

FMR measurements on $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$ Heusler alloy thin films

T. Hojo ^a, H. Hamasaki ^a, M. Tsunoda ^a, M. Oogane ^a, O. Chumak ^b, A. Napiółek ^b, and L. T. Baczewski ^b

^a Graduate School of Engineering, Tohoku University

^b Institute of Physics, Polish Academy of Sciences

Introduction

Due to their half-metallicity and high Curie temperature, Co-based Heusler alloys are promising materials for spintronic devices such as magnetic random-access memory (MRAM) and magnetic sensors. In such devices, low magnetic anisotropy of Co-based Heusler alloys is an advantage to improve their performances. These days, we have reported that magneto-crystalline anisotropy K_1 of $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$ thin films changed from positive to negative as x increased and crossed $K_1 = 0$ line at around $x = 0.33$.¹⁾ In this study, we performed in-plane and out-of-plane ferromagnetic resonance (FMR) on $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$ thin films to investigate magnetic properties in more detail.

Experimental Procedure

50-nm thick $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$ films were deposited on (001)-oriented MgO single crystalline substrate by co-sputtering method with Co_2FeAl and Co_2FeSi targets, and then annealed at 500°C to improve their crystallinity. We have firstly investigated their crystalline properties by X-ray diffraction. It was found that above 80% of B2 ordering was observed in all the samples but L_{21} structure was detected only in the samples with x below 0.4, indicating that all the samples are expected to show half-metallicity. Subsequently, in-plane and out-of-plane FMR was performed.

Results

Fig. 1 (a) shows the in-plane angular dependence of the resonance field for the $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$ thin films. It is evident that the magnetic easy axis has changed from [100] to [110] with increase of x . By fitting with the function suggested by H. Suhl²⁾, the K_1 has changed from small positive to negative value and crossed zero value at around $x = 0.33$. This behavior of K_1 agrees with that evaluated from magnetization curves measured by vibrating sample magnetometer. The smallest K_1 measured in this study was $< 1,000$ erg/cc, which is the smallest value reported for Co-based Heusler alloy thin films.³⁾ Figure 1 (b) shows the out-of-plane angular dependence of the linewidth of the FMR spectrum for the sample with $x = 0.33$. To evaluate intrinsic magnetic damping constant α , we fitted the linewidth by the sum of the intrinsic and extrinsic terms. The minimum value of magnetic damping constant α was less than 0.003 at $x = 0.33$, which indicates good half-metallicity because the damping constant α is proportional to the density of states at the Fermi level. Such a unique material with both good half-metallicity and small magneto-crystalline anisotropy is a good candidate for enhancing the performance of spintronics devices like magnetic sensors. This work was supported by SIP-project, SCOPE project, X-nics project, and CSIS, CIES and GP-spin program in Tohoku University.

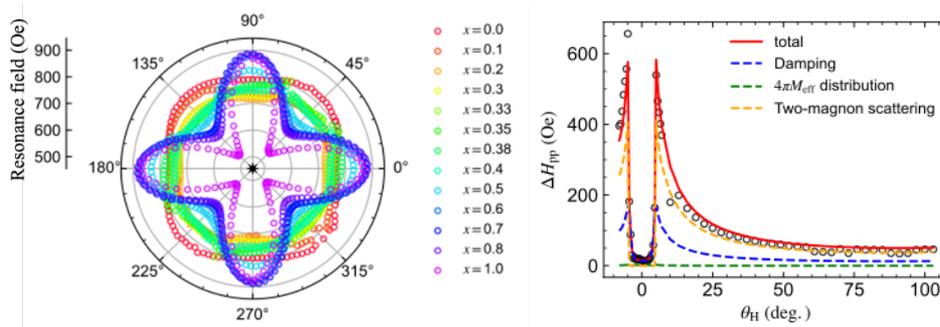


Figure 1 (a) In-plane angular dependence of resonance field for all the samples, and (b) out-of-plane angular dependence of linewidth for the sample with $x = 0.33$.

References

- 1) T. Hojo *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **601**, 172144 (2024)
- 2) H. Suhl, Phys. Rev. **97**, 555 (1955).
- 3) A. Napiółek *et al.*, Phys. Rev. B **106**, 054406 (2022)

Co 基ホイスラー合金電極を用いた 高感度 TMR センサ用バッファ層の作製

○濱崎 宏海、北條 峻之、角田 匡清、大兼 幹彦
(東北大学大学院工学研究科)

Fabrication of Buffer Layers for Highly Sensitive TMR Sensors with Co-based Heusler alloy electrodes
H. Hamasaki, T. Hojo, M. Tsunoda, and M. Oogane
(Graduate School of Engineering, Tohoku University)

はじめに

TMR センサとは、トンネル磁気抵抗 (TMR) 効果を利用した磁気センサであり、これまでに室温で心磁場を測定するのに十分な感度を持つ TMR が報告されている¹⁾。一方、脳磁場のような小さな磁場をリアルタイムで検出するには、より大きな TMR 比と小さな異方性磁界 $H_k (= 2K_1/M_s)$ が必要である。我々はハーフメタル性により室温で大きな TMR 比が期待できる Co 基ホイスラー合金 $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$ 薄膜を作製し、その K_1 は x の増加に伴って正から負に変化し $x=0.33$ 付近において $K_1=0$ 線と交差することを明らかにした²⁾。また Co 基ホイスラー合金電極の強磁性トンネル接合(MTJ)において大きな TMR 比を得るためには、高い B2 規則度と優れた(001)結晶配向性が求められる。そこで本研究では Co_2FeAl 、 Co_2FeSi 及びこれらの中間組成である $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.33}\text{Si}_{0.67}$ 薄膜を複数のバッファ層上に成膜し、その結晶・磁気特性を評価した。

実験方法

MgO (001)基板上にスパッタリング法で MgO (20 nm)、Cr (60 nm)、Cr (60 nm)/Ag (20 nm) の各バッファ層をそれぞれ成膜した後、 Co_2FeAl 、 Co_2FeSi および $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.33}\text{Si}_{0.67}$ を室温で 50 nm 成膜し、酸化防止のために Ru を 2 nm 成膜した。成膜後、ポストアニール温度 $T_a=400 - 700^\circ\text{C}$ で熱処理した。結晶特性は XRD で測定し解析した。B2 規則度は $2\theta/\omega$ スキャンのピーク強度を、(001)結晶配向性はロックンクカーブの全半値幅を用いて評価した。

結果

Fig. 1 は各試料のロックンクカーブ測定における Co_2FeAl (004)ピークの全半値幅である。熱処理によって、全半値幅が小さくなり(001)結晶配向性が改善されていることがわかる。特に Cr/Ag バッファ層上に成膜した Co_2FeAl 薄膜は 600°C において優れた(001)結晶配向性を示している。これは、Cr 層によるミスマッチの緩和と、Ag 層による Cr 原子の拡散防止によるものである。また、同条件において B2 規則度は約 80%であり、Cr/Ag バッファ層によって高い B2 規則度と優れた(001)結晶配向性が得られることが分かった。発表当日は、 Co_2FeSi および $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.33}\text{Si}_{0.67}$ 薄膜における結果も併せて発表する予定である。

参考文献

- 1) M. Oogane *et al.*, *Appl. Phys. Exp.* **14**, 123002 (2021)
- 2) T. Hojo *et al.*, *J. Magn. Magn. Mater.* **601**, 172144 (2024)

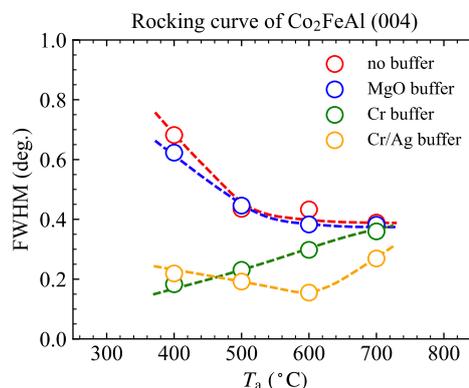


Figure 1 Annealing Temperature dependence of (001)-orientation for Co_2FeAl thin films

集合組織を形成した Fe-6.5Si 扁平粒子の組織と磁気特性

本塚智、グエン・ザー・ミン・タオ*、竹澤 昌晃
(九工大、*島根大)

Microstructure and Magnetic Properties of Fe-6.5Si Flaky Particle with Crystallographic Texture

