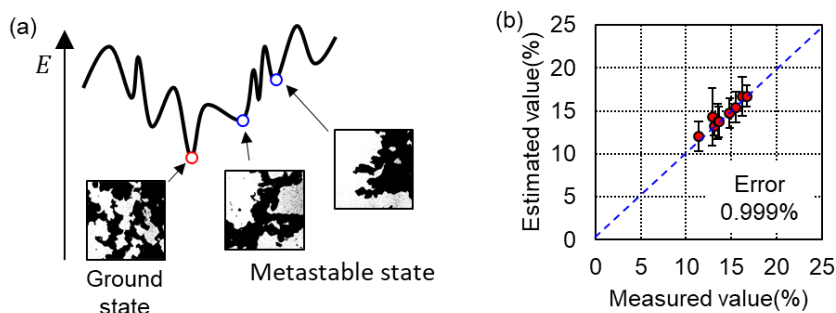


図. (a) 最安定状態と局所安定状態のイメージ図。ヒステリシスを持つ磁性体ではポテンシャルの形が多谷構造をしている。(b) 実験的に測定された値と、機械学習によって推定された値の関係図。点線が傾き1の直線であり、この直線に近いほど測定値と推定値が一致していることを表す。

## 参考文献

- 1) D. Wang et al., *Advanced Science* **7**, 2000566 (2020).
- 2) H. Y. Kwon et al., *Science Advances* **6**, eabb0872 (2020).
- 3) M. Kawaguchi, K. Tanabe et al., *npj Computational Materials* **7**, 20 (2021).
- 4) S. Kuno, K. Tanabe et al., submitted.

# ランダウ理論から見た磁化状態の熱安定性と反転磁場

三俣千春、小嗣真人、\*岡本聡

(東京理科大、\* 東北大)

Thermal stability of magnetization states and reversal fields from the perspective of Landau theory

C. Mitsumata, M. Kotsugi and \*S. Okamoto

(Tokyo Univ. of Science, \*Tohoku Univ.)

## 1 はじめに

磁化状態を情報信号として利用する場合、その熱安定性と書き込み性能の間には磁気異方性エネルギー  $K_u V$  を対象としてジレンマにあると考えられている ( $K_u V$  は異方性定数と体積の積)。このような背景の下、熱安定性を損なうことなく磁気記録媒体における記録性能の向上のために、交換結合するソフト相 / ハード相の接合技術が提案されており<sup>1,2)</sup>、媒体材料構成の探索や効果のシミュレーションが行われている<sup>3-5)</sup>。ここではランダウ理論の視点から<sup>6)</sup>、磁気信号の熱安定性と提案された磁化反転磁場低減の原理を解釈する。

## 2 結果および考察

ランダウ理論では秩序変数の関数として自由エネルギーを記述し、エネルギー極小状態を実現する秩序変数が系の状態を決定する。磁性材料の場合、系の磁化が秩序変数となるので、磁化反転などの現象にランダウ理論を利用することが可能である。系の自由エネルギー  $F = U - k_B T S$  について、内部エネルギー  $U$  とエントロピー  $S$  が以下の関数で与えられるとする。ここでは簡単のため、全磁気モーメント  $m$  の関数として二重極小ポテンシャルを表現する  $U$  と磁気状態の乱雑性を表現する尤度がガウス分布で近似されると仮定した。

$$U(m) = \frac{K_u V}{\sigma^4 m_s^4} m^4 - 2 \frac{K_u V}{\sigma^2 m_s^2} m^2 + K_u V, \quad S(m) = \eta \left( 1 - \frac{m^2}{m_s^2} \right) \quad (1)$$

ここで、 $m_s, k_B, T, \sigma, \eta$  はそれぞれ飽和全磁気モーメント、ボルツマン定数、温度、磁気ヒステリシス曲線の角型比、磁化反転体積によって決定される比例定数 ( $\eta > 0$ ) である。Eq.(1) から求められる磁気安定条件は  $m_r = \sigma m_s$  である残留磁化状態であり、これを基準として温度  $T = 0$  の場合のエネルギー障壁高さは  $K_u V$  である。この自由エネルギー地形において障壁高さは  $T$  の上昇と共に低下し、 $2/\eta\sigma^2 < k_B T / K_u V$  の条件で超常磁性状態となることが分かる。この条件は関数  $F$  が  $|m/m_s| \leq 1$  の全ての状態に対して下に凸となっていることに対応する。

