

データ駆動拡張型ランダウ模型による磁性材料の保磁力解析

三俣千春、*Alexandre Lira Foggiatto、*小嗣真人
(筑波大、*東京理科大)

A Data-driven Extended Landau Model for the Coercivity Analysis of Magnetic Materials

C. Mitsumata, *Alexandre Lira Foggiatto and *M. Kotsugi
(Univ. of Tsukuba, *Tokyo Univ. of Science)

1 はじめに

平均場的に磁化状態を秩序変数として利用したランダウ理論では磁化過程の解析が可能であった。系の自由エネルギー $F = U - k_B T S$ について、内部エネルギーを U として様々な磁気エネルギーを取り扱うことができる。ここで k_B, T, S はそれぞれボルツマン定数、温度、エントロピーを表す。例えば、主として磁気異方性の効果に着目すれば、ランダウ模型から現象論的に保磁力を記述する Kronmüller 式を導くことも可能である¹⁾。また、磁化状態の関数としてのエントロピー S に依存して、保磁力の温度依存性の議論を展開することも行われた²⁾。

しかし、現実的な磁化過程においては、磁区構造の存在とそれに伴う磁壁移動や磁化回転が複雑に絡み合うので、平均場的なパラメータ設定では解釈の難しい現象が数多く残る。そこで本論文では、状態変数とエネルギーの関係性を簡便に吟味できるランダウ模型の利点を生かしつつ、実測した磁区画像からデータを抽出して空間不均一性を含んだ磁化過程の解析を行う方法を提案する。本手法はデータ駆動型のマテリアルズ・インフォマティクスの方法を解釈性を担保した形で実行する便利な模型であり、磁区構造解析を超えて幅広く応用可能な技術となっている。

2 結果および考察

ランダウ理論を用いた保磁力解析では、有効磁場 $H_i^{\text{eff}} = |-\partial F(m)/\partial m|$ の最大値を求めることが目標となった¹⁾。この関係式を利用するため、状態変数を記述する $m = D(v_i^F, v_j^F, \dots)$ となる関数 D を生成し、磁化に対するデータ同化を実行する。ここで、 v_i^F, v_j^F, \dots は磁区画像から機械学習によって抽出された特徴量データである。データがガウス分布で近似できる場合には説明変数 v_i^F らは互いに直交し、 $m = D_i(v_i^F)$ のように一つの座標系に射影することができる。この記述子を有効磁場 H_i^{eff} の式に代入して、汎関数微分を用いて計算すると、

$$H_i^{\text{eff}} = \sigma_i \left| -\frac{\partial F(v_i^F)}{\partial v_i^F} \frac{\partial D_i^{-1}(m)}{\partial m} \right| \quad (1)$$

のように求められる³⁾。ここで σ_i はデータ v_i^F の寄与率を表しており、これが小さすぎると保磁力の変化に関与していない事となる。 $F(v_i^F)$ はデータ空間に射影された自由エネルギー地形であり、この傾斜が大きいほど保磁力が増大する可能性が高くなる。 $v_i^F = D_i^{-1}(m)$ は m に対するデータ同化を実行した関数 D_i の逆関数である。 $\partial D_i^{-1}(m)/\partial m$ はデータ v_i^F と m の局所的相関係数に対応し、磁区構造変化と磁化変化の相関が強い場合には保磁力が増大する原因となることが理解される。

以上の結果から、磁区構造データを元にした保磁力 H_c の表現は、 $H_c = \sqrt{\sum_i (H_i^{\text{eff}})^2}_{\text{max}}$ で与えられる。 v_i^F の生成では画像フーリエ変換など様々な手法を利用することが可能であり、磁区画像中の特定の領域と対応している。また、データの機械学習で主成分分析を用いた場合には、自由エネルギー地形 $F(v_i^F, v_j^F, \dots)$ を直交空間で描画することが可能である。これらのことから、データ駆動拡張型ランダウ模型によって、保磁力機構における磁区構造の影響を直接議論できる手法が整った。

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) C. Mitsumata and M. Kotsugi; *J. Magn. Soc. Jpn.*, **46**, 90 (2022)..
- 2) 三俣千春, 小嗣真人, 岡本聡; 日本磁気学会論文特集号, **8**, 21 (2024)
- 3) Alexandre Lira Foggiatto, Sotaro Kunii, Chiraru Mitsumata, and Masato Kotsugi; *Communications Physics*, **5**, 277 (2022)

磁性物質への Neural Network Potential の適用と精度検証

立津 慶幸、松本 憲志*、佐藤 良太*、寺西 利治**

(名桜大、*京大化研、**京大院理)

Applying neural network potentials for magnetic compounds and verification of their precision

Yasutomi Tatetsu, Kenshi Matsumoto*, Ryota Sato*, Toshiharu Teranishi**

(Meio Univ., *Institute for Chemical Research, Kyoto Univ., **Dept. of Chem., Grad. School of Sci., Kyoto Univ.)