S. Motozuka, N. G. M. Thao, M. Takezawa
(Kyushu Inst. Tech., *Shimane Univ.)

はじめに

水アトマイズ法などで得られた不定形の純鉄粒子をボールミルで塑性変形させることで、扁平化した純鉄粉末が得られる。ボールミル処理の際に黒鉛などの固体潤滑剤や油などを添加すると、塑性変形の様式が変化し、{001}が偏平面と平行に配向した純鉄粒子が得られる。今回は、純鉄粒子に代えて、Fe-6.5Si 粒子を用いて同様の方法で扁平粒子を作製し、その組織と磁気特性を評価した。

実験方法

Fe-6.5Si 粒子(以後、合金粒子)としてはエプソンアトミックス社製の PIS65 を使い、これを目開き 125 μm のふるい下および 90 μm のふるい上の合金粒子をボールミル処理に供した。合金粒子と SUJ-2 の鋼球、固体潤滑剤である窒化ホウ素とイソプロピルアルコールを SUS304 製のボールミル容器に入れ、本容器を遠心ボールミル(日新技研社製、NEV-MA-8)に取り付け、所定時間処理した。比較のため、潤滑剤を加えずに単体でも合金粒子をボールミルで処理した。得られた粒子は Ar 雰囲気下で 700 度で 1 時間熱処理し、ボールミル処理に伴うひずみを除去した。さらにシリコン樹脂(ダウコーニング東レ SR2400)で被覆し、被覆された粒子を外径 30 mm、内径 20 mm のリング状に 900 MPa でプレスし、EBSD(Electron Backscattered Diffraction)および B-H アナライザで集合組織及び磁気特性を評価した。

実験結果

図 1(a)に潤滑剤と共にボールミル処理された合金粒子の SEM 像を示す。4 時間のボールミル処理によって、潤滑剤とともに処理された合金粒子は、厚みが $2.3 \pm 0.7 \mu\text{m}$ 、偏平面の外周に外接する円で評価した粒子サイズが $100.0 \pm 43.4 \mu\text{m}$ 程度、潤滑剤を加えずに処理された合金粒子はそれぞれ $2.8 \pm 1.1 \mu\text{m}$ 、 $144.1 \pm 65.7 \mu\text{m}$ の扁平粒子となった。熱処理および絶縁被覆後に直径 11.3 mm の金型で 900 MPa でプレスして図 1(b)に示すようなペレットを得た。潤滑剤を添加及び添加せずに得られた扁平粒子のペレット断面の EBSD による逆極点図をそれぞれ図 1(c, d)に示す。逆極点図はペレットの中心軸方向を基準に描画している。潤滑剤を添加してボールミル処理された合金粒子によるペレットの 001 の極密度は 3.09 であるのに対し、添加しない場合は 1.98 と低い値となった。すなわち、潤滑剤と共にボールミル処理された扁平粒子の方が、鉄の磁化容易軸の<001>をより多くその偏平面内に持つことがわかる。講演では、結晶粒径などの組織の詳細および、磁気特性について報告、議論する。

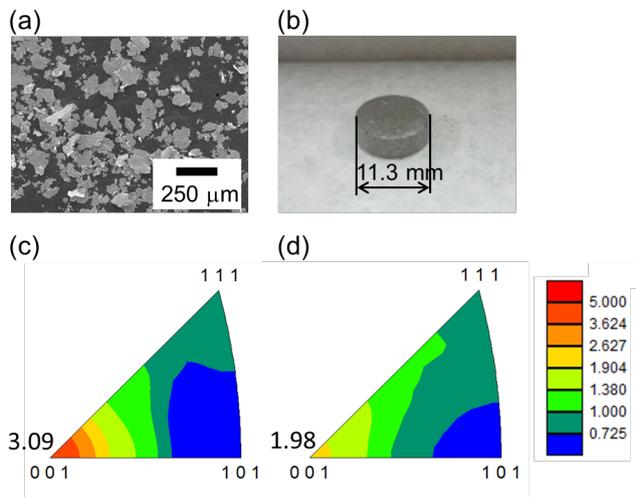


Fig. 1 (a)SEM image of ball-milled flaky particle, (b) its consolidated pellet, and (c, d) inverse pole figures of cross section of the consolidated flaky powder achieved by ball-milling treatment with and without lubricant, respectively (figures on left apex of triangle are pole densities at 001).

高 Si 濃度 Fe-B-Si アモルファス合金のアモルファス形成範囲と磁氣的・電氣的性質

尾藤輝夫、星野弘匡、杉村佳奈子*、小谷淳一*
(秋田県立大学、*パナソニックインダストリー(株))

Magnetic and electric properties of Fe-B-Si amorphous alloys with high Si concentration

T. Bitoh, H. Hoshino, K. Sugimura*, J. Kotani*
(Akita Prefectural Univ., *Panasonic Industry Co., Ltd.)

緒言

Fe-B-Si アモルファス合金は既に広範な分野で使用されているが、近年は携帯機器用などの高周波磁性部品にも用途が広がりつつある。しかし、現在市販されている材料(~80 at% Fe)は主として配電用変圧器の鉄心用として開発されており、高周波用途に適しているとは言い難い。また Fe-B-Si 系の各種の物性についても、高 Fe 濃度組成を中心に研究が行われてきたため、Si 濃度が高い領域などではデータが少ないのが現状である。本研究では、Fe-B-Si アモルファス合金の用途拡大に対応するため、高 Si 濃度領域を中心として、本合金のアモルファス形成範囲と磁氣的・電氣的性質を中心に検討を行った。

実験方法

アーク溶解法により母合金を作製し、単ロール液体急冷法により幅 1~2 mm、厚さ約 20 μm のアモルファス合金試料を作製した。X 線回折(XRD)を用いて試料の構造を評価し、示差走査熱分析(DSC)で合金のキュリー温度と結晶化開始温度を評価した。室温での飽和磁化、保磁力と電気抵抗率を、それぞれ磁気天秤、直流 B - H ループトレーサ、直流四探針法で測定した。

実験結果

過去に報告されている Fe-B-Si 合金のアモルファス形成範囲^{1,2)}を参考に、検討する組成を決定した。Fig. 1 に室温における構造と飽和磁化($\mu_0 M_s$)の組成依存性を示す。過去の報告では、20 at% Si 以上でのアモルファス合金の作製例は $\text{Fe}_{75}\text{Si}_{25}$ と $\text{Fe}_{70}\text{B}_{10}\text{Si}_{20}$ のみであるが²⁾、今回の研究では 7~10 at% B の範囲であれば 20 at% Si 以上でもアモルファス単相薄帯が作製できることが明らかとなった。また今回検討した組成範囲では、飽和磁化は Fe 濃度の低下および Si 濃度の増加とともに低下する傾向を示した。DSC の結果から、Si 濃度の増加により室温の飽和磁化が低下するのは、キュリー温度の低下が原因の一つであることが確認された。

一方、電気抵抗率は Si 濃度の増加とともに増加する傾向を示し、20 at% Si 以上では概ね 1.5 $\mu\Omega\text{m}$ を超える値を示すことが分かった。これは市販の Fe-B-Si アモルファス合金の値(1.19~1.25 $\mu\Omega\text{m}$)³⁾よりも 20%以上大きい。したがって、高 Si 濃度 Fe-B-Si アモルファス合金は、高周波用途に適した材料であると考えられる。

参考文献

- 1) M. Hagiwara, A. Inoue and T. Masumoto, Sci. Rep. RITU A29 (1980) 351-358.
- 2) Y. Kawazoe et al., Landolt-Börnstein, New Series, 37A, Springer, 1997.
- 3) 小川雄一 他、日立金属技報 22 (2006) 31-34.

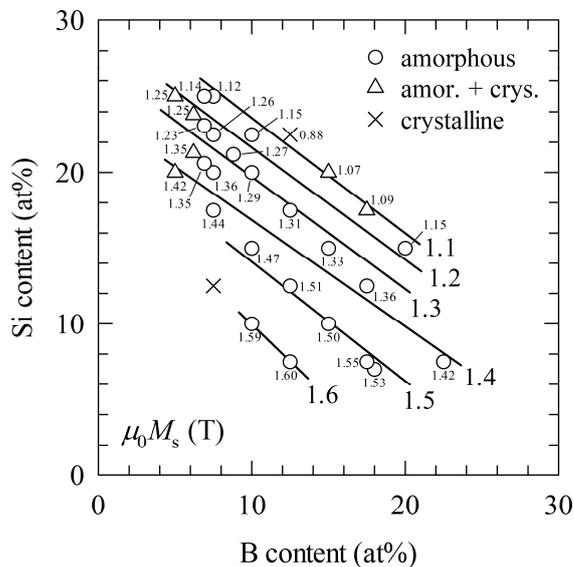


Fig. 1. Compositional dependence of as-quenched structure and saturation magnetization ($\mu_0 M_s$) of rapidly quenched Fe-B-Si alloys at room temperature.