一方、磁化反転磁場  $H_{sw}$  は  $|\partial F / \partial m|$  の最大値によって決定される<sup>6)</sup>。Eq.(1) の具体例を用いて計算すると、

$$H_{sw} = \left. \frac{\partial F}{\partial m} \right|_{m=m_c} \quad \text{at} \quad m_c = \pm \sigma m_s \sqrt{\frac{2K_u V - k_B T \eta \sigma^2}{3K_u V}} \quad (2)$$

のように求められる。Suess<sup>3)</sup> の計算結果では、記録磁場の低減は磁壁移動に対するピン止めサイトが同時性をもって大域的に作用することが理由とされた。これをランダウ理論から解釈すると、Eq.(2) で計算されるエネルギー地形の斜面が凹凸無く直線的となることが  $H_{sw}$  を小さくする条件と分かった。この条件はエネルギー地形の傾斜を最少とする命題をも満足している。したがって、例えば  $T = 0$  の条件では、Eq.(1) において  $U = K_u V |1 - |m/\sigma m_s||$  と変形することで、障壁高さを変更することなく、 $H_{sw} = 4H_k / \sqrt{27}\sigma \rightarrow H_k / 2\sigma$  と反転磁場の低減が可能である。

謝辞 本研究の一部は科研費基盤 A (21H04656) の支援を受けて実施した。

## References

- 1) R. H. Victora, and X. Shen; *IEEE Trans. Magn.*, **41**, 517 (2005).
- 2) Y. Inaba, et.al. ; *IEEE Trans. Magn.*, **41**, 3136 (2005).
- 3) D. Suess; *Appl. Phys. Lett.*, **89**, 113105 (2006)
- 4) T. Shimatsu, et.al. ; *IEEE Trans. Magn.*, **43**, 2103 (2007)
- 5) T. Shimatsu, et.al. ; *J. Magn. Magn. Mater.*, **320**, 3088 (2008).
- 6) C. Mitsumata and M. Kotsugi; *J. Magn. Soc. Jpn.*, **46**, 90 (2022)..

# 磁性体の高性能な記述子の研究：磁気構造の精密な識別

鈴木 通人<sup>1</sup>、野本 拓也<sup>2</sup>、Eiaki V. Morooka<sup>3</sup>、柳 有起<sup>4</sup>、楠瀬 博明<sup>5</sup>

(<sup>1</sup>東北大、<sup>2</sup>東大、<sup>3</sup>Aalto Univ., <sup>4</sup>富山県立大、<sup>5</sup>明治大)

Study of high-performance descriptor of magnetic materials: Accurate discrimination of magnetic structure

M.-T. Suzuki<sup>1</sup>, T. Nomoto<sup>2</sup>, E. V. Morooka<sup>3</sup>, Y. Yanagi<sup>4</sup>, H. Kusunose<sup>5</sup>

<sup>1</sup>Tohoku Univ., <sup>2</sup>Univ. of Tokyo, <sup>3</sup>Aalto Univ., <sup>4</sup>Toyama. Pref. Univ., <sup>5</sup>Meiji Univ.

## はじめに

Mn<sub>3</sub>Sn の反強磁性秩序相で発現する異常ホール効果の発見を機に、強磁性体に特有の現象とされてきた様々な物性現象が磁化のない磁性体で報告され、注目を集めている[1]。このような磁化のない磁気秩序下での物性の発現は、磁気秩序に伴う対称性の破れに由来することがわかっており[2]、漏れ磁場による干渉や外場に対する反応速度の速さといった観点から、高集積回路などへの応用が期待されている。機能性磁性体の開拓をさらに押し進めるには、系統的かつ効率的な磁性体の解析が必要であり、第一原理計算と機械学習手法を組み合わせた物質探索の枠組みが有力な候補となるが、磁性現象の解析に機械学習を適用するには、磁性体における物性の発現と密接に関わる磁気構造の違いを正確に識別できる記述子が必要となる。本研究ではこのような磁性体の記述子の理論を構築し、記述子の基本的なパラメータ依存性や磁気構造の識別性能を検証している[3]。

## 理論手法

磁性体の物性を機械学習によって系統的に解析するには、その発現と密接な関わりを持つ磁気構造の情報を、機械学習の記述子として適切な形で与える必要がある。空間座標とベクトル成分を用いた通常の磁気構造の表現では、座標軸や原点の取り方で値が変わってしまうため、座標軸や原点の選択などに依存しない、磁気構造の表現手法が必要である。本研究では原子配置を多次元ベクトルとして表現する理論手法である Smooth Overlap of Atomic Positions (SOAP)の理論[4]を磁気構造に拡張することで、磁気配列の特徴を捉えた部分スペクトルという多次元ベクトル量を定義し、相関係数によって磁気構造の類似性・相違性を定量的に評価することが可能な記述子を構築する。