はじめに

超スマート社会の実現に向けて、AI やロボットによる自動化の研究開発が加速化している。これら多くの電子機器の動力部分は磁性材料が重要な役割を担うため、脱炭素化を念頭に入れた新奇磁性材料探索は精力的に研究が実施されている分野である。また、コンピューターハードウェア・ソフトウェア開発の目覚ましい進展に支えられ、コンピューターシミュレーションによる物質材料探索に期待が高まっている。本研究では、非常に短時間で原子レベルの物理シミュレーションを実行できることで近年注目を集めている Neural Network Potential (NNP) を、Fe を含む磁性物質に適用し、第一原理計算の結果と比較することでその精度検証を行った。

計算方法

複数の磁性物質に対し、NNP が実装されている Matlantis^{(1), (2)} を適用し、構造最適化と生成エネルギーの計算を行った。また、NNP によって得られた最安定構造と生成エネルギーの信頼度を確保すべく、第一原理計算コードの OpenMX⁽³⁾ を用いてその精度検証を実施した。

計算結果

Fig. 1 は、OpenMX と Matlantis を用いて計算された各物質の生成エネルギーの比較である。計算対象は、希土類永久磁石や、共同研究を進めている京都大学化学研究所の寺西グループにおいて合成可能性を検証するために選定した、Fe を含む約 200 個の物質群である。青の点(または領域)は、両プログラムの傾向が一致する部分、赤はその逆を意味しており、ほとんどの物質で傾向の一致が得られた。この物質群の中には、最近化学合成に成功した新奇 Z3-Fe-Pd-In 相⁽⁴⁾ も含まれており、両計算結果はよい一致を示している。このことから、短時間で構造最適化計算が可能な NNP の有用性を示すことができた。一方、赤の領域に分類された物質群もいくつか存在したため、その傾向を調べたところ、これらは重い元素を有するケースであることを確認し、Matlantis を利用する際に注意を払うべき元素種を特定することができた。不一致の理由については、詳細な解析が必要と考えている。精度の確認は、最終的には高精度の第一原理計算と比較が必須となるが、大量に計算を必要とするハイスループット計算には有効である可能性が示唆される。

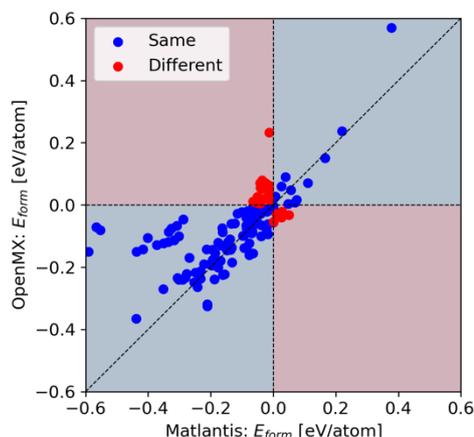


Fig. 1 Comparison of formation energies calculated with OpenMX and Matlantis.

参考文献

- 1) S. Takamoto, *et al.*, Nat Commun 13, (2022) 2991.
- 2) Matlantis (<https://matlantis.com/>), software as a service style material discovery tool.
- 3) <http://www.openmx-square.org>
- 4) K. Matsumoto *et al.*, Nat. Commun., 13, (2022) 1047.

NiFeCuMo/Cu 多層膜の積層構造による共鳴周波数変化

喜々津 哲、白鳥 聡
(株)東芝

Resonance Frequency Change by the Stacking Structure of NiFeCuMo/Cu Multilayers

Akira Kikitsu and Satoshi Shirotori

(Toshiba Corp.)

はじめに

半導体素子間の電磁波干渉(EMI)対策として、チップモールド上に直接シールド膜を成膜する direct-on-chip シールドが検討されている¹⁾。一方、電気自動車などに用いるパワー半導体の性能向上に伴って MHz 前後での EMI が課題となってきている。著者らは、磁気共鳴を電磁波の多重反射でエンハンスする独自の磁性/金属多層シールド膜を検討しているが^{2,4)}、[Cu(100 nm)/NiFeCuMo(100 nm)]₁₀ 多層膜において、50 MHz 近傍にピークを持つシールド性能が得られることを見出した^{3,4)}。この現象は、静磁結合した多層の磁性膜における低エネルギーの磁壁共鳴によるものと思われ^{3,4)}、積層構造を介した静磁結合の制御によりシールド性能を低帯域化できる可能性がある。実際、軟磁性層との積層でピーク周波数 1 MHz が得られている^{3,4)}。