Fe-3 wt.%Si 薄帯における磁気特性と構造の熱処理温度依存性

高須匠*, 馬小童*, 梅津理恵*, 三上慎太郎, 平城智博, 室賀翔*, 遠藤恭* (東邦亜鉛, *東北大学)

Dependence of magnetic properties and structure on the annealing temperature for Fe-3 wt.%Si ribbons

T. Takasu*, X. Ma*, R. Umetsu*, S. Mikami, T. Hiraki, S. Muroga*, Y. Endo*

(Toho Zinc Co., Ltd, *Tohoku Univ.)

緒言 Fe-Si 合金薄帯は高飽和磁化を有し、低鉄損であることから、高周波リアクトルやトランスなどで幅広く利用されている。この材料をさらに高周波帯で利用するためには、渦電流損失を低減させる必要がある。その方法の一つとして、薄帯厚の低減が有効である。我々は、これまでに、Si 組成の異なる 10 μm 厚の Fe-Si 合金薄帯を作製し、渦電流損失が高周波数帯まで抑制可能であることを実験的に示した[1]。本研究では、これらの Fe-Si 合金薄帯の更なる磁気特性の改善を目指して、磁気特性および構造の熱処理による影響について検討した結果を報告する。

実験方法 試料は圧延処理して作製した 10 μm 厚の Fe-3 wt.%Si 薄帯である。熱処理については、試料を石英管に真空封入し、熱処理炉中で 673-873 K の温度範囲で 3 時間保持した。作製した試料の磁気特性は、VSM、フェライトヨーク法による透磁率測定、B-H アナライザおよび薄帯磁歪測定装置[2]を用いて評価した。また、結晶構造は XRD を用いて評価した。なお、これらの評価はすべて室温で行われた。

結果 Fig.1 に 10 μm 厚の Fe-3 wt.%Si 薄帯における飽和磁化 σ_s と保磁力 H_c の熱処理温度依存性を示す。 σ_s に関しては、熱処理温度に依存せずほぼ一定であった。これらの値はバルク値とほぼ一致している。 H_c に関しては、熱処理温度の上昇にともない減少した。この挙動は、圧延により誘起された応力が緩和したことによるものと考えられる。

Fig.2 に異なる温度で熱処理した Fe-3 wt.%Si 薄帯における複素透磁率を示す。 μ' は熱処理温度に関係なく、低周波側ではほぼ一定であり、 μ' 値は、熱処理温度の増加にともない増加した。一方、 μ'' はいずれの熱処理温度においても数百 kHz 帯から増加し、極大をとり、その後減少した。極大となる周波数は熱処理温度の増加にともない低周波側へシフトするものの、 μ'' の立ち上がる周波数は熱処理温度に関係なく、あまり変化しなかった。これらの挙動は、渦電流が抑制されていることを示している。

以上より、10 μm 厚の Fe-3 wt.%Si 薄帯を 673-873 K の温度範囲で熱処理すると、渦電流損失を高周波帯まで抑制したまま、その軟磁気特性が改善できることがわかった。

謝辞 本研究の一部は、文化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, 文科省データ創出・活用型マテリアル研究開発プロジェクト(DXMag), 東北大学 CSIS および CIES の支援の下で行われた。

参考文献

[1] T. Takasu et al., Digests of 174th JIM spring., P4(2024)

[2] Y. Endo et al., Digests of 44th MSJ conf., 55(2020)

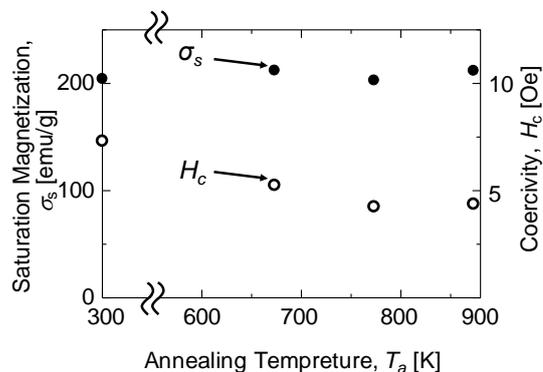


Fig.1 Change in saturation magnetization and coercivity of 10- μm -thick Fe-3 wt.%Si ribbons with annealing temperature.

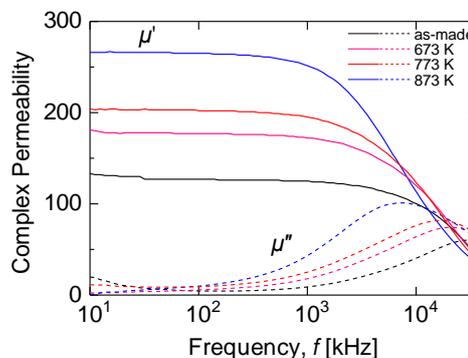


Fig.2 Frequency dependence of complex permeability for Fe-3 wt.%Si ribbons at different annealing temperature.

超高比抵抗な面内一軸異方性ナノグラニューラー膜の 電磁気特性と熱処理挙動

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
(電磁研、*信州大、**東北大)

Electromagnetic properties of annealed in-plane uniaxial nanogranular films having ultra-high resistivity
M. Naoe, M. Sonehara*, K. Miyaji*, T. Sato*, S. Muroga**, Y. Endo**, N. Kobayashi
(DENJIKEN-Res. Inst. EM Mater., *Shinshu Univ., **Tohoku Univ.)

はじめに

磁性金属ナノ粒子が絶縁セラミックから成るマトリックスに分散するナノ組織を呈するナノグラニューラー磁性膜において、マトリックスの絶縁性はバンドギャップおよび結晶性で決まり、量の増加で高比抵抗化するが、磁性体の体積分率低下で磁気特性は希釈され、フェロ磁性からスペロ磁性を経て超常磁性に変わる。面内一軸異方性を誘導した高透磁率を有する高周波膜の比抵抗を、これまで As-depo. で CoZrNb 金属アモルファスの約 10 倍である $15 \mu\Omega\cdot\text{m}$ 程度としてきたが、準安定相故に、フェロ磁性の組成域では熱履歴を経るとナノ組織が変化して比抵抗が低下するため、デバイス応用を念頭に、より高い比抵抗の膜を用意する必要がある。そこで、 $1500 \mu\Omega\cdot\text{m}$ までの範囲で比抵抗を高め、電磁気特性を評価したところ、従来よりも極めて高い比抵抗領域でも高透磁率を伴う面内一軸異方性が得られ、熱履歴を経ても高比抵抗を保ったので報告する。

実験方法

同時スパッタの一種であるタンデム法の陰極を $\text{Co}_{60}\text{Fe}_{25}\text{Ni}_{15}$ (at. %) とし、他方を CaF_2 とした。各陰極と対向する水冷陽極に設置のガラス基板を周速 0.33 m/s で公転させることで、1.07 Pa の Ar ガス圧でプラズマを発生させた両陰極上を交互に通過させた。この時、26 kA/m の直流磁界印加で面内一軸異方性を誘導した。比抵抗(=膜組成)は両陰極への投入電力比で調整し、厚みは成膜時間で制御して約 500 nm とした。なお、一軸異方性の安定のため、全ての試料には 10 nm の CaF_2 単層から成る下地層を設けた。得られた試料は、40 kA/m の直流磁界を面内磁化容易軸に印加した 1×10^{-5} Pa 以下の真空熱処理を施し、膜厚、比抵抗(直流四探針法)、静磁化特性(VSM)、高周波透磁率(短絡マイクロストリップライン法)などにより評価した。

実験結果

一例として、 CaF_2 の体積分率が 36.0 vol. % では、As-depo. での比抵抗が $538 \mu\Omega\cdot\text{m}$ となった。面内一軸異方性の本試料(506 nm)について、Fig. 1 は、筆者らのデバイス作製で想定される最高プロセス温度である 463 K で 1 h 保持した真空熱処理前後の面内磁気特性を比較した結果である。(a)の静磁化特性では、熱処理による磁化容易軸の低保磁力化(3.1→0.9 kA/m)と異方性磁界の増加(4.4→6.7 kA/m)が確認された。(b)の磁化困難軸の高周波複素透磁率では、異方性磁界が増加したにも係わらず 100 MHz での μ' で評価した静的透磁率が向上し(88→98)、 μ'' からは共鳴半値幅の改善(3.43→1.28 GHz)も見られた。熱処理による磁性ナノ粒子の粒成長を伴うナノ組織の均一化や内部応力緩和の効果であると考えられる¹⁾。他方、比抵抗は低下したが、 $17 \mu\Omega\cdot\text{m}$ と高い値を保った。

謝辞

本研究の一部は、JST A-STEP JPMJTR22R9 および JSPS 科研費 JP24H00388 の助成を受けた。

参考文献

1) Naoe, et al.: *J. Magn. Mater.*, **391** (2015) 213.