## 検証結果

はじめに単純な磁気構造として、1次元結晶や体心立方格子上の強磁性・反強磁性構造の類似性について本手法による検証を行い、理論のパラメータ依存性などの基本的な性質を明らかにした。この検証により、磁気異方性の正確な判別には、高次の類似関数から導出される部分スペクトル(trispectrum)が必要になることがわかった。図は対称性によって分類された磁気構造(図1)の類似性を定量的に評価して得られる相関表であり(図2)、磁気構造の類似性・相違性を正しく表現していることがわかる[3]。

## 参考文献

- 1) S. Nakatsuji, N. Kiyohara, and T. Higo, Nature **527**, 212 (2015).
- 2) M.-T. Suzuki, T. Koretsune, M. Ochi, and R. Arita, Phys. Rev. B **95**, 094406 (2017).
- 3) M.-T. Suzuki, T. Nomoto, E. V. Morooka, Y. Yanagi, and H. Kusunose, Phys. Rev. B, Accepted.
- 4) A. P. Bartók, R. Kondor, G. Csányi, Phys. Rev. B **87**, 184115(2013).

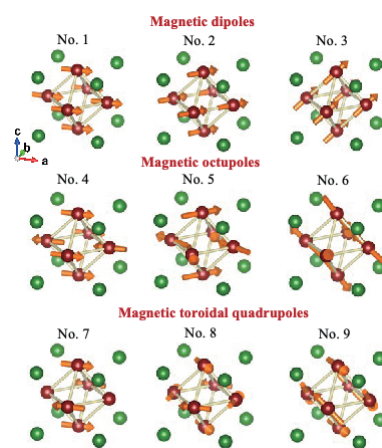


Fig. 1 Magnetic structures classified by symmetry on the Mn<sub>3</sub>Ir crystal

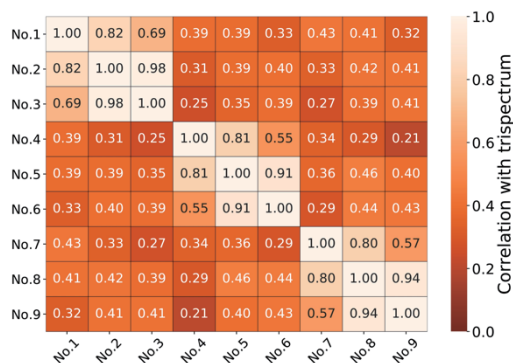


Fig. 2 Correlation table of the magnetic structures in Fig. 1

## 高勾配磁気分離における粒子堆積過程のその場観察

廣田憲之、高野 豪\*、安藤 努\*  
(NIMS、\*日大)

*In-situ* observation of particles deposition process during High Gradient Magnetic Separation

Noriyuki Hirota, Gou Takano\*, Tsutomu Ando\*  
(NIMS, \*Nihon Univ.)

高勾配磁気分離は、磁性フィルターを用い、外部磁場を印加した際に磁性ワイヤー周囲に形成される高勾配磁場を利用して流体中に分散した磁性粒子を分離する手法である。粒子は磁気力によりフィルターワイヤー上に捕集されるので、サイズ分離とは異なり、フィルターの目開きを粒子サイズよりも格段に大きく取ることが出来るため、目詰まりしにくく、高速な分離が実現するほか、磁場を取り去ると堆積粒子がフィルターから脱着するので、フィルターの再利用が可能で環境にも優しい。しかし、その分離過程における粒子堆積過程はよく理解されていないため、実際にはオーバースペックな条件による分離が行われていることが多い。十分な最適化が出来れば、この技術の普及にも寄与できると考え、本研究では、高勾配磁気分離における粒子堆積過程をその場観察し、理解を深めることを目指した。

実験で用いた磁性フィルターは外径 25 mm で SUS430 の線径 0.22 mm のワイヤーで構成された 30 メッシュのものである。平均粒径 5  $\mu\text{m}$  のフェライト粒子を水中に分散させたものを試料とした。超伝導磁石内に設置した流路中に 1~2 枚のフィルターを設置し、気泡が入らないように流路を純水で満たしたのち、所定の磁場を印加し、チューブポンプにより流量を一定として流体試料を流した。この時、フィルター真横と流路中の上流側に設置した CCD カメラにより粒子堆積過程を観測した。図にフィルター真横から観察した粒子堆積過程の一例を示す。このケースではフィルターを 2 枚使用しているが、1 枚目のフィルターの上流側に粒子がチェーン状の構造を作って堆積してゆく様子が観測された。印加磁場や流体中の粒子濃度、流速やフィルター相互の配置に依存して粒子堆積過程に違いがあることが分かった。これらの詳細については当日報告する。

