

$L1_0$ 型構造を持つ FePt 合金薄膜の c 面配向精密制御

大竹充・板橋明・二本正昭・桐野文良*・稲葉信幸**

(中央大, *東京藝大, **山形大)

Accurate Control of c -Plane Orientation of FePt Alloy Thin Film with $L1_0$ Structure Parallel to the Surface

Mitsuru Ohtake, Akira Itabashi, Masaaki Futamoto, Fumiyoshi Kirino, and Nobuyuki Inaba

(Chuo Univ., *Tokyo Univ. Arts, **Yamagata Univ.)

はじめに $L1_0$ 型構造を持つ FePt 規則合金は 6.6×10^7 erg/cm³ の高い K_u を示す。そのため、この合金薄膜は高密度磁気記録媒体や MRAM などへの応用に向けて盛んに研究されている。デバイス応用のためには、磁化容易軸である $[001]$ 方位 (c 軸) を面直方向に制御する必要がある。しかしながら、 (001) 配向の多結晶下地層、もしくは、単結晶基板上に膜形成を行うと、 c 軸が面直に向いた $L1_0(001)$ 結晶に加え、 c 軸が面内に存在する $L1_0(100)$ 結晶が膜中に混在する可能性がある^{1,2)}。これまで、我々は、高基板温度製膜³⁾、もしくは、低温製膜後に熱処理⁴⁾を施すことにより、MgO(001)基板上に $L1_0$ 構造を持つ 40 nm 厚の FePt 膜を形成してきた。いずれの方法で形成した膜においても、 $L1_0(100)$ 結晶が混在した。 c 軸方位制御には、面直方向の格子圧縮、もしくは、面内方向の膨張が有効であると考えられる。本研究では、MgO(001)基板上に低基板温度 (200 °C) でエピタキシャル成長させた 2~40 nm 厚の不規則構造の単結晶 FePt 膜上に、2 nm 厚の MgO キャップ層を形成した。その後、600 °C の熱処理を施すことにより $L1_0$ 構造への規則化を促進させた。FePt 膜に対して約 10% の格子ミスマッチを持つ基板およびキャップ層で挟み込んだ状態で規則化させることにより、面内方向の引っ張り応力を促進させ、 c 軸方向の精密制御を試みた。

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。構造評価には RHEED および XRD ($2\theta/\omega$ スキャン面外および $2\theta/\phi$ スキャン面内測定)を用いた。表面形態観察には AFM、磁化曲線測定には VSM を用いた。なお、 $L1_0$ (規則) と $A1$ (不規則) 構造の基本結晶軸の方位は異なるが、本研究では、 $A1$ 構造の表記法を用いて、 $L1_0$ 構造を示している。

実験結果 $L1_0$ 構造の (001) および (100) 面の構造因子は、それぞれ、 $S(f_{Pt}-f_{Fe})$ および 0 で表せる (S : 規則度, f : 原子散乱因子)。そのため、面外 XRD パターンにおいて、 (001) 超格子反射が観察されている場合、 $L1_0(001)$ 結晶が形成されていることを示し、面内パターンにおいても超格子反射が確認される場合、 $L1_0(100)$ 結晶も混在していることを意味する。熱処理後のキャップ層無しおよび有りの 10 nm 厚の FePt 膜の XRD パターンを、それぞれ、Fig. 1(a) および (b) に示す。キャップ層無しの膜に対しては、面外パターンだけでなく、面内パターンにおいても、強度は弱い (001) 超格子反射が観察されており、膜中に $L1_0(100)$ 結晶が混在していることが分かる。一方、キャップ層有りの膜に対しては、面外パターンにおいてのみ、超格子反射が確認でき、 $L1_0(001)$ 結晶のみから構成されていることが分かる。また、キャップ層無しおよび有りの膜の格子定数比および規則度 ($c/a, S$) は、それぞれ、(0.9781, 0.58) および (0.9599, 0.82) であった。キャップ層を設けることにより、格子変形が促進され、規則度も向上した。これらの膜の磁気特性を Fig. 2 に示す。いずれの膜も、垂直磁気異方性を示しているが、キャップ層有りの膜の面内磁化曲線の保磁力は、非常に小さいことが分かる。これは、 $L1_0(001)$ 結晶からのみ構成され、更により高い規則度を持つ FePt 膜の磁気特性を反映した結果であると考えられる。当日は、FePt 膜厚を変化させた場合の格子歪、 c 軸方位、規則度、および、磁気特性の関係について、詳細に議論する。

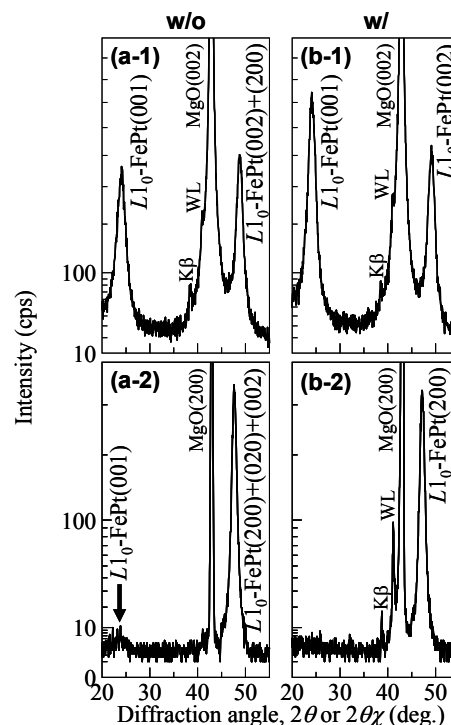


Fig. 1 (a-1, b-1) Out-of-plane and (a-2, b-2) in-plane XRD patterns of 10-nm-thick FePt films (a) without and (b) with cap layers after annealing at 600 °C. The scattering vector of in-plane XRD is parallel to MgO[200].

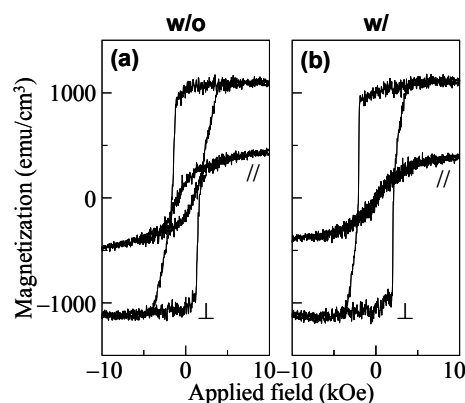


Fig. 2 Magnetization curves measured for 10-nm-thick FePt films (a) without and (b) with cap layers after annealing at 600 °C.

- 参考文献**
- 1) S. Jeong, T. Ohkubo, A. G. Roy, D. E. Laughlin, and M. E. McHenry: *J. Appl. Phys.*, **91**, 6863 (2002).
 - 2) Y. K. Takahashi, K. Hono, T. Shima, and K. Takanashi: *J. Magn. Magn. Mater.*, **267**, 248 (2003).
 - 3) M. Ohtake, S. Ouchi, F. Kirino, and M. Futamoto: *J. Appl. Phys.*, **111**, 07A708 (2012).
 - 4) A. Itabashi, M. Ohtake, S. Ouchi, F. Kirino, and M. Futamoto: *EPJ Web Conf.*, **40**, 07001 (2013).