本研究では、これら帯域制御の肝となる磁壁共鳴を誘起する Cu/NiFeCuMo 多層構造に着目し、積層構造による共鳴周波数の変化について検討を行ったので、その結果を報告する。

実験方法

サンプルはマグネトロンスパッタにより 2.5cm 角のガラス基板上に成膜した。磁性層には Ni₇₇Fe₁₄Cu₅Mo₄ (at.%)合金ターゲットを用いた。NiFeCuMo(NFCM)層の下には Ta ブレーク層を入れ、結晶粒成長を抑制して軟磁性を保つようにした。膜構成は、基板/Ta(5 nm)/[Ta(5 nm)/NFCM(100 nm)/Cu(100 nm)]_n/Ta(5 nm)である。シールド性能は過去と同様の手法^{3,4)}で、磁化困難軸方向で測定した。シールド効果 MSE (dB)は $-20\log(\text{透過パワー}/\text{投入パワー})$ で定義した。

結果および検討

シールド性能(MSE)の積層数(n)依存性を Fig.1. に示す。n=4 のときは 400 MHz にピークのある特性であるが、積層数を増やすとそれが低域と高域とに分離し、低域ピークはより低域に、高域ピークはより高域にシフトしている。FMR と磁壁共鳴が混在したようなモードだったものが、積層数と共に二つの共鳴が各々存在するモードになっている。積層数と低域側の共鳴周波数との関係を Fig.2 に示す。共鳴周波数は概ね積層数(総厚、磁性層厚)の逆数に比例する関係があることがわかった。この傾向は静磁結合を左右する Cu 厚によっても変化する。

参考文献

- 1) K. Yamada et al.: *IEEE International Symposium on EMC 2011*, 432 (2011).
 - 2) A. Kikitsu et al.: *J. Magn. Magn. Matr.*, **539**, 168339 (2021).
 - 3) A. Kikitsu et al.: *Proceedings of 2022 IEEE International Symposium on EMC&SIPI*, p. 643 (2022).
- 喜々津、白鳥：まぐね **19**、p.29 (2024).

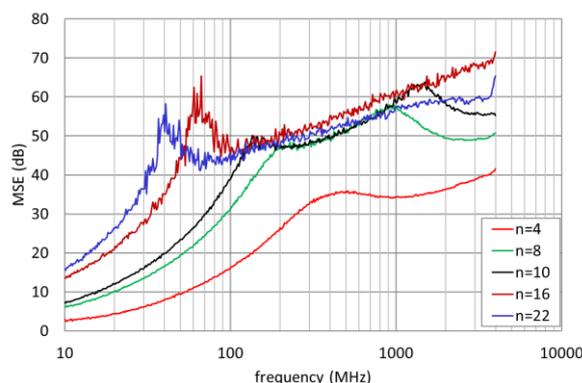


Fig.1 Shielding effect of the multilayer samples.

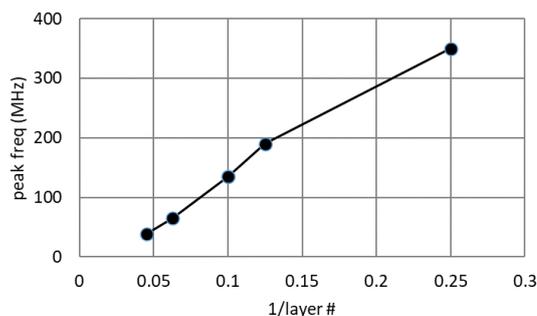


Fig.2 Stacking number dependence of the resonance frequency.

マイクロ波の周波数変換に向けた透磁率時間変調メタ材料

児玉 俊之¹, 菊池 伸明², 岡本 聡^{3,4}, 大野 誠吾⁵, 富田 知志^{1,5}
(東北大高教機構¹, 秋田大院理工², 東北大多元研³, 東北大 CSIS⁴, 東北大院理⁵)

Time-varying Permeability Metamaterials towards Microwave Frequency Conversion

Toshiyuki Kodama¹, Nobuaki Kikuchi², Satoshi Okamoto^{3,4}, Seigo Ohno⁵, Satoshi Tomita^{1,5}

(IEHE, Tohoku Univ.¹, Akita Univ.², IMRAM, Tohoku Univ.³, CSIS, Tohoku Univ.⁴

Dept. of Physics, Tohoku Univ.⁵)