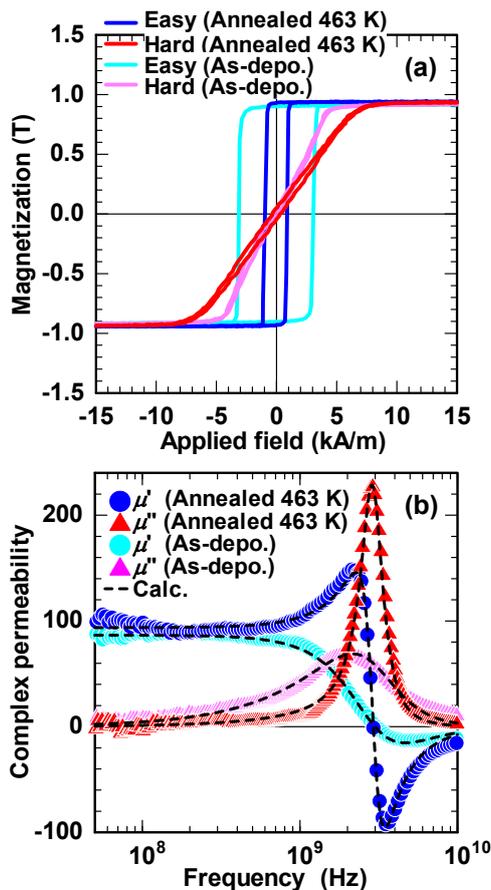


Fig. 1 In-plane magnetic properties of $\text{Co}_{60}\text{Fe}_{25}\text{Ni}_{15}\text{-CaF}_2$ films having resistivity of $538 \mu\Omega\cdot\text{m}$ (as-depo.): (a) magnetization curves and (b) complex permeability spectra of magnetic hard axis.

希土類元素 Gd を用いた新規メタルフェリ磁性材料の設計と評価

岡田 茉佑子¹, 山崎 貴大¹, 河崎 崇広¹, 野崎 岳人¹, 島 侑一郎¹, 早川 聡¹,
Lira Foggianto Alexandre¹, 小嗣 真人¹
(東京理科大学¹)

Design and evaluation of novel metal ferrimagnetic materials using the rare earth element Gd

Mayuko Okada¹, Takahiro Yamazaki¹, Takahiro Kawasaki¹, Taketo Nozaki¹, Yuichiro Shima¹,
Satoshi Hayakawa¹, Alexandre Lira Foggianto¹, Masato Kotsugi¹
(Tokyo Univ. of Sci.¹)

はじめに

世界的な電力消費量の増加に伴い、環境保護の観点から電力使用過程におけるエネルギー損失をいかに低減するかが課題となっている。特に、軟磁性材料に関連するエネルギー損失はデバイス全体の約3割をも占めることから、高性能な新規軟磁性材料の開発が急務とされている。ナノ結晶アモルファス合金は現在最も優れた軟磁性を示す材料の1つであり、元素種の違いにより発現する物性や機能に関する調査が進められている。そこで我々は、FeBを母材とするアモルファス合金に対して希土類元素であるGdを添加した新規軟磁性コンジット合金を提案する。この材料は強磁性ナノ結晶に由来する高い飽和磁化と残留アモルファス金属が有するフェリ磁性に由来する反強磁性交換結合を組み合わせることにより、外部磁場に対する高速応答が可能なメタルフェリ磁性材料として期待できる。本研究では、コンビナトリアル手法を用いて上記提案材料における優れた軟磁性の発現条件を探索し、その材料設計指針の確立を目的とした。

実験方法

RF マグネトロンスパッタリング法を用いて Si(100)基板上に組成傾斜を有する磁性層として $Gd_xFe_{85-x}B_{13}Nb_1Cu_1$ ($x = 0 \sim 25$ at%)に成膜した。また、拡散防止層および酸化防止層として Ta 2 nm を用いた。さらに、赤外線ランプ加熱装置を用いて 250°C から 650°C の異なる温度条件でポストアニールを実施した。作製した試料については、X線回折(XRD)による結晶構造評価、磁気光学 Kerr 効果(MOKE)による磁気特性評価、Spring-8 での X 線磁気円二色性(XMCD)を用いた元素選択的な磁気モーメント解析を行った。

実験結果

MOKE 測定で得られた Gd 添加濃度の異なる熱処理前の試料 (アモルファス前駆体) における磁化曲線を Fig. 1 に示す。Gd 添加に伴って MOKE 信号が減少し、最終的に磁気ヒステリシスが反転する挙動が見られた。これは室温において Gd 濃度 25 at% が磁気補償点となることを示している。さらに、磁化曲線から算出した各 Gd 濃度におけるヒステリシスの傾き (磁化率) を Fig. 2 に示す。Gd の微小添加 (4 at%程度) により添加前よりも磁化率が向上していることを確認した。これは Fe と Gd の反強磁性交換結合が磁化反転の促進に起因したと考えられる。当日は XMCD 解析による磁化反転メカニズムについても考察する。

参考文献

- [1] K. Sano et. al., Scripta Materialia 242, 115956 (2024)
[2] T. Yamazaki et. al., Journal of Non-Crystalline Solids 563, 120808(2021)

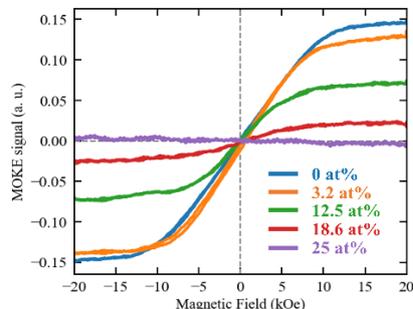


Fig. 1 Magnetization curve at Gd concentrations

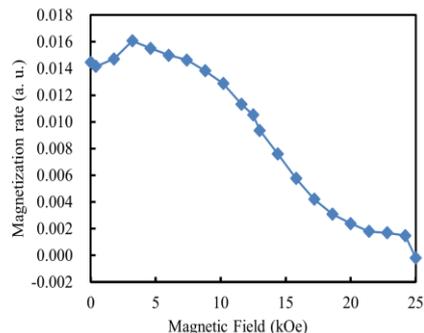


Fig. 2 Magnetization rate at Gd concentrations

時間分解磁気光学カー効果により評価した異なる磁歪定数を持つ Fe-Al-N(001)単結晶膜の磁気緩和

今村光佑¹・磯上慎二²・大野直子¹・大竹充¹

(¹横浜国大, ²物材機構)

Magnetic Relaxation in Fe-Al-N(001) Single-Crystal Films with Different Magnetostrictive Coefficients Characterized by Time-Resolved Magneto-Optical Kerr Effect

Kosuke Imamura¹, Shinji Isogami², Naoko Oono-Hori¹, and Mitsuru Ohtake¹

(¹Yokohama Nat. Univ., ²NIMS)

はじめに Fe-Ni や Fe-Co などの一部の強磁性合金材料において、磁歪定数 λ と磁気緩和定数 α の関係が示唆されている¹⁻⁴⁾。両者は大きく異なる時間スケールの現象から導出される物性定数であり、これらを明瞭に繋ぐ理論的説明はされていないが、磁気モーメントの向きと原子間距離の結びつきに対応する磁歪が、磁気モーメントの歳差運動の格子振動へのエネルギー散逸(緩和)を大きくし、相関として現れている可能性がある。ケイ素鋼やセンダスト、パーマロイなどの磁歪が小さい材料は、ひずみによる透磁率の劣化が起こりにくく、軟磁気特性に優れるため、モータの磁心からスピントロニクス・デバイスの軟磁性層に至るまで様々な場面で利用されている。最近、著者らは軟磁性材料の特性向上と選択肢拡大を見据え、Fe-B や Fe-Al 合金に N を侵入させて、結合状態を制御することにより、磁歪定数を低減する手法を提案している⁵⁾。今後、磁歪が零となる材料探索の切り口として、磁気緩和定数からの視点も重要になる可能性がある。そこで、本研究では、N 添加による磁歪の低減効果を明らかにしつつある Fe-Al-N 合金膜に対して、時間分解磁気光学カー効果 (TR-MOKE) による評価を行うことで磁気緩和挙動を調べた。