Large grain size of Cr seed layer deposited on CrTi amorphous layer for future high K_u FePt-C granular medium

°Seong-Jae Jeon^{a)}, Shintaro Hinata^{a,b)}, Shin Saito^{a)}, and Migaku Takahashi^{a)}

^{a)}Tohoku University, ^{b)}JSPS Research Fellow (PD)

Introduction Hard disk drive industry has been evolved through the increase of the areal density before the emergence of the trilemma. Thermally assisted magnetic recording has been introduced as one of the prospective technologies for future recording media by using the $L1_0$ ordered FePt with high magnetocrystalline anisotropy (K_u) of 7×10^7 erg/cc¹⁾. In order to use the $L1_0$ ordered FePt as the recording media, it is necessary to fabricate the granular type such as FePt-C medium whose magnetic grains are completely separated each other by the C boundaries. However, it is reported that the reduction of the signal to noise ratio (SNR) arise from the magnetic anisotropy field variation, which is caused by the angular distribution of the (002) sheet texture in the FePt medium²⁾. Generally, the sheet texture of the crystalline film is known to be attributed to the epitaxial growth on crystalline underlayers. In this report, we proposed a new concept of the layered structure for reducing the angular distribution of sheet texture in FePt-C medium.

Concept of the layered structure The concept is to realize a highly oriented sheet texture in seed layer by promoting Frank-van der Merwe growth mode (layer by layer growth)³⁾. According to the initial state of the sputtering process when the sputtered atoms adhere to the surface of the crystalline film in liquid state, growth mechanism is determined by the wettability of the atoms. If the wettability is large enough, the atoms maximize the contact surface on the film that tremendously induces the epitaxial growth. Consequently, formation of the layer by layer fashion on the crystalline film namely, large grain, leads to the highly oriented sheet texture. Figure 1 shows a schematic of the new concept of the layered structure. The structure is consists of the magnetic layer (ML)/barrier layer (BL)/seed layer (SL)/texture inducing layer (TIL). Main function of each layer is as follows: TIL as determining the grain size, SL as contributing the highly oriented (002) sheet texture, BF as preventing the atomic diffusion between ML and SL by using MgO, and ML as FePt-C magnetic recording medium with the highly (002) sheet texture. The main issue in here, is to find out suitable materials for TIL and SL. M. Mikami reported that the grain size of the recording medium is controlled by Ni-based amorphous layers under the oxygen process⁴⁾, suggesting that the grain size of seed layer would be changed depending on the amorphous material. Since the Cr alloy material has small lattice misfit, the material can be used as seed layer. Accordingly, both amorphous and Cr-alloy can be applied as TIL and SL. To obtain (002) texture of SL, it is necessary to change its surface energy. In addition Cr alloy material is widely used in FePt medium because of the small lattice misfit with the MgO. To obtain (002) texture of SL, it is necessary to change its surface energy. Here, we tried to investigate the various samples. We applied substrate heating process to fabricate the large grain seed layer by using above TIL and SL materials.

Experimental results In order to fabricate the large grain seed layer, one example structure, Cr (SL) and CrTi (TIL). Stacking structure is following Cr(10) / CrTi(50) / Sub. Figure 2 shows the grain diameter (GD) and integrated intensity of sheet texture for Cr seed layers (I_{002}) as a function of the substrate temperature (T_{sub}) represented as red circle and black square. Here, GD was evaluated from Scherrer equation with (110) diffraction appeared in-plane XRD. As shown in the graph GD increases from 8 to 12 nm as increasing T_{sub} from 200 to 475 °C, and then decreases 12 to 11.5 nm as further increasing T_{sub} . Similar tendency was observed in I_{002} graph. Increase of I_{002} from 10 to 80 cps as increasing T_{sub} from 200 to 520 °C, and then decreases 80 to 25 cps as further increasing T_{sub} . These results suggested that the I_{002} is affected by the grain size of seed layer. In summary, we demonstrated increase of the grain size of Cr seed layer deposited on CrTi amorphous layer under the heat treatment.

Reference 1) Mark. H. Kryder *et al.*, *Proceedings of the IEEE* **96**, 1810, (2008). 2) Hai Li *et al.*, *J. Appl. Phys.* **115**, 17B744 (2014). 3) Seifert W *et al.*, *Prog. Cryst. Growth Charact.* **33** 423 (1996). 4) M. Mikami *et al.*, *IEEE Trans. Magn.* **39**, 2258 (2003).

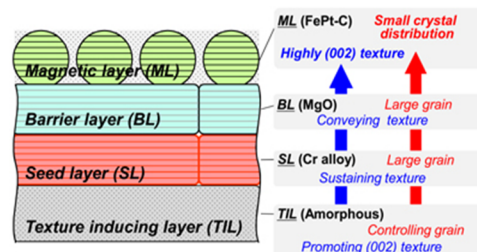


Fig. 1 Concept of the layered structure for reducing the (002) texture distribution of FePt-C medium.

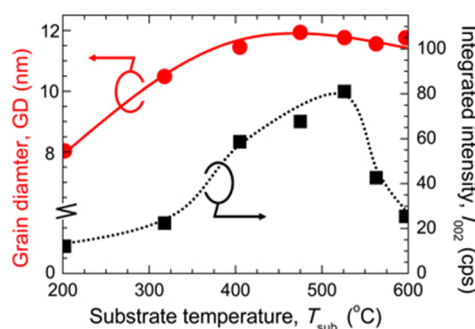


Fig. 2 Grain diameter (GD) and integrated intensity of sheet texture for Cr seed layers (I_{002}) with respect to the substrate temperature (T_{sub}).

多結晶 MgO 下地層による FePt-C の微細構造制御

城山泰祐、Varaprasad, B. S. D. Ch. S.、高橋有紀子、宝野和博
(物質・材料研究機構)

Microstructure control of FePt-C by poly crystalline MgO underlayer
T. Shiroyama, B. Varaprasad, Y.K. Takahashi and K. Hono
(National Institute for Materials Science)

はじめに

次世代超高密度磁気記録方式として提案されている熱アシスト方式用記録媒体として、MgO 下地上に $L1_0$ 規則構造をもつ FePt-X ナノグラニューラー膜の研究が盛んに行われている。以前、我々はガラス基板に成膜した多結晶 MgO 下地上に成膜した FePt-C 層が、粒子サイズとサイズ分布が小さく、磁気特性に優れた良好なグラニューラー膜を形成することを報告した^{1,2)}。FePt-C 膜の粒子サイズは、成膜後のアニール温度¹⁾や C の体積分率²⁾によって制御可能であるが、この系では膜厚が 6nm を超えると膜成長方向にも分離してしまい³⁾、柱状成長が難しいという欠点がある。我々は、FePt-C 層厚 10nm 以上で、10nm 以下の FePt 粒子径とアスペクト比 1.5 以上の柱状成長の両立を目指し、成膜条件の検討を行ってきた。今回、MgO 下地の成膜条件が FePt-C の柱状成長に寄与することを新たに見出したので、その検討内容について報告する。