1 はじめに

波長より十分小さな人工構造で、誘電率 (ϵ) や透磁率 (μ) を自在に制御した人工物質をメタ材料と呼ぶ。特に ϵ や μ を時間領域で制御する時間変調メタ材料 [1] では、入射電磁波の周波数は変調周波数で上方と下方に変換される。これまでの実験系では、 ϵ の時間変調が主に行われてきた [2]。一方で我々は、マイクロ波帯の周波数変換に有利な μ 変調型のメタ材料を実現し、ミリ波やテラヘルツ光の光源へ応用することを目指している [3]。今回、エルステッド磁場を用いて強磁性金属パーマロイ ($\text{Fe}_{20}\text{Ni}_{80}$) の μ を時間変調するメタ材料を作製し、マイクロ波の周波数変換を観測したので報告する。

2 透磁率時間変調メタ材料の作製

Fig. 1(a) にスパッタリング成膜とフォトリソグラフィーで作製した μ 時間変調メタ材料の光学顕微鏡像を示す。(b) は (a) の拡大図である。まず非ドープシリコン基板に蛇行線路を厚さ 200 nm の金 (Au) で作製した。次に蛇行線路を覆うように、厚さ 200 nm のガラス (SiO_2) を成膜した。その上に、並行伝送線路 (CPW) を厚さ 200 nm の Au で作製した (Fig.1(a)(b) の赤色領域)。CPW は蛇行線路と垂直な x 方向に配置した。最後に厚さ 250 nm の強磁性金属 $\text{Fe}_{20}\text{Ni}_{80}$ を蛇行線路と CPW が交差する領域に成膜した (Fig.1(b) の緑色領域)。

3 透磁率時間変調メタ材料による周波数変換の観測

電磁石で 21.7 mT の外部磁場を $-x$ 方向に印加した。4.0 GHz のマイクロ波電流を CPW に流し、スペクトラムアナライザで分析した透過波を Fig. 1(c) に示す。変調していない黒線では、4.0 GHz にのみ信号が見られる。ここで、蛇行線路に $f_{\text{mod}}=0.1$ GHz の交流電流を流す。すると、蛇行線路を流れる電流が生み出すエルステッド磁場が $\text{Fe}_{20}\text{Ni}_{80}$ に対して x 方向に発生する。この交流エルステッド磁場は外部磁場と並行なので、共鳴磁場が f_{mod} の周波数で変調され、共鳴周波数が変調される。その結果、CPW を流れるマイクロ波は f_{mod} で μ の変調を受ける。透過波は (c) の赤線になり、 4.0 ± 0.1 GHz に変換波が得られる。現在は、変換効率を上げることで、より高次の変換波の観測に取り組んでいる。

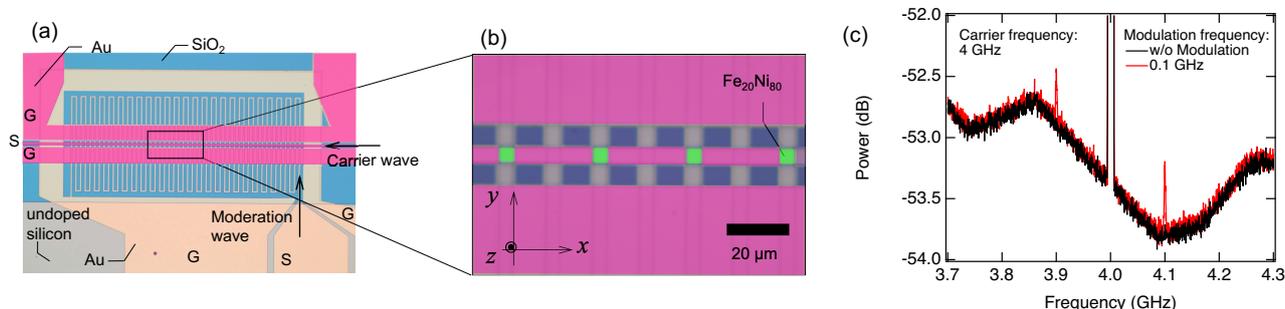


Fig1 (a) Sample and (b) enlarged photograph. (c) Transmission spectra with or w/o modulation.

本研究は JST-CREST (JPMJCR2102) によって支援されている。東北大の金森義明教授との有益な議論に感謝する。

[1] E. Galiffi et al., AP 4, 014002 (2022). [2] Y. Zhou et al., Nat. Commun. 11, 1 (2020). [3] T. Kodama et al., PRAppI. 19, 044080 (2023), PRB. 109, 214419 (2024)

高勾配磁気分離における磁性ワイヤー上への粒子堆積過程

廣田憲之、伊藤永遠*、安藤 努*
(NIMS、*日大)

In-situ observation of Particles deposition process on magnetic wires during High Gradient Magnetic Separation

Noriyuki Hirota, Towa Ito*, Tsutomu Ando*
(NIMS, *Nihon Univ.)