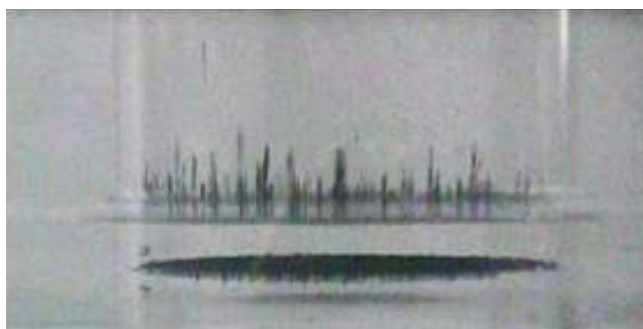


図 高勾配磁気分離における粒子堆積過程のその場観察結果

印加磁場 0.2 T、粒子濃度  $4 \times 10^{-2} \text{ kg/m}^3$ 、

## カイラル充填 $\beta$ -Mn 構造を有する強磁性スキルミオンにおける $D/J$ 制御

### $D/J$ Control in the Chiral Filled $\beta$ -Mn-type Ferromagnetic Skyrmions

強 博文、富樫 正孝、桑原 真人、伊藤 孝寛、浅野 秀文

名大院工

B.W. Qiang, N. Togashi, M. Kuwahara, T. Ito and H. Asano  
(Graduate School of Engineering, Nagoya Univ.)

【はじめに】 充填  $\beta$ -Mn 構造カイラル磁性体  $\text{Fe}_{2-x}\text{Pd}_x\text{Mo}_3\text{N}$  (FPMN) における重金属 Pd ドープにより、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用 (DMI) が増強され、磁気スキルミオンが生成されることが報告された[1]。FPMN において Lorentz-TEM 顕微鏡法とトポロジカルホール効果 (THE) からスキルミオンの生成が検証され、Pd ドープの少ない領域 ( $x < 0.5$ ) において高い  $T_C$  (600 K) を有する微小サイズスキルミオンを実現した。本研究は XMCD 法を用いて FPMN スキルミオン生成磁場領域における Fe 磁気モーメントの変化を解析し、スキルミオン生成の鍵となる DMI と強磁性交換相互作用のバランス制御の観点から  $\text{Fe}_{2-x}\text{Pd}_x\text{Mo}_3\text{N}$  におけるスキルミオン生成のメカニズムを解析した。

【実験及び結果】 エピタキシャル薄膜  $\text{Fe}_{2-x}\text{Pd}_x\text{Mo}_3\text{N}$  はマグネトロンスパッタ法により  $c$ -サファイヤ基板上に成長させた。FPMN ( $x = 0.32$ ) 薄膜サンプルにおける Fe  $L_3$  XMCD スペクトルの薄膜面直磁場依存性を Fig. 1 に示す。青いラインで示しているのは強磁性状態のスペクトルであり、 $-0.5$  T から  $1$  T へと磁場を変化させると、 $0.15$  T から  $0.5$  T の磁場領域においては Fe  $L_3$  端の立ち上がりが観測される励起エネルギーが高エネルギー側にシフトすることを見出した。シフトが観測される磁場領域は、Lorentz-TEM 法により磁気スキルミオンが観察される領域に対応することから、スキルミオン生成に伴う Fe の磁気状態の変化によるシフトであると考えている。Fig. 2 に  $T_C$  及びスキルミオンサイズ  $\lambda$  から算出した  $J$  及び  $D$  の Pd 置換量依存性をこれまでに報告されているスキルミオンにおけるもの[2-5]と比較して示す。本研究で得られた FPMN ( $x = 0.32$ ) における最大値  $D = 25.4 \times 10^{-4} \text{ J/m}^2$  は、これまでにカイラル磁性体で報告されている  $D$  が全て  $5 \times 10^{-4} \text{ J/m}^2$  以下であるのに対して、10倍程度大きく見積もられていることが分かる。この結果は、カイラル強磁性体において重金属 Pd ドープによる  $D/J$  制御により、 $J$  と  $D$  の最適化を実現することにより、高い動作温度 ( $T_C = 600$  K) と微小サイズスキルミオン ( $\lambda \sim 60$  nm) が両立されることを示した結果であると考えている。講演では、 $\text{Fe}_{2-x}\text{Pd}_x\text{Mo}_3\text{N}$  における  $D/J$  制御のメカニズムについて詳細に議論する予定である。

[1] Bowen Qiang, *et al.* Appl. Phys. Lett., **117**, 142401 (2020). [2] L. Kautzsch, *et al.*, Phys. Rev. B **4**, 024412 (2020). [3] T. Nakajima, *et al.*, Sci. Adv. **3**, e1602562 (2017). [4] S. Seki, *et al.*, Phys. Rev. B **85**, 220406(R) (2012). [5] Y. Tokunaga, *et al.*, Nat. Communi. **6**, 7638 (2015).