実験方法

製膜は超高真空マグネトロンスパッタ装置を用いて行った。まず、ガラス基板上に NiTa(100nm)を製膜し、続いて、MgO(10nm)を 5~39mTorr Ar ガス雰囲気化、室温にて製膜した。さらに、それらの MgO 下地上に FePt-C 膜を、3.6mTorr Ar ガス雰囲気下、基板温度 600°C、Fe、Pt、C の 3 元同時スパッタによって製膜した。試料の構造は、X 線回折にて、平面及び断面構造形態は透過型高分解能電子顕微鏡により評価した。また、磁気特性は超伝導量子干渉振動試料型磁力計にて行った。

実験結果

図 1 に MgO(Ar 5mTorr)/FePt-C(12nm) (a)と MgO(Ar 39mTorr)/FePt-C(12nm) (b)の微細構造を示す。FePt-C 層厚が 5nm 以下の場合には、MgO 成膜時の Ar ガス圧による微細構造に差は見られなかったが、FePt-C 層厚が 12nm と厚くなると、MgO を 39mTorr と高圧下で成膜した場合に、柱状成長し易いことが分かった。多結晶 MgO 膜の粒子サイズを調査したところ、Ar 5mTorr では約 13nm、Ar 39mTorr では約 10nm と大幅に小さくなっていることが判明した。Ar 39mTorr 雰囲気化で成膜した MgO 上では、MgO の粒界がより多く存在することで、FePt 粒子の面内方向への成長や粒子の合体をより抑制しているものと考えている。

講演では、FePt のさらなる小粒径化検討や、垂直方向への FePt 粒子の配向性についても議論する。

参考文献

- 1) A. Perumal, L. Zhang, Y.K. Takahashi and K. Hono, J. Appl. Phys. **108**, 083907 (2010).
- 2) A. Perumal, Y.K. Takahashi and K. Hono, J. Appl. Phys. **105**, 07B732 (2009).
- 3) Varaprasad, B. S. D. Ch. S., Chen, M., Y.K. Takahashi and K. Hono, IEEE. Trans. Magn. **49**, 718 (2012).

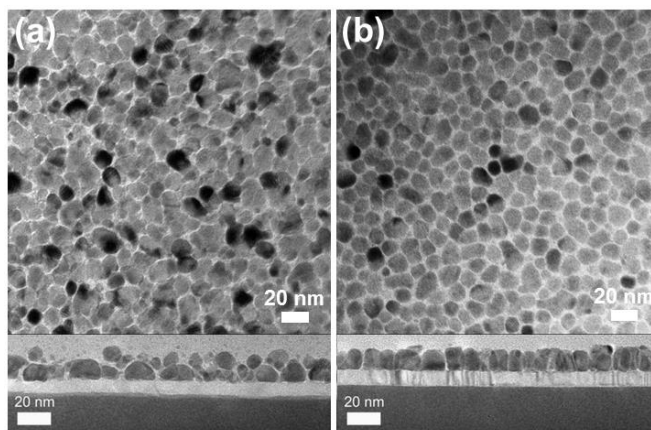


Fig.1 The in-plane and cross sectional TEM bright field image of FePt-C(12nm) on MgO deposited at Ar 5mTorr(a) and 39mTorr(b)

Effect of MgO seed layer misorientation on the texture and magnetic property of FePt-C granular film

J. Wang¹, S. Hata², B. S. D. Ch. S. Varaprasad¹, Y. K. Takahashi¹, T. Shiroyama¹ and K. Hono¹

¹ National Institute for Materials Science, 1-2-1, Sengen, Tsukuba 305-0047, Japan

² Department of Electrical and Material Science, Kyushu University, Kasuga 816-8580, Japan

FePt-C based granular films with L1₀-ordered FePt nanoparticles have been considered as the most promising candidate for heat-assisted magnetic recording (HAMR) media for the recording density exceeding 1 Tbit/in². For the practical application of L1₀-FePt films as HAMR media, the thin-film structure has to be optimized with excellent alignment of the c-axis normal to the film plane and small grain size of less than 6 nm with less than 10% size distribution. In our previous work ¹⁾, we demonstrated well-isolated uniform microstructure with high $\mu_0 H_c$ in FePt-C granular film on polycrystalline MgO underlayer. However, there are some remaining issues for the practical application, i.e. large switching field distribution and large in-plane hysteresis in the magnetization curve which could be an origin of poor SNR²⁾. In this work, we investigated the origin of the large in-plane component in the magnetization curve by comparing the FePt-C granular films deposited on a MgO single-crystalline substrate and a poly-crystalline seed layer.

10 nm thick FePt-28vol.% C were deposited by co-sputtering Fe, Pt and C at 600°C under 0.48Pa Ar on MgO (100) substrate (Sample A) and glass/ NiTa(100nm)/ MgO(10nm) stacking (Sample B), respectively. MgO seed layer was RF sputter deposited on the amorphous NiTa layer under an Ar pressure of 5.2 Pa at room temperature (RT) using a MgO target. The orientation and phase mapping experiments were conducted on a FEI Tecnai F20 TEM with a field emission gun and an accelerating voltage of 200 kV using the ASTARTM (NanoMEGAS, Brussels, Belgium) system.

Figure 1 shows the in-plane and out-of-plane magnetization curves of Sample A and Sample B. $\mu_0 H_c$ of Sample A and Sample B are 4.3 and 3.7 T, respectively. Although both of the films show strong perpendicular anisotropy, compared with Sample A, Sample B presents a loop with smaller coercivity, broaden of switching field distribution and in-plane minor loop. By comparison of the orientation maps in Fig.2, one can see that the MgO seed layer introduces significant misorientation of the (001) texture along the normal direction and it should mainly responsible to the decay of magnetic properties in Sample B. With further ASTAR analysis, we found that about 23% of FePt grains in Sample B have 45° or even 90° misorientation from the [001] direction. They are mainly originate from misorientated MgO seed layer grains, MgO surface roughness and MgO grain boundaries which were confirmed by cross-sectional HRTEM observation.

Reference

- 1) A. Perumal, Y. K. Takahashi, and K. Hono, Appl. Phys. Express 1, (2008) 101301.
- 2) L. Zhang Y.K. Takahashi, A. Perumal, and K. Hono, J. Mag. Mag. Mater, 322 (2010) 2658.

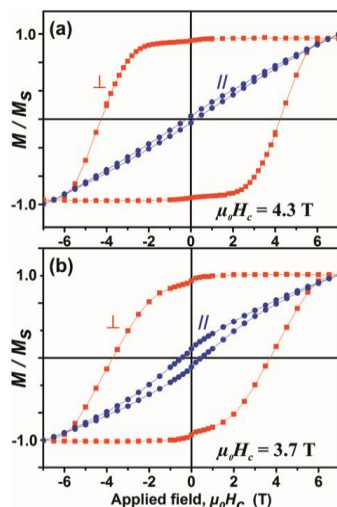


Fig.1 In-plane and out-of-plane magnetization curves of (a) Sample A and (b) Sample B.