高勾配磁気分離では、磁性ワイヤーで編まれたフィルターを用い、外部磁場を印加した際にその周囲に形成される高勾配磁場を利用して、流体中に分散した粒子をその磁性を利用して分離する手法である。粒子は作用する磁気力によりフィルターワイヤー上に引き寄せられて捕集されるため、フィルターの目開きを粒子サイズよりも格段に大きくとることができ、目詰まりしにくく、圧損の少ない高速な分離が実現するほか、磁場を取り去ると堆積した粒子がフィルター上から外れるので、フィルターの再利用が可能でコストの低減につながり、また、環境にも優しい。しかし、分離性能に大きく関わる粒子堆積過程の理解が十分でないため、必要以上に余裕を持った条件による分離が適用されることが多く、普及の妨げとなっている。そこで、本研究では、高勾配磁気分離における磁性フィルターワイヤー上への粒子堆積過程のその場観察を行なうことで、その理解を深め、条件の最適化に向けた知見を得ることを目的としている。

従来よりも観測の精度を上げるため、フィルターワイヤーの表面が観測しやすいよう、CCDカメラとフィルターワイヤー間の障害物や媒体の屈折率変化をもたらす部材をできるだけ排除した磁気分離装置を試作した。実験にはマグネステン製の線径 1.0 mm、3.5 メッシュのフィルターを用いた。平均粒径 5 μm のフェライト粒子を蒸留水中に分散させたものを流体試料とした。超伝導磁石中に設置した流路中にフィルターを設置し、気泡が入らないように流路を蒸留水で満たしたのち、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。図には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。フィルターに到達する以前の段階で、外部印加磁場により粒子が磁化され、粒子間の相互作用によってチェーン状の構造が形成されることがわかった。また、フィルターの下流方向にも粒子堆積が見られた。これは、メッシュが粗いことにより下流側への回り込みが起こったためであると考えられる。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フィルターワイヤー上への粒子堆積過程のその場観察の例

オペランド X 線磁気円二色性, メスバウアー分光による Fe₃Ga の磁歪効果の微視的理解

岡林潤、宇佐見喬政*、境誠司**、藤原孝将**、小林康浩***、三井隆也**、浜屋宏平*
東大理、*阪大基礎工、**量研機構、***京大複合研

Microscopic origin of magnetostriction in Fe₃Ga studied by
operando XMCD and Mössbauer spectroscopy

J. Okabayashi, T. Usami*, S. Sakai**, K. Fujiwara**, Y. Kobayashi***, T. Mitsui**, and K. Hamaya*
U. Tokyo, *Osaka U., **QST, ***Kyoto U.

はじめに 磁歪効果は、アクチュエーター、センサー、振動発電などの磁気応用の観点から精力的に探索されている現象である。100 ppm 以上の大きな磁歪変化がある場合は超磁歪効果と呼ばれる。希土類元素を用いた超磁歪物質は開発されているものの、3d 遷移金属を中心とした超磁歪物質としては Fe₃Ga (ガルフエノール) が知られているのみである [1]。しかし、磁歪効果の起源の理解については、現象論的な理解に留まっており、電子論に基づく研究はほとんどないのが現状である。Fe₃Ga の 300 ppm の大きな磁歪効果の起源を理解するためには、ひずみ印加時の電子・磁気状態および磁気異方性の変化を知るためのオペランド分光測定が必要となる。その結果は超磁歪を示す物質設計にもつながりうる。そこで本研究では、誘電体基板 Pb(Mg, Nb)O₃-PbTiO₃ (PMN-PT) 上の Fe₃Ga 薄膜について、誘電体へのピエゾ電圧の印加による可逆な格子ひずみを印加した状態における Fe₃Ga の X 線磁気円二色性 (XMCD) およびオペランド・メスバウアー分光を行い、Fe 原子の超微細構造の解析から超磁歪効果の起源を調べることを目的とする。

実験方法 厚さ 0.5 nm の単結晶 PMN-PT (011) 基板上に、分子線エピタキシー法により (211) 配向した Fe₃Ga を 10 nm 成長した。試料の表裏に電極を装着し、試料表面をグラウンド電位として、裏面に電圧を印加し、PMN-PT を介したキャパシタ構造とした [2]。オペランド XMCD を高エネ研 Photon Factory BL-7A (東大理所有) にて行った [3, 4]。転換電子検出法によるオペランド・メスバウアー分光 (CEMS) を SPring-8 BL11XU (QST) にて室温にて行った。±8 MV/m の電場を印加し、誘電体基板の 0.1 % 程度の可逆な格子変調を用いた。