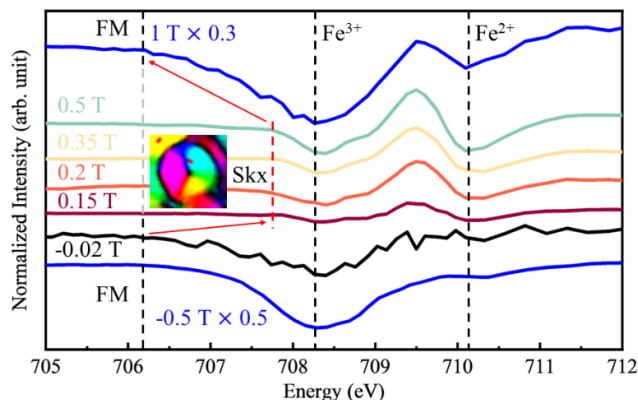


Figure 1 A series of Fe  $L_3$  XMCD spectra with magnetic field applied perpendicular to the film plane from  $-0.5$  T to  $1$  T. The black and red dashed lines show the peak position and edge shift.

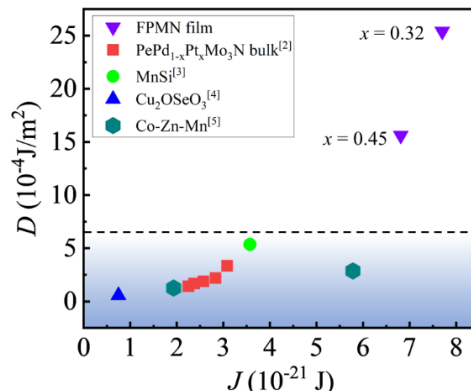


Figure 2 Comparison of magnetic exchange interactions ( $J$ ) and Dzyaloshinskii-Moriya interactions ( $D$ ) of skyrmion between host chiral magnets.



# Mn(Nb<sub>1-x</sub>Ta<sub>x</sub>)<sub>2</sub>O<sub>6</sub> 反強磁性体における スピンプラストラーションの混晶効果

後藤颯樹<sup>1</sup>, 北條大輝<sup>1</sup>, 小林悟<sup>1</sup>, 寺田典樹<sup>2</sup>  
(<sup>1</sup>岩手大, <sup>2</sup>物材機構)

Mixed effects on spin frustration in Mn(Nb<sub>1-x</sub>Ta<sub>x</sub>)<sub>2</sub>O<sub>6</sub> antiferromagnets

S. Goto<sup>1</sup>, H. Hojo<sup>1</sup>, S. Kobayashi<sup>1</sup>, N. Terada<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Iwate Univ., <sup>2</sup>NIMS)

## はじめに

Mn(Nb<sub>1-x</sub>Ta<sub>x</sub>)<sub>2</sub>O<sub>6</sub>はコロンバイト構造を持つ化合物である。Mn スピンが c 軸に沿った反強磁性 1 次元鎖を形成し、これらの鎖が a-b 面内に二等辺三角格子状に配列し、幾何学的フラストラーションを生み出す。MnNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub> と MnTa<sub>2</sub>O<sub>6</sub> は同一の結晶構造を持つにも関わらず、異なる磁気構造[1]や、磁気相図と交換相互作用定数の著しい変化が報告されている [2,3]。これら観測結果は Nb と Ta のイオン半径の違いによる二等辺三角格子内のスピンプラストラーション状態の変化に起因すると考えられるが、その様相の系統的变化は明らかになっていない。本研究では、Mn(Nb<sub>1-x</sub>Ta<sub>x</sub>)<sub>2</sub>O<sub>6</sub> において x を系統的に変化させたときの磁気特性変化を調査したので報告する。

## 実験方法

MnO<sub>2</sub>, Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> を混合・ペレット化し、1200°C24h で焼結した。粉碎後、再度、混合・ペレット化し、1250°C36h で焼成し Mn(Nb<sub>1-x</sub>Ta<sub>x</sub>)<sub>2</sub>O<sub>6</sub> を得た。本研究では、x = 0, 0.25, 0.5, 0.75, 1 の 5 試料を作製した。粉末 X 線回折(XRD)により結晶相同定、格子定数を決定した。SQUID 磁力計(MPMS)を用いて T = 2~350 K, H = ±50 kOe の範囲で磁化測定、物理特性測定システム(PPMS)を用いて零磁場中、T = 2~300 K の範囲で比熱測定を行った。