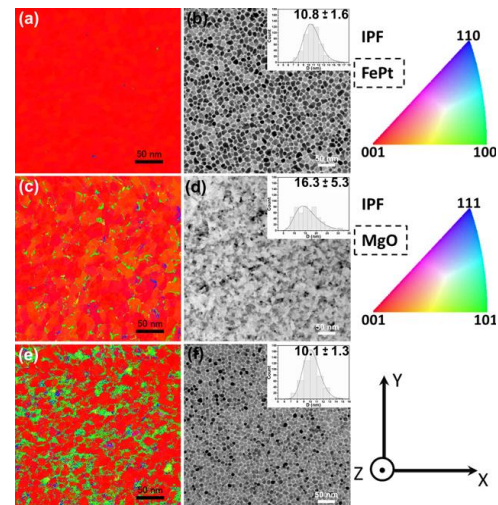


Fig.2 In plane orientation mapping (a, c and e) and virtual bright field TEM images (b, d and f) of Sample A (a & b); polycrystalline MgO (c & d) and Sample B (e & f).

Mechanism of coercivity enhancement by Ag addition in FePt-C granular media for heat assisted magnetic recording

B. Varaprasad¹, Y.K. Takahashi¹, J. Wang¹, T. Ina², T. Nakamura², W. Ueno²,
K. Nitta², T. Uruga², and K. Hono¹

¹National Institute for Materials Science, 1-2-1 Sengen, Tsukuba 305-0047, JAPAN

²Japan Synchrotron Radiation Research Institute (JASRI/SPRING-8), 1-1-1 Kouto, Sayo, Hyogo 679-5198, Japan

FePt granular thin films are considered to be one of the suitable candidates for ultrahigh density perpendicular recording media beyond 1 Tbits/in² because of the high magnetocrystalline anisotropy of the L1₀-FePt phase ($\sim 7 \times 10^7$ erg/cc). We previously reported highly L1₀-ordered FePtAg-C nanogranular film as a potential high-density storage medium for heat assisted magnetic recording (HAMR) [1,2]. Although the addition of Ag is known to increase the H_c, the mechanism of H_c enhancement is not clarified yet. In this paper we investigated the Ag distribution in FePtAg-C granular films by aberration-corrected scanning transmission electron microscope-energy dispersive X-ray spectroscopy (STEM-EDS) and X-ray absorption fine structure (XAFS).

(FePt)_{0.9}Ag_{0.1}-28vol%C (FePtAg-C) and FePt-28vol%C (FePt-C) granular films were deposited by co-sputtering Fe, Pt, Ag and C targets on a pre-deposited glass/a-NiTa/MgO substrates at 600°C. In this work, we employed a new alternating layer deposition technique to control the grain growth in the perpendicular direction suppressing the growth of the randomly oriented spherical particles on the [001] textured FePt granular layer. The film stack was glass/a-NiTa(60nm)/MgO(15nm)/[(FePt)_{0.9}Ag_{0.1}-48vol%C or FePt- 48vol%C(0.25)/FePt(0.15)]₂₅ deposited on a heat resistant glass substrate [3]. Figure 1 shows the in-plane and out-of-plane magnetization curves of (a) FePt-C and (b) FePtAg-C films. Both of the films show strong perpendicular anisotropy due to the strong c-axis texture. Coercivity H_c of FePt-C and FePtAg-C films are 3.0 and 3.9 T, respectively. TEM bright-field images (not shown here) indicated that FePt-C and FePtAg-C show well-isolated uniform microstructure with average particle sizes are 10.5 nm and 10.0 nm, respectively. The higher H_c in the FePtAg-C film in spite of the similar microstructure is attributed to the higher degree of L1₀ ordering. Figure 2 shows STEM-EDS elemental maps of (a) Fe, (b) Pt, (c) Ag and (d) a combined map of Fe and Ag in the FePtAg-C film. The elemental mapping shows that FePt particles are enveloped by Ag-rich shells. EXAFS results showed that Ag shells have fcc-like structure. From these details analysis, we can conclude that Ag is rejected from the core of FePt grains during the deposition, forming Ag-enriched shell surrounding L1₀-ordered FePt grains. Since Ag has no solubility in both Fe and Pt, the rejection of Ag induces atomic diffusions thereby enhancing the kinetics of the L1₀-order in the FePt grains [3].

Reference

- [1] L. Zhang, Y.K. Takahashi, K. Hono, B.C. Stipe, J.-Y. Juang, M. Grobis, *JA P.* 109, 07B703 (2011)
- [2] L. Zhang, Y. K. Takahashi, K. Hono, B. C. Stipe, J. Y. Juang, M. Grobis, *IEEE Trans. Magn.* 47, 4062 (2011).
- [3] B. Varaprasad, Y.K. Takahashi, J. Wang, T. Ina, T. Nakamura, W. Ueno, K. Nitta, T. Uruga, K. Hono, *APL* 104, 222403 (2014)

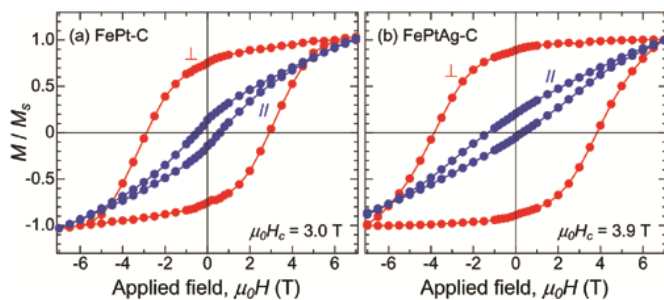


Figure 1. In-plane and out-of-plane magnetization curves of (a) FePt-C and (b) FePtAg-C granular films.

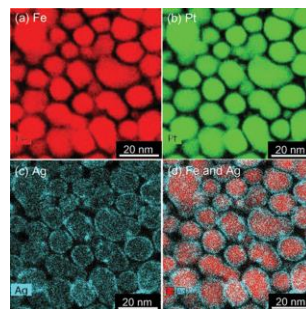


Figure 2. EDS mappings of (a) Fe, (b) Pt, (c) Ag and (d) Fe and Ag of FePtAg-C granular film.

ナノシリカ粒子をマスクとしたドライエッチング手法による 垂直磁化 FePt ナノドット形成の検討

飯田勝敬¹、月岡純¹、塚本新²、伊藤彰義²

(¹日本大学大学院理工学研究科、²日本大学理工学部)

Fabrication of perpendicular magnetized FePt nano-dot by dry etching with nano-silica particle mask.

K. Iida¹, J. Tsukioka¹, A. Tsukamoto², and A. Itoh²

(¹Graduate School of Nihon Univ, ²College of Science and Technology, Nihon Univ.)