結果と考察 ピエゾ電圧により Fe₃Ga の磁化曲線において飽和磁化、保磁力の変化があることを確かめた。オペランド XMCD では、スペクトルの変化から軌道磁気モーメント (m_{orb}) の変化を示唆する結果を得た。オペランド・メスバウアー分光からは、わずかなスペクトル変化を観測し、超微細構造のピーク変化は軌道角運動量の変化を表すものと考えられる結果を得た。これらから、磁歪効果による磁気異方性の変調にはひずみによる軌道角運動量の変化が重要であることが示唆される。つまり、 m_{orb} のひずみ ε による微分 $\partial m_{\text{orb}}/\partial \varepsilon$ が磁歪定数と相関があることが考えられる。これは、磁歪定数が 1 桁小さい Fe₃Si のオペランド XMCD およびメスバウアー分光において、軌道角運動量の変化が観測できず、電気四極子の変化として説明できる結果と対照的である [5]。Fe₃X のアニオン原子 X の違いによる磁歪や磁気異方性の変化を説明するには、ひずみによるスペクトルの変化を測定するオペランド分光の必要性を意味する。講演では、広域 X 線吸収微細構造 (EXAFS) による原子間距離の変化や、メスバウアースペクトルのフィッティングパラメータなども含めて詳細を議論したい。

参考文献

- [1] T. Ueno and S. Yamada: [IEEE Trans. Magn. 47, 2407 \(2011\)](#).
- [2] S. Fujii et al., [NPG Asia Mater. 14, 43 \(2022\)](#).
- [3] J. Okabayashi et al., [npj Quantum Materials 4, 21 \(2019\)](#).
- [4] J. Okabayashi et al., [NPG Asia Mater. 16, 3 \(2024\)](#).
- [5] J. Okabayashi et al., submitted.

Cu_xCo_{1-x}Fe₂O₄ の磁歪特性に及ぼす加熱急冷処理の効果

久松美佑¹、小杉静花¹、藤枝 俊^{2,3}、清野智史^{1,2}、中川 貴^{1,2}

(¹阪大工、²阪大 OTRI-SPIN、³島根大先端マテリアル研究開発協創機構)

Effect of quenching on magnetostrictive properties of Cu_xCo_{1-x}Fe₂O₄

M. Hisamatsu¹, S. Kosugi¹, S. Fujieda^{2,3}, S. Seino^{1,2}, T. Nakagawa^{1,2}

(¹Graduate School of Engineering, Osaka Univ., ²OTRI-SPIN, Osaka Univ., ³IAMR&D, Shimane Univ.)

はじめに

立方晶スピネル構造のコバルトフェライト (CoFe₂O₄) は、八面体サイトに配位する 2 価の Co の残留軌道角運動量に起因して、室温で比較的大きな負の磁歪を示す。CoFe₂O₄ の Cu を Co で部分置換した Cu_xCo_{1-x}Fe₂O₄ は、室温において $x \geq 0.8$ では正方晶であるが、 $x \leq 0.7$ では立方晶を示す¹⁾。最近、我々は立方晶の Cu_xCo_{1-x}Fe₂O₄ が、CoFe₂O₄ よりも優れた磁歪特性を示すことを見出した²⁾。最適組成近傍である Cu_{0.5}Co_{0.5}Fe₂O₄ の印加磁場 1 T における最大歪みは市販磁歪材料の Galfenol の値を凌駕し、新規磁歪材料としての応用が期待される²⁾。本研究では、Cu_xCo_{1-x}Fe₂O₄ のさらなる磁歪特性の向上を狙い、試料への加熱急冷処理を行った結果について報告する。

実験方法

CoO、Cu₂O および α-Fe₂O₃ を出発原料として用いた。それらの混合粉をペレット化し、950 °C の大気雰囲気下で 20 時間の熱処理を施し、固相反応法で Cu_xCo_{1-x}Fe₂O₄ 試料を作製した。この作製試料を、赤外線導入加熱装置を用いて所定の温度 (360 °C および 760 °C) まで加熱し 1 時間保持した後、赤外線の照射を止めることで室温まで急冷した。結晶構造を調べるため、加熱急冷処理前後の試料について X 線回折測定を行った。磁歪特性の評価は歪みゲージ法で行った。

実験結果

Cu_{0.5}Co_{0.5}Fe₂O₄ の X 線回折パターンを Fig. 1 に示す。加熱急冷処理を行っても立方晶の結晶構造は保持される。Fig. 2 に歪み $\Delta L/L$ の印加磁場依存性を示す。 $\Delta L/L$ は平行磁場印加 ($H_{//}$) により減少し、垂直磁場印加 (H_{\perp}) により増加する。したがって、全ての試料は負の磁歪を示す。760 °C 急冷処理試料の $\Delta L/L-H_{//}$ 曲線は、処理前と比較して、低印加磁場領域で高い磁場感受性を示すが、最大印加磁場における値は小さい。一方、360 °C 急冷処理試料はすべての印加磁場において処理前よりも大きな $|\Delta L/L|$ を示す。同様の傾向は、 $\Delta L/L-H_{\perp}$ 曲線においても観察される。したがって、比較的低温での加熱急冷処理により、立方晶 Cu_xCo_{1-x}Fe₂O₄ の磁歪特性向上が可能であることが明らかになった。