実験方法 試料には、反応性スパッタリング法により MgO(001)基板上に形成した、40 nm 厚の bcc-(Fe_{0.8}Al_{0.2})_{100-x}N_x(001)単結晶膜 ($x=0-8.2$ at. %) を用いた。構造解析には RHEED, XRD, XPS, AFM, TEM, 磁気および磁歪特性の評価には VSM および片持ち梁法を使用した。磁気緩和挙動の評価には、TR-MOKE 測定系⁶⁾を用いた。ポンプ光には 630 Hz で変調した、電力 1.3 W, 波長 1028 nm, パルス幅 290 fs, 繰り返し周波数 10 kHz の Yb:KGW レーザを用い、これを分岐して波長変換した 514 nm の第二高調波をプローブ光とし、両ビームの試料到達に掛かる時間差を連続的に変化させて、カー回転角シグナルの時間変化を調べた。外部磁界は膜面法線から 30° 傾斜させた方向に印加し、大きさは 20 kOe で一定とした。なお、磁気緩和定数に異方性が現れることが知られているが³⁾、今回は磁界方向を固定し、材料組成との関係に着目した。

実験結果 磁気緩和の時間発展挙動の一例を Fig. 1 に灰色実線で示す。他の系での報告と類似した、歳差周波数の僅かに異なるモードが混在することによる⁷⁾、うなりを含むパターンとなっていることが分かる。色付実線で重ねて表示しているパターンは、歳差と減衰(緩和)および減磁に対応する項を非線形最小二乗法によりフィッティングした回帰曲線である。主要な低周波数のモードのみを取り出し、歳差周波数 f と緩和時間 τ より求めた^{6,8)}実効的な磁気緩和定数 α_{eff} と、N 添加量との関係を、Fig. 2(a)に示す。N 添加量が増加するにつれ α_{eff} が減少する傾向にある。不純物とも捉えることができる N が格子中に侵入すると、磁気緩和が起こりにくくなることを示唆している。飽和磁歪定数 λ_s の N 添加量依存性を Fig. 2(b)に、 α_{eff} と $|\lambda_s|$ の関係を Fig. 2(c)に示す。N 添加量の増大につれて λ_s も減少し、また、 α_{eff} と $|\lambda_s|$ に正の相関が見られた。

- 1) R. Bonin *et al.*: *JAP*, **98**, 123904 (2005).
- 2) Y. Endo *et al.*, *JAP*, **109**, 07D336 (2011).
- 3) S. Umetsu *et al.*: *IEEE TMAG*, **59**, 2900205 (2023).
- 4) K. Ito *et al.*: arXiv, 2403.16679 (2024).
- 5) 今村光佑ら: 信学技報, **122**, 1 (2023).
- 6) Y. Sasaki *et al.*: *Small*, **18**, 2200378 (2022).
- 7) H. Liu *et al.*: *JAP*, **131**, 213902 (2022).
- 8) S. Iihama *et al.*: *APL*, **105**, 142403 (2014).

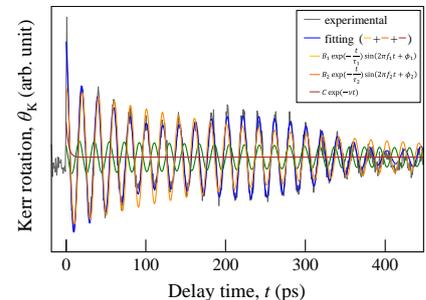


Fig. 1 TR-MOKE signal measured for an (Fe_{0.8}Al_{0.2})₁₀₀N₀ film (gray line) and fitting pattern (color lines).

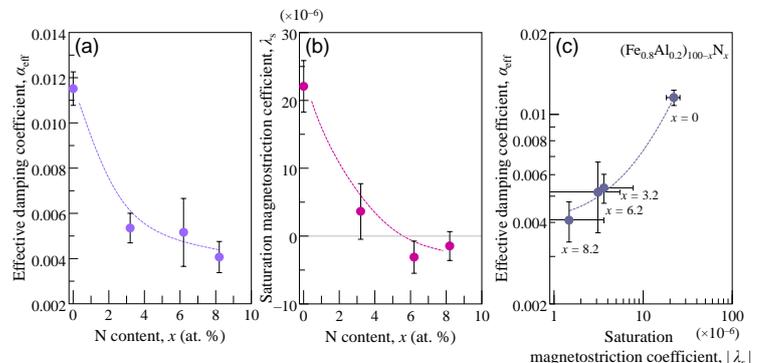


Fig. 2 (a,b) N content dependences of (a) effective damping coefficient, α_{eff} , and (b) saturation magnetostrictive coefficient, λ_s . (c) Relationship between effective damping coefficient α_{eff} and absolute value of magnetostrictive coefficient $|\lambda_s|$ in (Fe_{0.8}Al_{0.2})_{100-x}N_x films.

アモルファス Fe-B-N 合金膜の化学結合状態と磁歪に及ぼす熱処理の効果

磯貝直希・佐藤公泰・今村光佑・川井哲郎・大竹充
(横浜国大)Effect of Annealing on the Chemical Bonding State and the Magnetostriction of Amorphous Fe-B-N Alloy Film
Naoki Isogai, Takayasu Sato, Kosuke Imamura, Tetsuroh Kawai, and Mitsuru Ohtake
(Yokohama Nat. Univ.)

はじめに アモルファス Fe-B 合金は高い透磁率を示す代表的な軟磁性材料であるが、磁歪が大きいことがモータやトランスの磁気コアに適用する際の課題となっている。そこで、正磁歪をもつアモルファス母相中に負磁歪をもつナノ結晶を析出させ、正味の磁歪を低減させた材料が開発されている^{1,2)}。一方、著者らは、メタロイドである B の価電子が Fe の 3d 空孔に入り³⁾、電子状態を変化させることが知られていることから、B-Fe 結合が磁歪の増大に起因していると考えた。そこで、B と親和性が高い N を添加し、原子レベルで局所的に B と N を優先結合させることにより、アモルファス状態を維持したまま、B の価電子が Fe の電子状態に及ぼす影響を抑制し、磁歪を低減させることを試みた。室温で形成した Fe-B-N 膜において、N 組成の増加に伴い、B-Fe 結合ではなく、B-N 結合の形成が促進され、その結果、磁歪が低減したことを報告した⁴⁾。B と N の結合容易性は温度によっても変化すると考えられる。そこで、本研究では、Fe-B-N 合金膜の更なる低磁歪化を目的に、N を添加した Fe-B 合金膜に対して熱処理を施し、結合状態と磁歪特性を調べた。

実験方法 膜形成には、超高真空 RF マグネトロン・スパッタリング装置を用いた。Ar と N₂ ガスの全圧を 0.67 Pa として、N₂ 分圧比を 0~4% の間で変化した混合ガスの雰囲気下で、Fe_{100-x}B_x (x = 13, 18, 25 at. %) ターゲットをスパッタすることにより、40 nm 厚の Fe-B-N 膜を室温で熱酸化 Si 基板上に形成した。その後、同製膜チャンバー内で 200~400 °C の熱処理を施した。構造評価には RHEED, XRD, XPS, AFM, 磁化曲線測定には VSM, 磁歪測定には片持ち梁法を用いた。

実験結果 (Fe_{0.75}B_{0.25})₈₉N₁₁ (at. %) 膜を形成後、200 °C および 400 °C で熱処理を施した結果を示す。Fig. 1 に膜中の B 原子の 1s 軌道からの光電子スペクトルを示す。熱処理なしの膜と 200 °C で熱処理を施した膜とでは差異は殆どない。一方、400 °C で熱処理を施すと、B-N 結合に対応する強度が増加し、B-Fe 結合に対応する強度が減少していることが分かる。そのため、400 °C で熱処理を施すことにより、B-N 結合の形成を促進できることが分かった。Fig. 2 にこれらの膜の磁歪定数を示す。熱処理なしの膜および 200 °C で熱処理を施した膜においても B-N 結合が形成されているため、これらの膜の磁歪定数は $\lambda_s = 10 \times 10^{-6}$ と小さいものであったが、400 °C で熱処理を施した膜の磁歪定数は、 $\lambda_s = 4.7 \times 10^{-6}$ と更に小さな値となった。当日は、B 組成を変化させた場合の結果についても報告する。

- 1) A. Makino, H. Men, T. Kubota, K. Yubuta, and A. Inoue: *IEEE Trans. Magn.*, **45**, 4302 (2009).
- 2) Y. Yoshizawa, S. Oguma, and K. Yamauchi: *J. Appl. Phys.*, **64**, 6044 (1988).
- 3) 今中利信: 生産と技術, **39**, 40 (1987).
- 4) 磯貝直希, 佐藤公泰, 今村光佑, 川井哲郎, 大竹充: 日本鉄鋼協会第 188 回講演大会 (2024).