はじめに 我々は超高密度記録媒体用孤立ナノ磁性体形成を目的としており、均質な連続膜状磁性体をエッチング加工することによる形成手法につき検討している。これまで、平均粒径 18 nm のシリカ粒子を用いて熱酸化 Si 基板上へ単層の自己集積化ナノシリカ粒子層 (Self-Assembled Silica nano Particles layer : SASP) を形成、エッチングマスクとして用いることで SASP のナノ凹凸構造を転写した基板形成が可能であることを報告している¹⁾。本報告では本手法を FePt 連続膜に応用することで孤立したナノ磁性ドット形成について検討。また、エッチング加工後の FePt 連続膜の磁気特性評価を行った。

実験方法 エッチング対象である FePt 連続膜は DC マグネトロンスパッタ法を用い FePt 多層膜を製膜後、赤外線ランプ真空炉により熱処理することで総膜厚 15 nm の (001) 優先配向した L1₀-FePt 連続膜を作製した。多層膜構成として [Fe_{30.5}Pt_{69.5} (1.9 nm) / Fe (0.6 nm)]₆ / Sub²⁾、熱処理条件は平均昇温速度 100 °C / h、到達温度 400 °C である。連続膜上に平均粒径 7 nm のシリカ粒子を用いディップコート後に膜面垂直入射の Ar⁺ドライエッチングを行うことで、シリカ粒子をエッチングマスクとし孤立した FePt ナノドットの形成を図る。

実験結果 FePt 連続膜の表面形状を原子間力顕微鏡 (AFM) にて評価した結果を Fig.1 に示す。中心線平均粗さ R_a が 0.28 nm の平坦性を有する。完全に孤立し AFM による評価が行えるよう、FePt 連続膜上でシリカ粒子が希薄となる条件にて形成した試料及びエッチング加工を施した結果を走査型電子顕微鏡 (SEM) により観察した (Fig.2)。本試料は表面に占めるシリカ粒子の割合が約 4.8 % とわずかであるため、エッチング加工した際の磁化特性測定結果はほぼ FePt 連続膜のみがエッチングされた場合に近いと考えられる。Fig.3 は t_e (エッチング時間) がそれぞれ 0 s、10 s の試料を室温 (300 K) にて超高感度磁化計測 (SQUID-VSM) によるヒステリシスループである。 $t_e = 0$ s では飽和磁化値が 12.6×10^{-5} emu となった。一方で $t_e = 10$ s では 6.2×10^{-5} emu であり、 $t_e = 0$ s に比べおよそ半分になっている。このことから FePt 連続膜が総膜厚の半分である 7.5 nm となるまでエッチングが進行したと考えられる。あわせて、磁気体積を半分にまで減少しても保磁力 H_c は約 1 T から 0.8 T と同程度であることから本 FePt 連続膜がエッチング手法によるナノドット形成に利用可能な均質な特性を持つことを示した。また、Fig.2(a) $t_e = 0$ s で見られていたシリカ粒子に相当するチャージアップを伴う明部が Fig.2(b) $t_e = 10$ s では見られず、エッチングの進行によりシリカ粒子が消失したものと考えられる。そこで、マスク部の残留高さを評価するため $t_e = 10$ s の試料を AFM にて観察した (Fig.4)。SEM では観察されなかったナノ凹凸が観察でき、それらの平均高低差は約 3.65 nm であった。以上より平均粒径 7 nm のシリカ粒子が局所的エッチングマスクとして機能し、ドライエッチング手法による FePt ナノドット形成の可能性を示した。

謝辞 本研究の一部は情報ストレージ研究推進機構及び文部科学省私立大学戦略的研究基盤形成支援事業 (S1311020) の助成により行ったものである。

参考文献

- 1) A. Itoh, J. Yeh, and A. Tsukamoto, 55th Annual Conference on Magnetism & Magnetic Materials, CF - 13 pp. 188 - 189 (2010).
- 2) X J Mo, H Xiang, W Lu, Y P Zheng, G Q Li, H Saito, S Ishio, D M Jiang, X W Tan and Y Q Lin, *Journal of Physics: Conference Series*, 266, 012040 (2011).



Fig.1 AFM cross section profile of FePt continuous film.

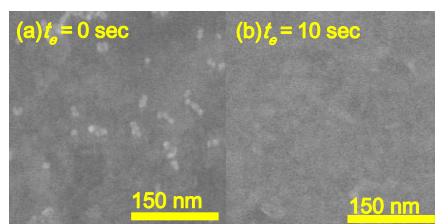


Fig.2 SEM images of silica particle on FePt continuous film. (a) $t_e = 0$ sec, (b) $t_e = 10$ sec

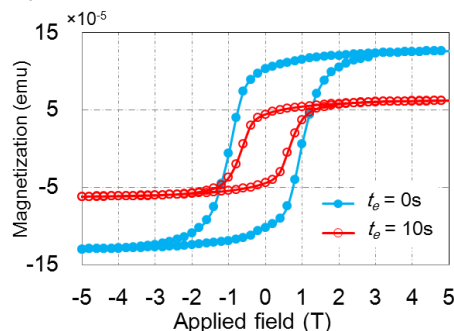


Fig.3 Out-plane hysteresis loops of FePt continuous film.



Fig.4 AFM cross section profile of silica particle on FePt continuous film ($t_e = 10$ s).

追加熱処理による $L1_0$ -FeCuPt 孤立微粒子の磁気特性向上の評価月岡純¹, 塚本新², 伊藤彰義²(1 日本大学大学院理工学研究科,² 日本大学理工学部)Improvement of Magnetic Properties of $L1_0$ -FeCuPt Isolated Grain by Additional AnnealingJun Tsukioka¹, Arata Tsukamoto², Akiyoshi Itoh²(1Graduate School of Nihon Univ.,²College of Science and Technology, Nihon Univ.)

1.はじめに 超高密度磁気記録媒体作製を研究目的とし、Fe/Cu/Pt 多層薄膜を急速昇温熱処理(Rapid Thermal Annealing: RTA)する事で、孤立微粒子化、 $L1_0$ 規則合金化、(001)優先配向化が可能である事¹⁾、また RTA に加え、粒子同士の結合を抑制する急速冷却処理(Rapid cooling process: RCP. 以下、急速昇降温熱処理)による $L1_0$ -FeCuPt 孤立粒子の作製と追加熱処理による孤立微粒子単結晶化について報告している²⁾。本報告では上記一連のプロセスに対し磁気特性評価を行い、特に追加熱処理過程での粒子内構造単結晶化による磁気特性の向上について検討を行った。

2.実験方法 DC マグネトロンスパッタ法により熱酸化 Si 基板上に Fe/Cu/Pt の順に成膜した (積層膜厚 3.75 nm、組成比 $\text{Fe}_{43}\text{Cu}_{14}\text{Pt}_{43}$)。成膜条件は到達真空度 $<4.0\times10^{-5}$ Pa、成膜中 $\text{ArH}(\text{H}:3 \text{ vol}\%)$ 圧 1.8×10^{-1} Pa である。成膜後、赤外線ランプ真空炉にて到達真空度 $<8.0\times10^{-4}$ Pa のもと急速昇降温熱処理を行った。昇温速度は赤外線ランプ電力で制御し $150^\circ\text{C}/\text{sec}$ とした。予め定めた最高温度に達した後、 N_2 ガスをチャンバーへ導入し初期冷却速度 $\approx -90^\circ\text{C}/\text{sec}$ の急速冷却を行い、次に単結晶化の為、真空中にて 600°C 、1 hour の追加熱処理を行った。

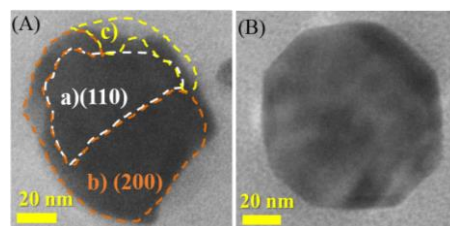


Fig.1 TEM image of single isolated grain. (A): RTA and RCP (pretreatment), (B): After additional annealing at 600°C for 1 hour²⁾.