参考文献

- 1) M. Hisamatsu, S. Fujieda, S. Seino, T. Nakagawa, T. A. Yamamoto., *IEEE Trans. Magn.*, **57** (2021) 2100804.
- 2) S. Kosugi, M. Hisamatsu, Y. Ohishi, H. Muta, S. Seino, T. Nakagawa, S. Fujieda., *Mater. Trans.*, **64** (2023) 2014-2017.

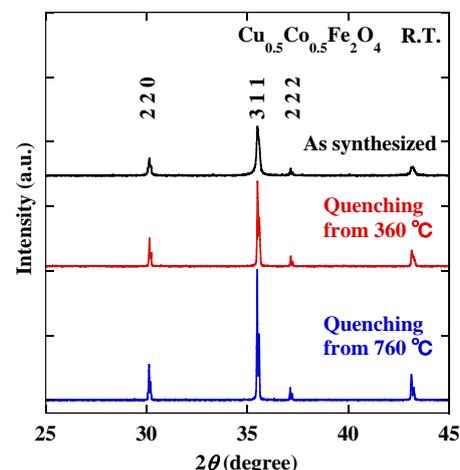


Fig.1 X-ray diffraction patterns of Cu_{0.5}Co_{0.5}Fe₂O₄ samples before and after heat treatments

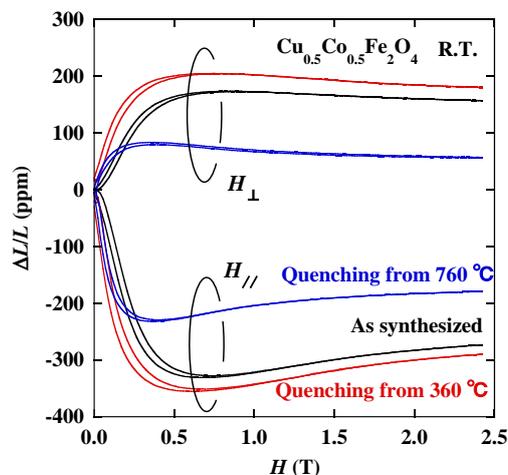


Fig.2 Magnetic field dependence of strain $\Delta L/L$ of Cu_{0.5}Co_{0.5}Fe₂O₄ samples before and after heat treatments

bcc および fcc 格子の Fe 単結晶膜の磁歪特性に及ぼす N 添加の効果

佐藤公泰・今村光佑・大竹 充
(横浜国大)

Effect of N Addition on the Magnetostrictive Properties of Fe Single-Crystal Films with bcc and fcc Lattices
Takayasu Sato, Kosuke Imamura, and Mitsuru Ohtake
(Yokohama Nat. Univ.)

はじめに 鉄 (Fe) に窒素 (N) が添加されると、N が僅かに固溶した bcc 格子の α 相や、fcc 格子中に 20 at. % 程度の N が規則的に侵入した γ' 相が形成される。 γ' 相は、近年の理論計算や実験から、磁歪が 100×10^{-6} 程度と大きいことが報告されており¹⁻³⁾、また、変形能 (延展性) も高いため⁴⁾、磁歪材料として利用できる可能性を持つ。一方で、Fe への N 添加による磁歪増大の要因については、理論的には明確にされていない。N による Fe の 3d 軌道への電子供給に伴う、電子状態の変化が磁歪を増大させている可能性も考えられるが、まずは実験的な理解を深めて行く必要がある。そこで、本研究では、Fe の bcc 格子の間隙に N を微量に固溶させた状態 (α 相) から、fcc 格子間隙に規則的に N を配列させた状態 (γ' 相) までの単結晶薄膜試料を作製し、磁歪に与える影響を調べた。

実験方法 製膜には超高真空 RF マグネトロン・スパッタリング装置を用いた。Ar と N₂ の混合ガス雰囲気 (N₂ 分圧比: 0 ~ 5%) の下で Fe ターゲットをスパッタすることにより、40 nm 厚の Fe-N 膜を 400 °C の MgO(001) 単結晶基板上に形成した。構造解析には RHEED, XRD, XPS, 磁気特性評価には VSM, 磁歪測定には片持ち梁法を用いた。