## 実験結果

XRD により焼結試料が単相であること、x の増加に伴い格子定数が増加することを確認した。磁化率の温度依存性 (Fig. 1) から、x の増加に伴い磁化率が低下し、ネール温度 T<sub>N</sub> が単調増加 (Fig. 1 挿入図) することが分かった。また、T<sub>N</sub> 以下の磁化曲線で 20 kOe 近傍で磁化の傾きの変化が観測された (Fig. 2 挿入図)。Fig. 2 に示す微分磁化率の磁場依存性から、x = 0, 1 ではピークが一つであるのに対し、x = 0.25, 0.5, 0.75 では 2 つのピークが観測された。x の増加とともに、低磁場側ピークは減少する一方、高磁場側ピークは増加すること、ピーク間の磁場範囲が拡大することが分かった。これは混晶系において、新たな磁場誘起スピンプラストラーション相の発現を示唆している。

## 参考文献

- 1) W. Scharf, H. Weitzel, *Solid State Commun*, **18**, 249-252 (1976)
- 2) R. Maruthi et, al. *J. Phys.: Condens. Matter* **33**, 345801 (2021)
- 3) R. Maruthi et, al. *J. Phys.: Condens. Matter* **34**, 155801 (2022)

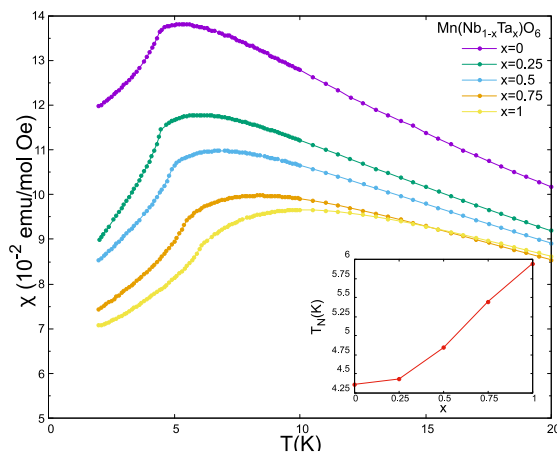


Fig.1 Temperature dependence of magnetic susceptibility ( $\chi$ ). Inset shows  $T_N$  vs  $x$ , calculated from  $\chi$  vs  $T$ .

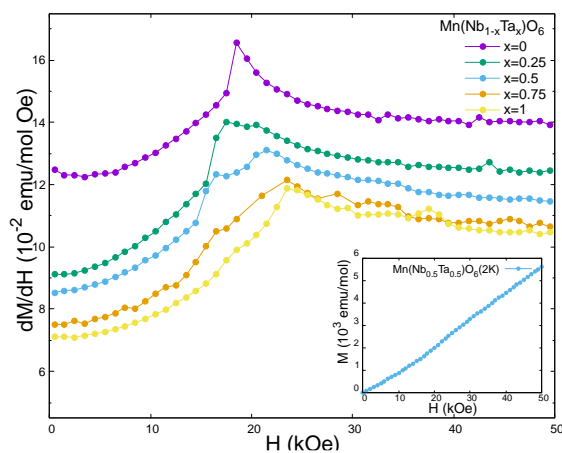


Fig.2  $dM/dH$  vs  $H$  determined from  $M-H$  curves. Inset shows  $M-H$  curve at 2 K for  $x = 0.5$ .

# マグネシウムフェライト薄膜における磁気特性の結晶化温度依存性

安達信泰・近藤達也 (名古屋工業大学)

Crystalized Temperature Dependence of Magnetic Properties for Mg Ferrite Films

N. Adachi, T. Kondo (Nagoya Institute of Technology)

## 1. 緒言

我々は、有機金属分解(MOD)法を用いて、反強磁性体  $\text{ZnFe}_2\text{O}_4$  を部分的に逆スピネル構造にしてフェリ磁性化し、500 nm 付近の短波長領域で、大きな磁気光学効果を示すことを報告した[1]。しかしながら、キュリー点が  $T_c=190$  K 程度と低温でのみ強磁性を示し、スパッタ法等による研究報告[2]にあるような室温強磁性を示すまでにはいたっていない。本研究では、室温強磁性を示すことで知られる  $\text{MgFe}_2\text{O}_4$  に関して MOD 法による合成を試み、合成条件による磁気特性の違いについて評価を行った。この物質系も不完全な逆スピネル構造によりフェリ磁性が生じることから、室温強磁性の知見を得られると考えた。