3.結果 急速昇降温熱処理により作製した孤立微粒子ならびに追加熱処理を施した孤立微粒子における TEM 像を Fig.1 に示す。ここで追加熱処理前後の詳細な結晶構造評価より単結晶化が確認されている²⁾。Fig.1(A)に示す追加熱処理前の孤立微粒子においては、a)領域の(001)優先配向 $L1_0$ 相とともに、A1 相、そして構造が明らかでない周辺金属領域が、追加熱処理により(001)優先配向した $L1_0$ 単結晶と(B)になった。

追加熱処理前後の各試料の磁化特性を Fig.2 に示す。膜面垂直方向に磁場を印加した場合、追加熱処理前においては、0 磁場近傍に観察される軟質磁性成分と ± 2 T 以上で飽和する硬質磁性成分が存在し、保持力 H_c 、残留磁化 M_s 、飽和磁化 M_s 、について、それぞれ $H_c=1.1$ T, $M_r=275$ emu/cc, $M_s=465$ emu/cc である。一方追加熱処理後では軟質磁性成分が消失し、 $H_c=2.6$ T, $M_r=903$ emu/cc, $M_s=915$ emu/cc となり、追加熱処理前と比較し H_c 、 M_s ともに増加した。さらに膜面内方向に磁場を印加した場合の磁化特性では、 ± 2 T 以下においてわずかに磁化ヒステリシスが見られるが ± 7 T でも飽和せず高い垂直磁気異方性の存在を示した。以上の結果より追加熱処理を施す事により高い垂直磁気異方性を有する $L1_0$ -FeCuPt 孤立微粒子が形成できた事を確認した。さらに、同様の RTA、RCP プロセスにより作製した $\text{Fe}_{56.2}\text{Pt}_{43.8}$ 孤立微粒子の磁気特性との比較から、Cu 添加効果による H_c 、 M の減少も見られた。

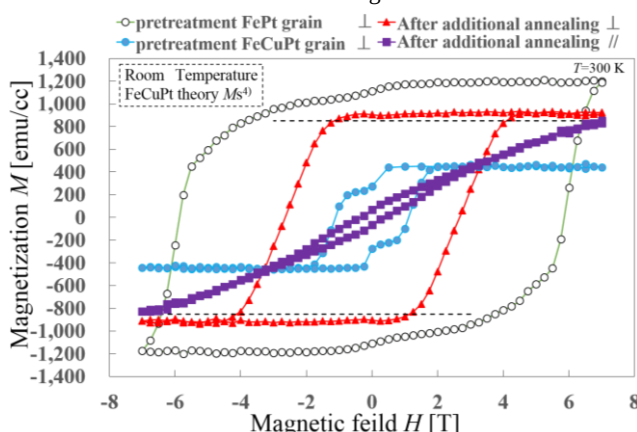


Fig.2 Magnetization curves of FePt / FeCuPt grains, Additional annealing condition is 600°C for 1 hour.

追加熱処理による磁気特性向上の要因として、結晶構造評価より確認されている微粒子周辺部に存在した A1 構造に相当する領域や異相に相当する結晶構造が、追加熱処理により (001)優先配向 $L1_0$ 結晶部を結晶成長核とし単結晶化した為に磁気特性が向上したと考える。

4.謝辞 本研究の一部は、情報ストレージ研究推進機構及び文部科学省私立大学戦略的研究基盤形成支援事業 (S1311020) の助成により行った。

5.参考文献

- 1) Y. Itoh, T. Aoyagi, A. Tsukamoto, K. Nakagawa, A. Itoh and T. Katayama: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 43, 12, 8040(2004).
- 2) J. Tsukioka, T. Ubana, A. Tsukamoto, and A. Itoh: *J. Magn. Soc. Jpn.*, 38, 143-146(2014).
- 3) T. Maeda, T. Kai, A. Kikitsu, T. Nagase and J. Akiyama: *Appl. Phys. Lett.*, 80, 12, 2147(2002).
- 4) Dusti A. Gilbert, Liang-Wang, Timothy J. Klemmer, Jan-Ulrich Thiele: *Appl. Phys. Lett.*, 102,132406 (2013).

急速昇降温熱処理形成 FeCuPt 孤立微粒子の 多段階粒子形成による表面被覆率・粒子数密度増大の検討

小笠原亜紀¹, 月岡純¹, 加藤真実², 塚本新²

(¹ 日本大学大学院理工学研究科, ² 日本大学理工学部)

Increase of Surface Coverage and Areal Density of Isolated FeCuPt Grain

by Multistep particle formation with Rapid thermal Annealing and Rapid Cooling process

Aki Ogasawara¹, Jun Tsukioka¹, Makoto Kato², and Arata Tsukamoto²

(¹ Graduate School of Nihon Univ. ² College of Science and Technology, Nihon Univ.)

はじめに

超高密度磁気記録媒体の作製を目指しており、これまで平坦な熱酸化 Si 基板上に FeCuPt 多層膜成膜後、急速昇降温熱処理(RTA : Rapid Thermal Annealing)および急速冷却処理(RCP : Rapid Thermal Annealing)を行うことで膜面に対し c 軸が垂直配向した $L1_0$ -FeCuPt 孤立微粒子が形成可能であることを報告している^{1),2)}。しかしながら膜表面に占める磁性体領域の表面被覆率が 20 % と疎であることが課題であったため、本報告では粒子形成時の初期積層厚、粒子形成手順の変更による表面被覆率、粒子数密度増大の検討を行った。

実験方法

DC マグネトロンスパッタ法により熱酸化 Si 基板上に sub/Fe/Cu/Pt の順に組成比 $\text{Fe}_{43}\text{Cu}_{14}\text{Pt}_{43}$ の多層膜を初期積層厚 t_s (1.25 nm, 2.5 nm, 3.75 nm) で成膜した。成膜後、赤外線ランプ真空炉にて急速昇降温熱処理を行った。熱処理方法は赤外線ランプの電力制御により室温から 2.9~5.3 s で到達温度 460~600 °C に達し、目標温度到達後、窒素投入により初期冷却速度 -33~-68 °C/s で急速冷却を行った。成膜・熱処理後、同一基板上にて成膜、熱処理プロセスを繰り返し粒子形成する多段階粒子形成を行った。

