

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¹, 清水蓮也², 菊池伸明³, 岡本聡^{3,4}, 大野誠吾², 富田知志^{1,2}

(¹東北大学教機構、²東北大理、³東北大多元研、⁴東北大 CSIS)

Spin-injection Induced Permeability Control for Time-varying Metamaterials

Toshiyuki Kodama¹, Renya Shimizu², Nobuaki Kikuchi³, Satoshi Okamoto^{3,4}, Seigo Ohno²,
Satoshi Tomita^{1,2}

(¹IEHE, ²Dept. of Physics, ³IMRAM and ⁴CSIS, 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(μ)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、 μ 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、 μ 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 μ 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_{AMR} が生じる。

結果と考察

V_{AMR} の H_{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_{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_{dc} による変化量を用いて、 I_{dc} が +20 mA から -20 mA における NiFe 細線の比透磁率の実部 (μ'_r) を計算した。周波数と I_{dc} に対して計算された μ'_r を図 2(a) に表示する。破線で示すように μ'_r の共鳴周波数が、 I_{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 μ'_r を抜き出し、図 2(b) に示す。5.74 GHz に着目すると、 I_{dc} を ± 20 mA で切り替えることで、 μ'_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_{dc} を高周波で変調することで、 μ の高周波時間変調の実現が期待される。講演では、 μ 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).

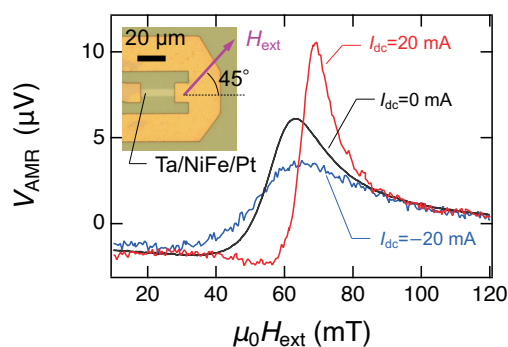


Fig. 1 : ST-FMR signals with $I_{\text{dc}} = 0, \pm 20$ mA. Inset: sample photograph.

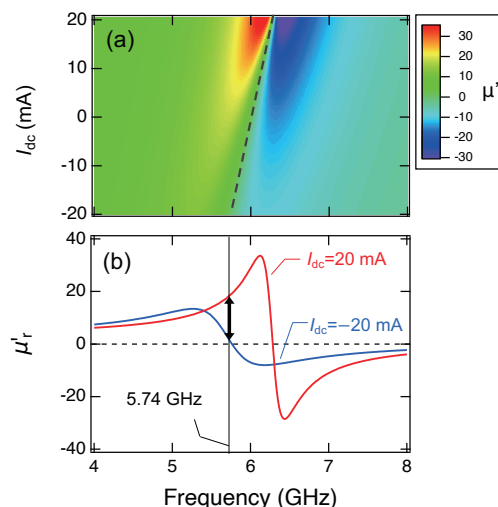


Fig. 2 : (a) 2D plot of real part of magnetic permeability (μ'_r) under dc magnetic field of 58.4 mT. (b) μ'_r spectra with $I_{\text{dc}} = \pm 20$ mA.

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).

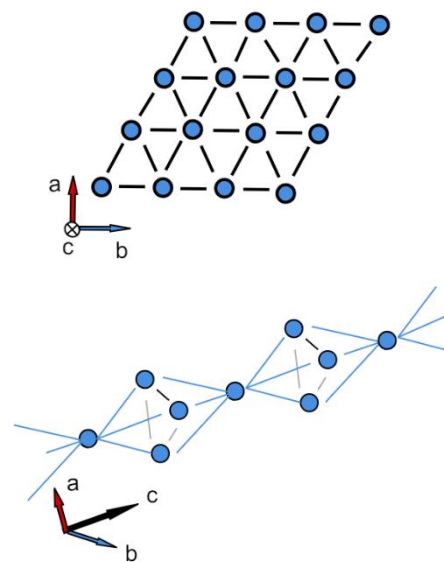


Fig.1 Schematic diagram of the calculation model. Spins arranged like a hexagonal miniature structure.