## 2. 実験方法

薄膜は、有機金属溶液(高純度化学)をシリカガラス基板上にスピコーティングし作製した。溶液滴下後は、 $100^\circ\text{C}$ で乾燥し、 $300^\circ\text{C}$ で仮熱処理を行った。必要な膜厚までこの工程を繰り返した後、熱処理結晶化させた。焼成温度は焼成温度を  $500^\circ\text{C}$ から  $900^\circ\text{C}$ 、焼成時間は2時間として行った。作製した試料に対し、XRD(RIGAKU: MiniFlex)による結晶の評価、FE-SEM(JEOL:JES7000F)による微構造観察、SQUID(Quantum Design: MPMS-7 & X7)による磁化測定、強磁性共鳴(FMR)の測定を行った。

## 3. 結果と考察

焼成温度  $500^\circ\text{C}$ 以上でスピネル構造に由来する XRD 回折ピークが得られ、 $900^\circ\text{C}$ で鋭い回折ピークが観測された。飽和磁化  $M_s$  と保磁力  $H_c$  は、焼成条件に強く依存する。Fig.1 に示すように 4K の温度において、 $500^\circ\text{C}$ 付近の焼成温度で作製した膜では、 $M_s$  が小さいものの  $H_c$  が  $2\text{ kOe}$  を超える大きな値を示した。逆に  $900^\circ\text{C}$ 付近の焼成温度で作製した膜では、 $M_s$  が  $40\text{ emu/g}$  と増大したが、 $H_c$  は  $200\text{ Oe}$  と減少した。また、 $M_s$  が大きくなるにつれて、FMR の共鳴磁界は、常磁性共鳴の共鳴磁界付近から低磁界側にシフトし、異方性磁界の増大が認められた。8 面体配位の B サイトにある  $\text{Fe}^{3+}$  のみの存在では、反強磁性を示すはずだが、 $\text{ZnFe}_2\text{O}_4$  と同様に一部が 4 面体配位の A サイト位置することにより強磁性成分が現れ、焼成温度が高いほど A サイトの占める割合が大きくなると考えられる。また、zero-field cooling と field-cooling の磁化の温度依存性を測定すると、低温側で焼結した試料に関して、 $150\text{ K}$  以下で異なる挙動が観測され、何らかの磁気転移が生じていることが示唆された。

謝辞：本研究の一部は文部科学省ナノテクノロジープラットホーム事業<分子・物質合成>[ 課題番号 ] JPMXP1222MS1057 の支援により自然科学研究機構 分子化学研究所で実施された。

### 参考文献

[1]N.Adachi et.al. 02PC1 日本磁気学会第 45 回学術講演会予稿集

[2] K. Tanaka et.al. J. Phys. Condens. Matter. 15L469 (2003)

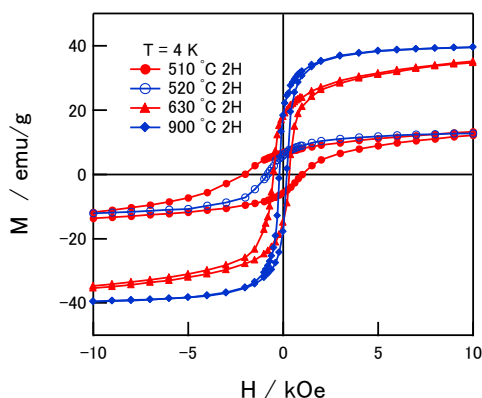


Fig.1 Magnetization curves of  $\text{MgFe}_2\text{O}_4$  annealed at different temperatures.

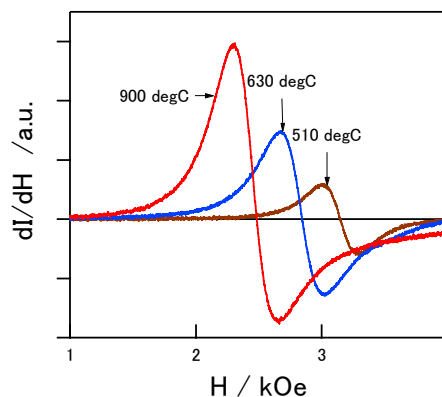


Fig. 2 FMR spectra of  $\text{MgFe}_2\text{O}_4$  annealed at different temperatures.