結果

TABLE. I に各種成膜、熱処理プロセスで作製した粒子形態、磁気特性、結晶構造を示す。Fig.1 に各作製試料の膜面垂直方向の M-H 特性を示す。 $t_s=3.75$ nm については単結晶化のため 600 °C, 1 h の追加熱処理を行った。Fig.1 (a) から膜面に対し垂直磁気異方性を有する $H_c=2.6$ T の磁性粒子が得られることが確認できる。一方、平均粒径の減少、粒子数密度増大が課題であり、 t_s を減少し改善を目指した。 $t_s=2.5$ nm にすることで粒子微細化、粒子数密度増大が達成でき、さらに追加熱処理なしで $t_s=3.75$ nm 時と同等の磁気特性を示した。しかし上記(a), (b)ではいずれも表面被覆率が 20 % 付近と低い値を示したため多段階粒子形成による改善を試みた。改善方法として、まず粒子の高密度化のためさらに t_s を減少し $t_s=1.25$ nm にて粒子を形成し高密度微粒子核形成を行う。その後磁気体積増大のため成膜、熱処理プロセスを繰り返し、核成長により高粒子数密度を保ちつつ表面被覆率が 40% を超える粒子が形成可能となった。

謝辞

本研究の一部は情報ストレージ研究推進機構、文部科学省私立大学戦略的研究基盤支援事業(S0311020)の助成により行ったものである。

参考文献

- 1) Y. Itoh, T. Aoyagi, A. Tsukamoto, K. Nakagawa, A. Itoh and T. Katayama: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **43**, 12, 8040(2004).
- 2) A. Itoh, A. Tsukamoto, S. Okame and K. Mizusawa: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **36**, 62-65(2012).

TABLE. I summary of particle form, crystal structure and magnetic characteristic on various way of deposition
(a) formed particle with additional annealing ($t_s=3.75$)
(b) formed particle ($t_s=2.5$) (c) first time to formed particle ($t_s=1.25$) (d) second time to formed particle ($t_s=1.25$)

		(a)	(b)	(c)	(d)
particle shape	average grain diameter [nm]	53.4	21.5	7.79	10.4
	particle number density [T particle/inch ²]	0.07	0.35	3.4	3.2
	surface coverage [%]	23	20	25	43
crystal structure	$L1_0$ -FeCuPt(001), (002) diffraction peak	○	○	-	-
magnetic structure	coercive force H_c [T]	2.6	3.1	-	1.5
	saturation magnetization M_s [emu/cc]	915	740	-	260

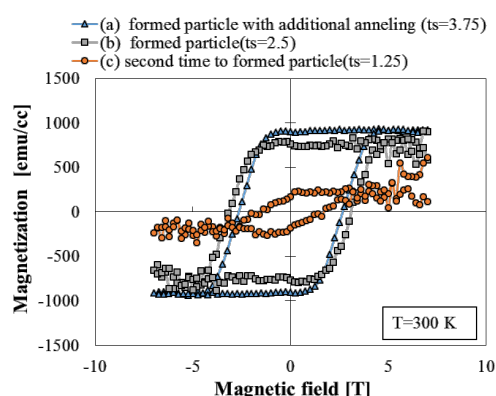


Fig.1 M-H loops comparing the magnetic property on various way of deposition

室温作製原子層積層スパッタ堆積 Co/Pt 膜の磁気特性

本多 直樹, 土屋垂穂, 内田裕久
(東北工大)

Magnetic properties of atomic layer stacking Co/Pt films sputter deposited at room temperature

N. Honda, T. Tsuchiya, H. Uchida
(Tohoku Inst. Tech.)

はじめに

次世代高密度記録媒体には $1 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ 以上の大きな磁気異方性と 800 emu/cm^3 程度以上の高飽和磁化 M_s を持つことも必要である。L1₁ CoPt 規則化合金はこれらの条件を満たす。しかし、高磁気異方性を得るためには、 250°C 以上での作製が必要である¹⁾。我々はコリメータを用いた Co/Pt 膜の原子層積層スパッタ堆積により、室温作製で高 M_s 、高異方性磁界 H_k ($M_s = 870 \text{ emu/cm}^3$, $H_k = 15 \text{ kOe}$) の垂直異方性膜を得た²⁾。ここでは、原子層積層膜と単純な Co/Pt 積層膜との違いを調べた。

積層膜の作製

三元マグネトロンスパッタ装置を用いて試料膜を作製した。直径 14 mm、高さ 10 mm の円筒型コリメータを用いた。スパッタ Ar 圧力はより大きな M_s が得られた 0.8 Pa とした。

150°C で加熱ガス出しを行った後、室温で製膜した。Ta と Pt をそれぞれ 10 nm ずつ形成した下地膜上に、基板ホルダーを回転させて Co と Pt の同時スパッタリングにより積層膜を作製した。Co と Pt の各層が基板 1 回転当たり必要な原子層分になるようターゲット電力と回転速度を調整した。

磁気特性

Fig. 1 に Co と Pt を 1 原子層ずつ積層して作製した薄膜(膜厚 30 nm)の垂直および面内方向の M-H ループを示す。 M_s は 1100 emu/cm^3 と大きく、また、面内方向ループの飽和磁界から見積もられる垂直 H_k も反磁界を含んで 8 kOe と大きな値が得られた。Fig. 2 は Co と Pt をそれぞれ 3 原子層ずつ積層した膜の M-H ループを示す。 H_k は 5 kOe 程度の垂直異方性膜であるが、 M_s は大きく低下し、ほぼ Co の単純希釈値である³⁾。Fig. 3 はさらに、Co と Pt を 1:3 の原子層比とした場合の試料の M-H ループを示す。 H_k も小さくなっているが、 M_s はやはり単純希釈程度に低下している。したがって、原子層積層膜では大きな M_s と H_k が同時に得られていることより、L1₁ の規則化が明瞭には見られない²⁾ものの、規則合金的な磁気特性となっているといえる。

参考文献

1) H. Sato, T. Shimatsu, Y. Okazaki, H. Muraoka, H. Aoi, S. Okamoto, and O. Kitakami, J. Appl. Phys., vol. 103, pp. 07E114-07E114-3, 2008. 2) T. Tsuchiya, N. Honda, S. Saito, H. Uchida, and K. Yamakawa, Intermag 2014 Digest Book, ES-14, pp. 1937-1938, Dresden, 2014. To appear in IEEE Trans. Magn. 3) Z. Zhang, P. E. Wigen, S. S. P. Parkin, J. Appl. Phys., vol. 69, p. 5649, 1991.

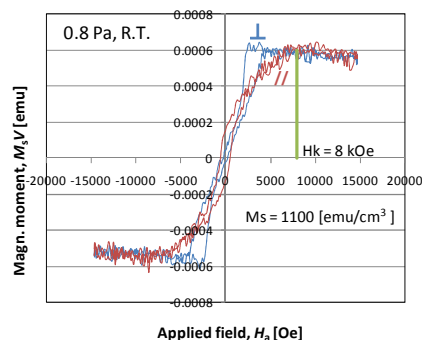


Fig. 1 Perpendicular and in-plane M-H loops for a Co/Pt stacked film deposited with 1/1 atomic layer using a collimator.