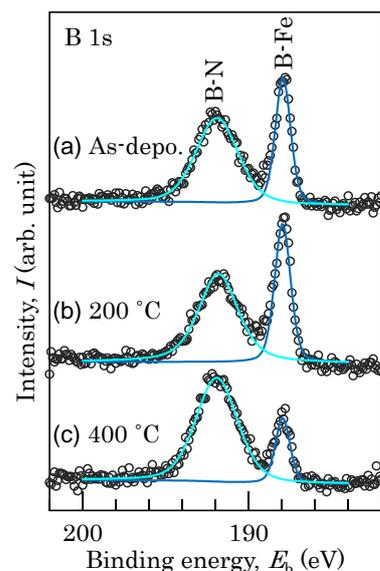


Fig. 1 XPS spectra from 1s orbital of B atoms in (a) as-deposited (Fe_{0.75}B_{0.25})₈₉N₁₁ film and (b, c) films annealed at 200 and 400 °C.

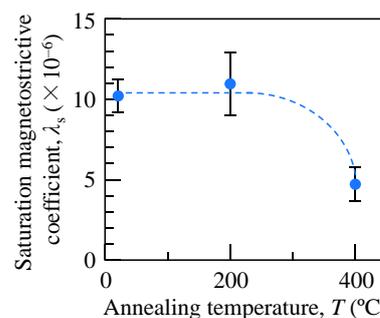


Fig. 2 Annealing temperature dependance of saturation magnetostrictive coefficient.

Fe-Ga 系ナノ結晶材料の磁歪特性における Ga 濃度依存性

佐野光哉, 山崎貴大*, 岡智絵美, 櫻井淳平, 秦誠一
(名大, *東京理科大)

Dependence of Magnetostrictive Properties on Ga Composition in Fe-Ga Nanocrystalline Materials

K. Sano, T. Yamazaki*, C. Oka, J. Sakurai, S. Hata
(Nagoya Univ., *Tokyo Univ. Sci.)

はじめに

磁歪式振動ハーベスタへの応用に向け、我々は大磁歪量と高軟磁性を両立する材料として Fe-Ga 系ナノ結晶材料を提案している¹⁾。本材料は Fe 基ナノ結晶材料をベース材料として、その Fe の一部を Ga に置換することで作製される。先行研究では Ga を微量添加したサンプルを作製・評価し、ベース材料と同様にアモルファス母相とナノ結晶相からなるナノ組織を持つことで高軟磁性を示すことに加え、ベース材料では各相で相殺される磁歪を積極的に発現させることで大きな磁歪量を持つことを示した。本発表では、更なる調査として、Ga 添加量が 0–30 at.% のサンプルについて磁歪特性を評価したため報告する。

実験方法

薄膜サンプルのアモルファス前駆体は、20×6 mm の Si 基板上に RF マグネトロンスパッタリング装置を用いて回転成膜を行うことで成膜した。この前駆体を赤外ランプ加熱炉を用い、ナノ結晶化温度以上で熱処理することでナノ組織を有する薄膜サンプルを作製した。成膜には、ベース材料組成と Ga 添加用組成の 2 種類のターゲットを用いてスパッタ出力を制御することで、 $(\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x)_{82.3}\text{Si}_{0.5}\text{B}_{13.5}\text{P}_1\text{C}_2\text{Cu}_{0.7}$, $x = 0 - 30$ at.% と種々の Ga 濃度のサンプルを作製した。作製した薄膜サンプルの磁歪特性は光てこ法により磁歪曲線を測定し、評価パラメータとして飽和磁歪量、軟磁性の指標として飽和磁場を用いた。

実験結果

Fig. 1 に、Ga 添加量に対するナノ結晶材料の磁歪特性を示す。まず青三角形で示される飽和磁場は、Ga 添加量に依らず同等の低い値を示している。X 線回折測定により Ga 添加量に依らず微細な結晶粒の析出を確認したため、Ga 添加量を 30 at.% まで増大させてもナノ組織を有し、これにより高い軟磁気特性を維持したと考えられる。

次に黒丸の磁歪量に着目すると、 $x \leq 11$ at.% では Ga 添加量に従い磁歪量は増大したが、 $x \geq 19$ at.% では減少している。前者の磁歪量の増大は Fe ナノ結晶相への Ga 固溶により正磁歪化したためである¹⁾。後者の磁歪減少については、化合物相の析出により磁気特性が劣化したためと考察している。実際、熱処理温度における Fe に対する Ga の固溶限界が 17 at.%²⁾であり、透過電子顕微鏡を用いた電子回折像からも化合物相の析出を示唆する結果を得ている。

参考文献

- 1) K. Sano et al., *Scripta Materialia*, **242**, 15, 115956 (2024).
- 2) H. Okamoto, *Bulletin of Alloy Phase Diagrams*, **11**, 576–581 (1990).

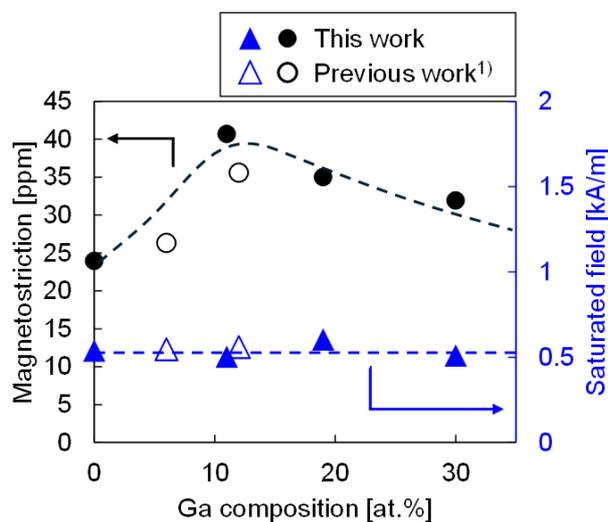


Fig. 1 Magnetostrictive properties of nanocrystalline samples as a function of Ga composition.

磁気バルクハウゼンノイズ(MBN)測定による、アモルファス及びナノ結晶軟磁性材料中の磁壁ダイナミクスの解析

田丸慎吾、山崎貴大*
(産総研、*東京理科大)

Analysis of domain wall dynamics in amorphous and nanocrystalline soft magnetic materials by means of magnetic Barkhausen noise (MBN) measurements

S. Tamaru, T. Yamazaki*
(AIST, Tokyo Univ. of Sci.)

はじめに

金属軟磁性材料においては、ヒステリシス損、古典渦損および異常渦損の3つが主要な損失機構だと考えられている[1]。これらのうち、異常渦損は磁壁が移動する際に、磁壁近傍で誘起される渦電流による損失であり、局在化しているため古典渦電流よりもずっと電流密度が高く、動作周波数によっては総損失に最も大きく寄与する。従って異常渦損の機構を解明し、その低減につなげる事は極めて重要である。

磁性体内において磁壁は様々な欠陥によってピン止めされ、そこから外れるという動きを繰り返す。このため磁化曲線を拡大すると多数の小さなジャンプから成り立っており、これをコイルで微分するとジャンプに伴うパルス状のノイズが検出される。これが磁気バルクハウゼンノイズ(MBN)である。MBNの損失に対する影響を考えると、磁壁がピン止めされれば局所的な保磁力が上がり、また磁壁速度が揺らぐと、等速運動した時よりも渦電流の二乗平均が大きくなるため、ヒステリシス損及び異常渦損が増大する、つまりMBNと磁気損失は正の相関を示すことが予期される。しかしこれまでナノ結晶材料や、その前駆体であるアモルファス材料においてMBNと損失の関係を調べた研究は皆無であった。