## 桂皮酸誘導体有機層を含む層状金属水酸化物の磁性

本多善太郎、安田有智、木田孝則\*、萩原政幸\*  
(埼玉大院理工、\*阪大強磁場)

Magnetic properties of layered metal hydroxides incorporating cinnamate derivative organic layers

Z. Honda, A. Yasuta, T. Kida\*, and M. Hagiwara\*  
(Saitama Univ. \*AHMF Osaka Univ.)

### はじめに

層状金属水酸化物の層間に有機層が貫入した構造の有機無機層状物質は有機化合物と金属の多様な組み合わせが可能であり、遷移金属上に局在した磁気モーメントと有機分子上の電気双極子による磁性、誘電性の発現が期待される。特に有機層が桂皮酸(CA)の化合物の場合 (Fig. 1)、無機層が水酸化銅の場合強磁性が、水酸化コバルトの場合、巨大保磁力を伴うフェリ磁性を示すことが明らかにされており興味もたれる。そこで我々は桂皮酸層状水酸化物の層間距離と磁気特性との関連を明らかにすることを目的に、有機層を各種桂皮酸誘導体(X-CA)で置換した一連の化合物 TM(X-CA)(OH), TM = Co, Cu 合成し、その磁性を調べた。

### 実験方法

金属源に硝酸コバルト及び硝酸銅、水酸化剤に水酸化ナトリウム、有機層原料に各種桂皮酸誘導体 (X = CH<sub>3</sub>, Cl, OH 等) を用い、それらを所定の比で混合した後テフロン容器に密閉し、100 °Cから 130 °Cで加熱することにより各種層状物質を合成した。熱重量分析により化学式を同定し、粉末 X 線回折法により層間距離を調査した。また、磁気測定には SQUID 磁束計 (Quantum Design 社 MPMS-XL) を用いた。

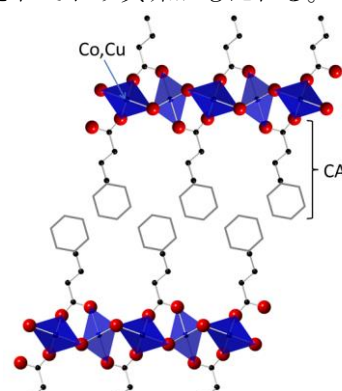


Fig. 1. Sheet structure of the Co(CA)(OH) .

### 実験結果

各種層状物質の粉末 X 線回折パターンには層状構造を示唆する高次反射が見られ、回折角から無機層間隔を算出したところ、最短 15.7 Å (有機層 : スチリル酢酸)、最長 22.5 Å (有機層 : 4-トリフルオロメチル桂皮酸) と広く分布していることが分かった。水酸化物層間には桂皮酸分子 2 層で構成された有機層が挟まれており、その間隔は各種桂皮酸誘導体の分子長を反映しているものと思われる。一連の層状水酸化銅はいずれも強磁性を示し、層間距離のちがいに問わず、キュリー温度は 15 K 程度であった (Fig. 2)。また、キュリー温度以下の磁気モーメントの温度依存性には 3 次元磁性体の特徴 ( $T^{3/2}$  則及び臨界指数  $\beta = 0.347$ ) がみられ、水酸化物間の弱い磁気相互作用が磁気秩序形成に寄与することを示唆するものであった。一方、一連の層状水酸化コバルトはキュリー温度以下で自発磁化を生じたが (Fig. 3)、磁化率を解析したところ、いずれもワイズ温度は負であった。また、銅化合物同様、層間距離のちがいにも関わらずキュリー温度は狭い温度範囲 (44.0 K から 57.0K) に分布していた。

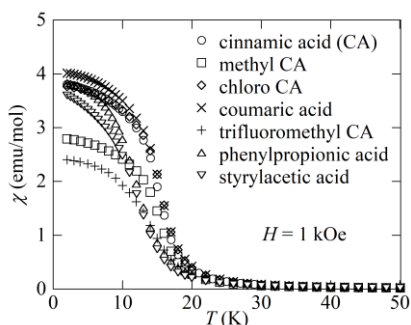


Fig. 2. Magnetic susceptibilities vs. temperature curves of the Cu(X-CA)(OH).

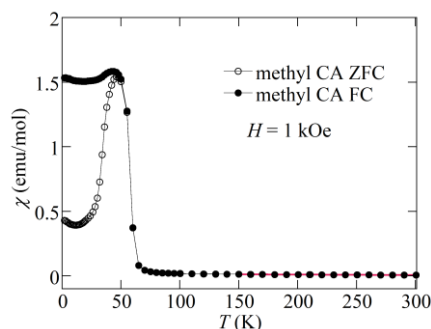


Fig. 3. Magnetic susceptibilities vs. temperature curves of the Co(CH<sub>3</sub>-CA)(OH).