単一磁区に対する反転磁区の確率的生成

Fangfei Luo¹, 豊木研太郎^{1,2,3}, 三俣千春⁴, 中谷亮一^{1,2,3}, 白土 優^{1,2,3}

(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 Luo¹, Kentaro Toyoki^{1,2,3}, Chiharu Mitsumata⁴, Ryoichi Nakatani^{1,2,3} and Yu Shiratsuchi^{1,2,3}

(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/Cr₂O₃/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)/Cr₂O₃(130 nm)/Pt(20 nm)を作製した。基板には、 α -Al₂O₃(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 Cr₂O₃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¹⁾⁻³⁾。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¹⁾⁻³⁾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⁴⁾。

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。

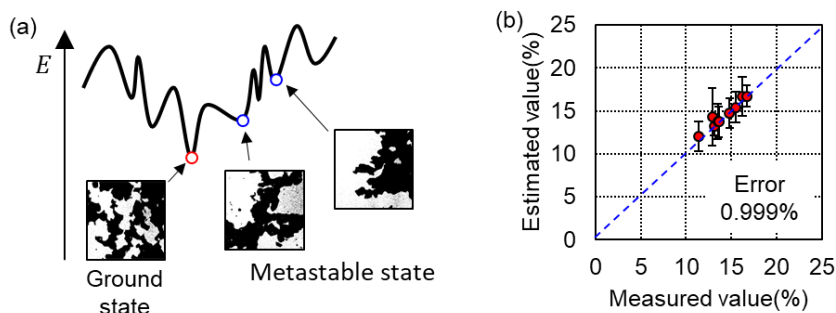


図. (a) 最安定状態と局所安定状態のイメージ図。ヒステリシスを持つ磁性体ではポテンシャルの形が多谷構造をしている。(b) 実験的に測定された値と、機械学習によって推定された値の関係図。点線が傾き1の直線であり、この直線に近いほど測定値と推定値が一致していることを表す。

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^{1,2)}、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³⁻⁵⁾。ここではランダウ理論の視点から⁶⁾、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⁶⁾。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。Suess³⁾ 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¹、野本 拓也²、Eiaki V. Morooka³、柳 有起⁴、楠瀬 博明⁵

(¹東北大、²東大、³Aalto Univ., ⁴富山県立大、⁵明治大)

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

M.-T. Suzuki¹, T. Nomoto², E. V. Morooka³, Y. Yanagi⁴, H. Kusunose⁵

¹Tohoku Univ., ²Univ. of Tokyo, ³Aalto Univ., ⁴Toyama. Pref. Univ., ⁵Meiji Univ.

はじめに

Mn₃Sn 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).

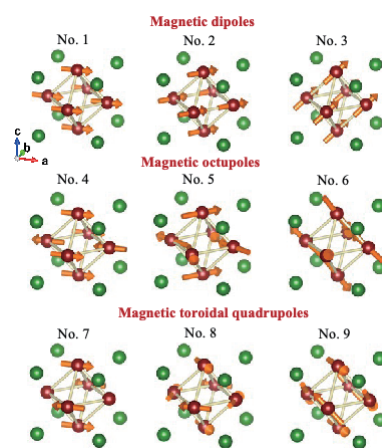


Fig. 1 Magnetic structures classified by symmetry on the Mn₃Ir crystal

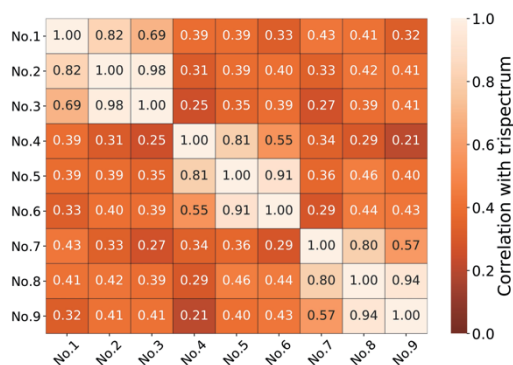


Fig. 2 Correlation table of the magnetic structures in Fig. 1

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 μm 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。

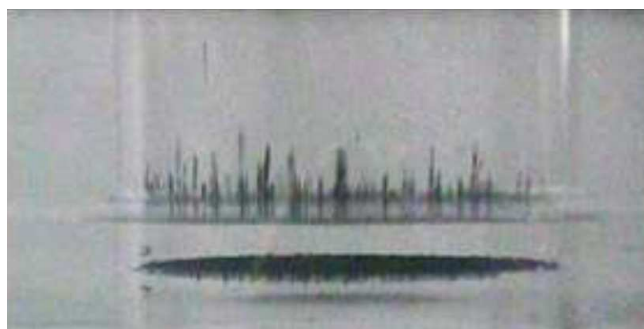


図 高勾配磁気分離における粒子堆積過程のその場観察結果

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