本研究では、高感度MBN測定システムを構築し、これまで困難であったアモルファスやナノ結晶材料のMBNの検出に成功し、またその結果から磁壁の挙動について新規な知見が得られたので報告する。

実験結果

Fig. 1にMBN測定システムのブロック図を示す。DAQユニットが1 Hzのサイン波を発生し、これが電流アンプを介して二重コイルの片方に流れ、その中に挿入された試料の磁化を励起する。磁化変化はもう一方のコイルによって検出され、その信号は低雑音アンプで増幅されたのちにDAQによって取り込まれる。

試料には、厚さ25 μm ナノメット箔帯小片の熱処理前(アモルファス)と後(ナノ結晶)材料の箔帯小片を用いた。これらを約10 x 2.5 mm^2 の短冊状に切り出し、二重コイルに挿入して磁化変化を測定した。その結果をFig. 2に示す。アモルファス試料からは明瞭なMBNが観測された。この結果では、MBNパルスが密に発生しているように見えるが、波形を拡大すると、実際には個々のMBNパルスは孤立しており、また立上がり急峻で、立下りがなだらかである事が判った。この立下り曲線を指数関数でフィッティングすることにより、緩和時間が平均で3~4 μs 程度と見積もられた。これは磁壁がピン止めから外れて平衡速度に達する際の、異常渦電流によるダンピング挙動を示しているものと考えられる。一方ナノ結晶材料では、MBNがずっと小さかった。これはナノ結晶化により磁壁移動が滑らかになり、損失が低減したと定性的に一致する。

参考文献

1) G. Bertotti, et al., "A new approach to the study of loss anomaly in SiFe." IEEE Trans. Magn. 17.6, 2852 (1981).

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。

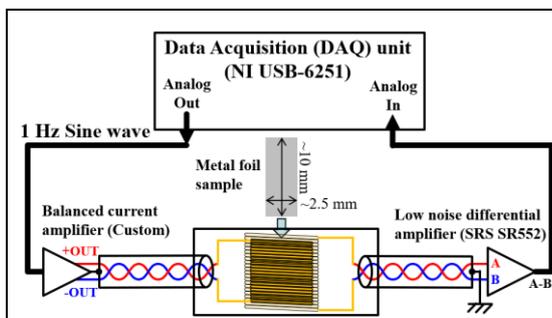


Fig. 1、本研究で構築したMBN測定システムのブロック図。

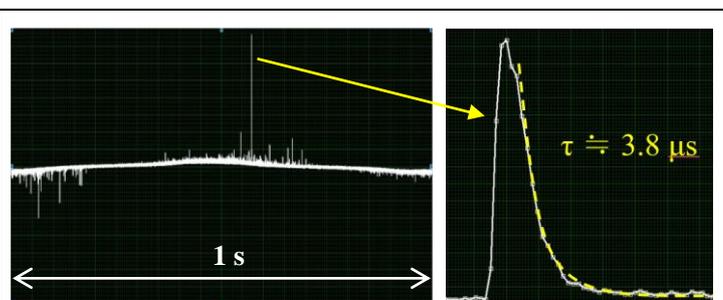


Fig. 2、アモルファス材のMBN測定結果、(左図)1サイクル全体の波形、(右図)最大振幅パルスの拡大波形。

Fe-Zr-P 系合金ナノクリスタル材料の磁気特性と構造

佐久間 穂崇*, 中村 悠紀, 齋藤 哲治, 渡邊 洋*
(千葉工業大学, *東静工業(株))

Magnetic properties and structure of Fe-Zr-P nanocrystalline alloys
H.Sakuma*, Y.Nakanura, T.Saito, H.Watanabe*
(Chiba Institute of Technology, *TOHSEI INDUSTRIAL CO.,LTD.)

はじめに

軟磁性材料において、電気機器の小型化のためには飽和磁束密度 B_s が高く保磁力 H_c が小さいこと、透磁率 μ が高く低損失であることなどが要求される。しかし、高 B_s で高透磁率 μ ・低損失を実現することは難しく現状は各使用用途に合わせ軟磁性材料を使い分けている。

高 B_s と優れた軟磁気特性を発現するナノクリスタル合金として Fe-Zr-B 系ナノ結晶合金や Fe-B-Cu 合金, Fe Si B P Cu (ナノメット), Fe Si B Nb Cu (ファインメット), などが開発されている。これらの材料は最適熱処理後に bccFe 結晶がナノサイズで生成されることが報告されている。

一方、非 B 系の Fe 系ナノクリスタル合金に関してほとんど報告がされていない。本研究では、Fe-Zr-P 系合金を作製し P 添加による磁気特性及び構造について検討したので報告する。

実験方法

Fe-Zr-P 系合金は単ロール液体急冷方により幅 1 mm 程度のリボン状試料で作製した。作製した試料の結晶化開始温度 T_{x1} , は DTA より求めた。

T_{x1} 以上の温度で無磁場熱処理を実施した。磁気特性測定にはトロイダル形状の試料を用いて評価した。

急冷後および熱処理後の試料の結晶構造は XRD にて同定した。結晶粒径 (D) は Scherrer の式より、格子定数 (a) は Bragg の式よりそれぞれ求めた。

実験結果

Fig.1 に $Fe_{89}Zr_{11}$ 及び $Fe_{88}Zr_{11}P_1$ の熱処理後の比透磁率の周波数特性を示す。(作製した Fe-Zr 系組成の構造について初期結晶構造はアモルファス構造であった) 図より、 T_{x1} 以上の温度 ($650^{\circ}C$) での熱処理後には bcc 単層の構造が得られており、 αFe のピークが確認された。粒径サイズは 10 から 50nm 程度が得られた。

比透磁率は $Fe_{89}Zr_{11}$ 合金で 250 (1kHz) 程度が得られた。本組成にて、Fe を P に 1at% 置換した $Fe_{88}Zr_{11}P_1$ 合金では比透磁率は約 2 倍の 500 (1kHz) 程度まで増加する傾向が見られた。

本検討より、P を添加した Fe-Zr-P 系合金がナノクリスタル合金となることが明らかになった。

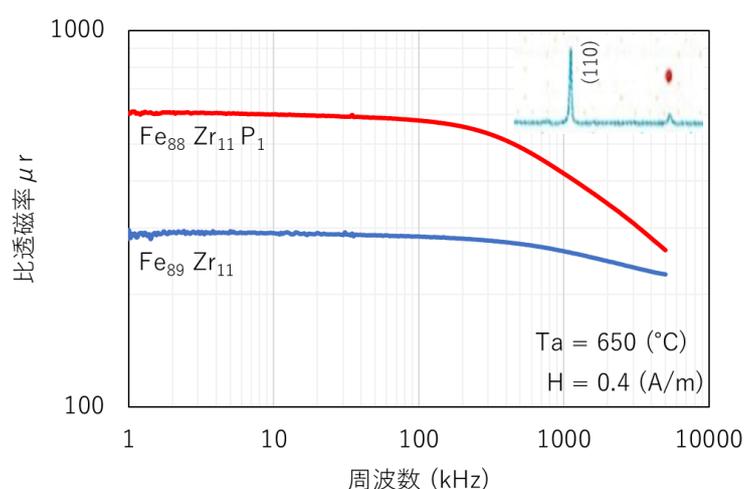


Fig.1 Frequency response of magnetic permeability μ in Fe-Zr-P alloys

サブミクロン Fe-B 微粒子における磁気特性の熱処理速度による影響

増本千裕¹, 宮崎孝道¹, 阿加賽見¹, 室賀翔¹, 遠藤恭¹

(1. 東北大)

Influence of annealing temperature on magnetic properties in submicron sized Fe-B particles

Masumoto Chihiro¹, Miyazaki Takamichi¹, Ajia Saijian¹, Muroga Sho¹, Endo Yasushi¹

(1. Tohoku Univ.)