実験結果 はじめに、0.25 ~ 0.75% の低い N₂ 分圧比で膜形成を行った。Fig. 1(a) および (b) に RHEED および XRD パターンを示す。bcc (α) (001) 単結晶表面からの回折が認められ、bcc (α) Fe-N(001)[110] // MgO(001)[100] の方位関係でエピタキシャル成長していることが分かった。ここで、N は、Fig. 2(a) に示すような、6 つの Fe 原子によって八面体状に囲まれた格子間位置 (八面体中心) に侵入・固溶していることが考えられる。次に、4% の高い N₂ 分圧比で製膜を行った。Fig. 1(c) に回折パターンを示す。fcc (γ') 単結晶からの回折が観察されており、

fcc (γ') Fe-N(001)[100] // MgO(001)[100]

の方位関係で形成されていることが分かった。また、RHEED および XRD のいずれでも超格子反射が現れており、N は、Fig. 2(b) に示すように、bcc (α) の場合と類似の八面体中心に規則配置していると考えられる。ここで、N を基準にこれらの結晶を比較すると、c 軸寸法は異なるものの、① bcc (α) [100] と fcc (γ') [110]、② bcc (α) [110] と fcc (γ') [100] はそれぞれ平行かつ同等な関係であることが分かる。そして、この方位関係に基づき、bcc (α) と fcc (γ') の磁歪定数を纏めた結果を Fig. 3 に示す。N 量の増加に伴い、磁歪が増大する様子が見て取れる。当日は N 組成等の膜の詳細情報とともに報告を行う。

- 1) Y. Zhang *et al.*: *Comput. Mater. Sci.*, **92**, 464 (2014).
- 2) Y. Maeda, K. Imamura, M. Ohtake, S. Isogami, T. Kawai, M. Futamoto, F. Kirino, and N. Inaba: *J. Magn. Magn. Mater.*, **585**, 170942 (2023).
- 3) K. Ito, I. Kurniawan, Y. Shimada, Y. Miura, Y. Endo, and T. Seki: arXiv, 2403.16679 (2024).
- 4) M.F. Yan *et al.*: *Appl. Surf. Sci.*, **255**, 8902 (2009).

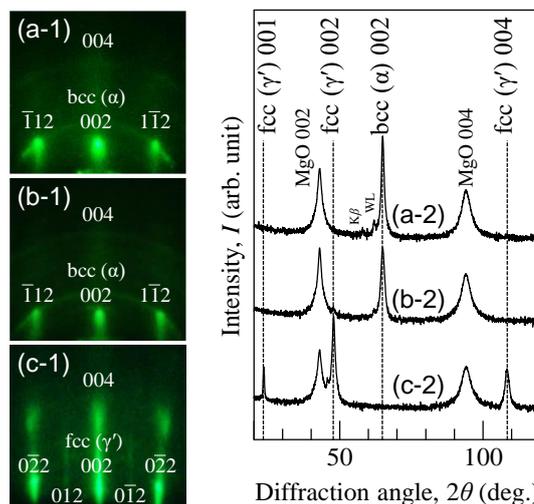


Fig. 1 (a-1)–(c-1) RHEED and (a-2)–(c-2) XRD patterns of Fe films formed with N₂ partial pressure ratios of (a) 0.25%, (b) 0.75%, and (c) 4%.

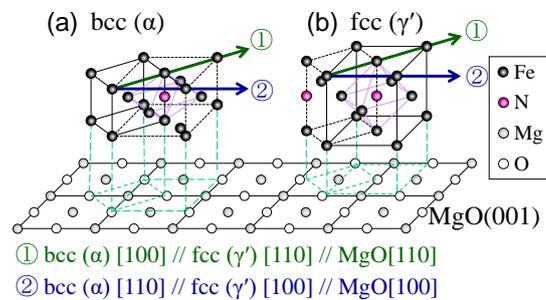


Fig. 2 Crystallographic orientation relationship between bcc (α), fcc (γ'), and MgO.

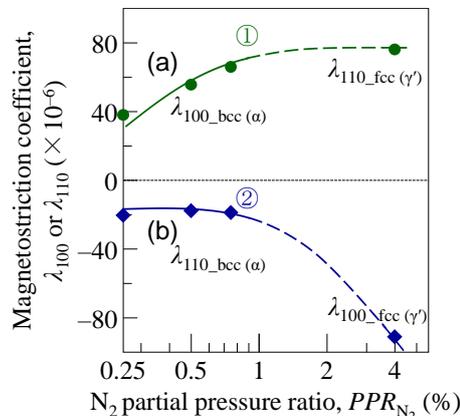


Fig. 3 (a) λ_{100} of bcc (α) and λ_{110} of fcc (γ'). (b) λ_{110} of bcc (α) and λ_{100} of fcc (γ').