緒言

ワイドバンドギャップ半導体技術の進歩により、電源回路の高周波駆動が可能になった一方で、磁性材料からなる受動素子は、高周波帯域での渦電流損失の増大や磁気共鳴による透磁率の低下などの問題がある。そこで、新たな磁性材料として、共鳴周波数が高く、サブミクロンにダウンサイズすることで渦電流を抑制可能なアモルファス磁性微粒子が注目されている。我々はこれまでにサブミクロンのアモルファス Fe-B 球状微粒子を水溶液還元法により合成し、数百 MHz~数 GHz まで渦電流損失を抑制することを報告した^[1]。本研究では、合成したサブミクロン Fe-B 微粒子の磁気特性のさらなる向上を目指して、加熱速度を変化させて熱処理を施し、それらの構造と磁気特性について検討した結果について報告する。

実験方法

水溶液還元法を用いてサブミクロン Fe-B 微粒子を合成した。合成した微粒子は Ar ガス中で 400~600°C の間で熱処理を行った。ここで、熱処理速度は、200°C/h および 6.7°C/s とした。

熱書影を施した微粒子の形状および構造に関しては SEM, XRD を、磁気特性に関しては微粒子を樹脂中に分散させて作製したコンポジット材を用いて VSM および短絡型マイクロストリップ線路とベクトルネットワークアナライザを組み合わせた複素透磁率測定法によって評価した。

実験結果

図 1 に熱処理前後での Fe-B 微粒子の XRD パターンの一例を示す。熱処理前および 200°C/h の加熱速度で熱処理した Fe-B 微粒子では、回折ピークが観測されなかった。一方で、6.7°C/s の熱処理速度で熱処理した Fe-B 微粒子では、 α -Fe および Fe-B 化合物に由来する複数の回折ピークが見られた。これは、合成した Fe-B 微粒子がアモルファスであり、低速熱処理では結晶化せず、急速熱処理によって結晶化することを表している。

図 2 に熱処理前後の Fe-B 微粒子における磁気特性を示す。200°C/h の熱処理では、熱処理温度の増加とともに飽和磁化 σ_s は 146 から 154 emu/g にわずかに増加し、保磁力 H_c には変化は見られなかった。一方で 6.7°C/s の熱処理では、400°C 以上の熱処理で σ_s は 161 emu/g まで大幅に増加し、 H_c も、23.1 から 217 Oe まで大幅に増加した。これは、急速熱処理により、 α -Fe および Fe-B 化合物が析出したことによると考えられる。

以上の結果は、サブミクロン Fe-B 微粒子に適切な熱処理速度で熱処理を施すことで、磁気特性が向上する可能性が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 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)

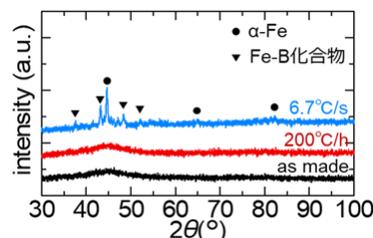


図 1 熱処理前後の Fe-B 微粒子の XRD パターン

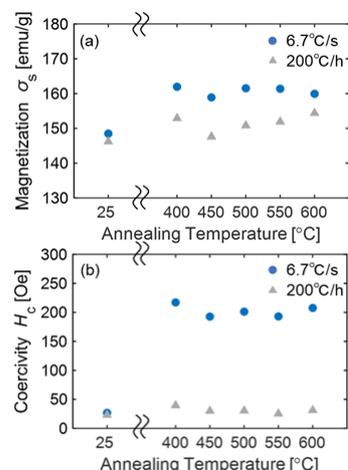


図 2 熱処理前後の Fe-B 微粒子の (a) 飽和磁化, (b) 保磁力

組成の異なるサブミクロン Fe-Ni-B 微粒子の静的・動的磁気特性

若林 和志¹, 室賀 翔¹, 宮崎 孝道¹, 神田 哲典², 遠藤 恭¹

(¹東北大学, ²大島商船高等専門学校)

Magnetic properties of submicron Fe-Ni-B particles with different compositions

Kazushi Wakabayashi¹, Sho Muroga¹, Takamichi Miyazaki¹, Tetsunori Koda², Yasushi Endo¹

(¹Tohoku Univ., ²NIT, Oshima College)

はじめに サブミクロンサイズの軟磁性微粒子は、渦電流の影響を抑制しつつも共鳴周波数を高周波化させることが可能であり、次世代高周波磁気デバイスを構成する材料として期待されている。また、軟磁性微粒子がサブミクロンサイズまで微細化した場合、多磁区構造から磁気渦構造に変化することがマイクロマグネティクスシミュレーションにより示唆されている¹⁾。したがって、サブミクロン軟磁性微粒子を用いたデバイスのさらなる創製のために、その磁区構造と磁気特性の関連性を解明する必要がある。これまでに、我々の研究グループでは、水溶液還元反応法を用いてサブミクロンサイズの Fe-Ni-B 微粒子を合成し、複素透磁率の虚部に磁区構造と磁化回転の共鳴による二峰性のピークが現れることを報告した²⁾。本研究では、新たに組成を変化させた Fe-Ni-B 微粒子を合成し、その磁区構造と磁気特性の組成依存性について検討する。

実験方法 Fe-Ni-B 微粒子は、Fe 塩と Ni 塩を溶解させた水溶液中に還元剤となる NaBH₄ を滴下することで合成した。このとき、Fe 塩と Ni 塩の量を調整(Fe²⁺:Ni²⁺=3:7-8:2)することで、組成の異なる Fe-Ni-B 微粒子を合成した。合成した微粒子は真空熱処理炉を用いて Ar ガス雰囲気中で 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、TEM および ICP を用いて評価した。また、磁気特性に関しては、微粒子を樹脂中に分散させて作製したコンポジット材を VSM および短絡型マイクロストリップ線路を用いた複素透磁率測定法により評価した。

実験結果 図 1 に組成の異なる Fe-Ni-B 微粒子における SEM 像の例を示す。合成した Fe-Ni-B 微粒子はいずれの条件でも非凝集性の均一な球状で、サブミクロンサイズであった。また、Fe の含有率の増加にともない粒径が大きくなった。

図 2 に組成の異なる Fe-Ni-B 微粒子コンポジット材における複素透磁率の周波数依存性を示す。実部 μ' に関して、Fe²⁺:Ni²⁺=3:7-7:3 の場合ではおよそ 1.7-2.5 となった。一方で、Fe²⁺:Ni²⁺=8:2 の場合では 3.4 と急激に増加した。それにともない、虚部 μ'' に現れる二峰性のピークが、Fe²⁺:Ni²⁺=8:2 の場合、ブロードな一つのピークとなった。この μ' と μ'' における周波数特性の変化は、飽和磁化の増加により粒子間に磁気双極子相互作用が働いたためと考えられる。すなわち、 μ' の増加は個々の微粒子における反磁界の減少によるものであり、 μ'' における挙動の変化は粒子間の磁区構造の変化によるものと考えられる。

以上の結果は、サブミクロンサイズの軟磁性微粒子において、飽和磁化の大きさによって磁区構造が変化し、磁気特性に影響す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 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、本研究は JSPS 科研費 JP24KJ0415 および東北大学 GP-MS、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) W. Rave, K. Fabian, A. Hubert, J. Magn. Mater., 190, 332-348 (1998).
- 2) 第 47 回日本磁気学会学術講演大会(大阪), 29aC-7, 2023.

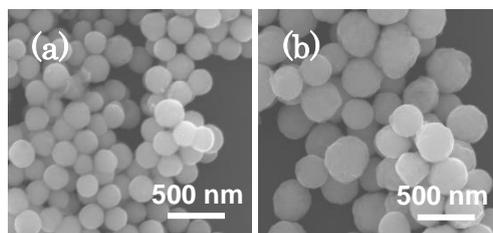


Fig. 1 SEM images of Fe-Ni-B particles (a) Fe²⁺:Ni²⁺=5:5 (b) Fe²⁺:Ni²⁺=8:2.

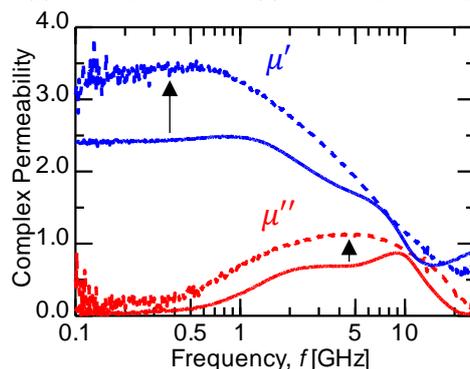


Fig. 2 Complex permeability of Fe-Ni-B composites (solid line) Fe²⁺:Ni²⁺=5:5 (dashed line) Fe²⁺:Ni²⁺=8:2.