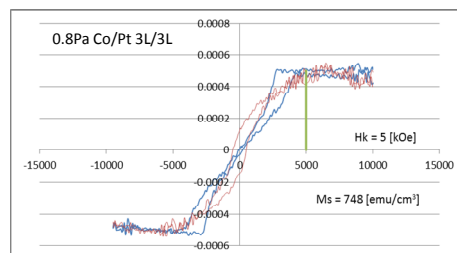


Fig. 2 Perpendicular and in-plane M-H loops for a Co/Pt stacked film deposited with 3/3 atomic layers.

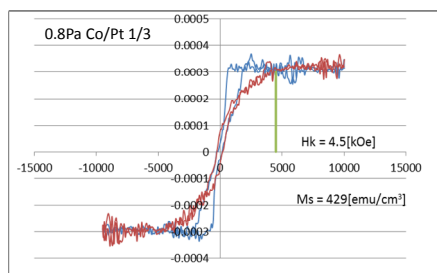


Fig. 3 Perpendicular and in-plane M-H loops for a Co/Pt stacked film deposited with 1/3 atomic layers.

CoPt-WO₃ グラニューラ媒体の磁気特性及び微細組織へのポストアニールの効果○タム キム コング^{a)}, 日向 慎太郎^{b,c)}, 斉藤 伸^{b)}, 高橋 研^{b)}

(a)田中貴金属工業株式会社, (b)東北大学, (c)日本学術振興会特別研究員)

Post-annealing effect on magnetic properties and microstructures of CoPt-WO₃ granular media○Kim Kong Tham^{a)}, Shintaro Hinata^{b,c)}, Shin Saito^{b)}, and Migaku Takahashi^{b)}

(a)TANAKA KIKINZOKU KOGYO K. K., (b)Tohoku University, (c)JSPS research fellow)

はじめに 近年、マイクロ波アシスト磁気記録 (MAMR)¹⁾ はハードディスクが直面している trilemma 課題を打破する将来技術として注目されている。第一世代の MAMR 媒体には、現行グラニューラ媒体に用いられている CoPt 合金を高 K_u 化して用いることが提案されている²⁾。一般に CoPt 合金の高 K_u 化手法の一つとして、成膜中に Co と Pt の原子拡散を促進させる基板加熱成膜プロセスが知られている³⁾。しかしながら、このプロセスをグラニューラ媒体作製の際に適用すると、下地層の表面凹凸が平坦化する結果、層状析出組織上に球状のグラニューラ組織が形成されてしまい、コラム状組織が得られないことがわかった⁴⁾。そこで我々は、室温で成膜されたグラニューラ媒体のコラム状構造を維持しながら磁性結晶粒中の原子拡散を促進させる方法として、ポストアニール法に注目した。今回我々は、ポストアニールの効果が室温成膜後のグラニューラ組織に依存すると考え、様々な酸化物材料の CoPt-酸化物グラニューラ媒体をポストアニールし、その磁気特性及び微細組織を評価したので報告する。

実験結果 一例として Fig. 1 には、ポストアニール温度(T_a): 500°C及び室温の CoPt-WO₃ グラニューラ媒体の磁化曲線を示している。挿入図は各媒体の平面 TEM 像である。媒体の層構成は、Glass sub./ Ta (5 nm)/ Pt (6 nm)/ Ru (0.6 Pa, 10 nm)/ Ru (8 Pa, 10 nm)/ Co₆₀Cr₄₀-26 vol. % SiO₂ (2 nm)/ Co₈₀Pt₂₀-30 vol. % (Al₂O₃, SiO₂, TiO₂, WO₃) (8 Pa, 16 nm) とした。熱処理条件は到達真空度: 5×10^{-4} Pa、昇温及び降温速度: 200°C/時間とした。 T_a を室温から 500°Cに昇温させると、保磁力 (H_c) は 7.1 から 10.8 kOe に増大した。この際に、粒間交換結合の強度に関係する保磁力近傍の磁化勾配 $4\pi dM/dH$ は 1.6 程度であり、この媒体の粒間交換結合が低いことを示唆している。Fig. 2(a) には、種々の酸化物 X (X: Al₂O₃, SiO₂, TiO₂, WO₃) を添加したターゲットを用いて作製した CoPt-X グラニューラ媒体の H_c の T_a 依存性を示している。X= Al₂O₃, SiO₂, TiO₂, WO₃ でのグラニューラ媒体の最大 H_c はそれぞれ 2.3, 5.7, 8.6, 10.8 kOe であった。今回検討した酸化物種の中では、WO₃ を用いた場合に H_c が最も高い値を示した。 T_a の変化に対する H_c の増大の原因を調べるために、WO₃ を用いた媒体の K_u^{grain} を測定した (Fig. 2(b))。ここでグラニューラ媒体中の磁性結晶粒の K_u^{grain} および M_s^{grain} は、媒体中に 30 vol. % の酸化物が含まれているものとし、結晶粒の体積が媒体全体の 70% であるとして導出した。 T_a を室温から 500°C まで昇温させると、 K_u^{grain} は 7.8×10^6 から 1.0×10^7 erg/cm³ まで増加した。更に T_a を上昇させると、 K_u^{grain} は 8.6×10^6 erg/cm³ に低下した。この K_u^{grain} の変化は H_c の変化にほぼ対応している。このグラニューラ媒体の熱揺らぎ耐性の指標 $\nu K_u^{\text{grain}}/kT$ を導出したところ約 200 であったことから、計測時間内での熱揺らぎによる影響は無視できる。 $H_k^{\text{grain}} = 2K_u^{\text{grain}}/M_s^{\text{grain}}$ であり、 M_s^{grain} が T_a の変化に対して 990 emu/cm³ のほぼ一定値であったことを考え併せると、 H_c の増大は H_k^{grain} の増大に起因することが示唆される。以上の結果を総括すると、CoPt-WO₃ グラニューラ媒体に対するポストアニールは、結晶粒のコラム状構造を維持しながら粒内の原子拡散を促進し、 10^7 erg/cm³ を超える高い K_u^{grain} を得るために有効な手法であるといえる。

参考文献 1) J. G. Zhu et al., *IEEE Tran. Magn.*, **44**, 125 (2008), 2) K. Yamada et al., digest of *The 24th Annual Magnetic Recording Conference*, E1 (2013), 3) e.g., Y. Yamada et al., *J. Appl. Phys.*, **85**, 5094 (1999), 4) Kim Kong Tham et al., *J. Appl. Phys.*, **115**, 17B752 (2014).

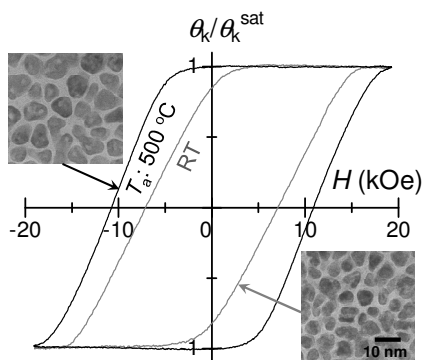


Fig.1 M-H loops of CoPt-WO₃ granular media at post annealing temperature (T_a) of 500 °C and room temperature. Insets show the in-plane TEM images for those granular media.

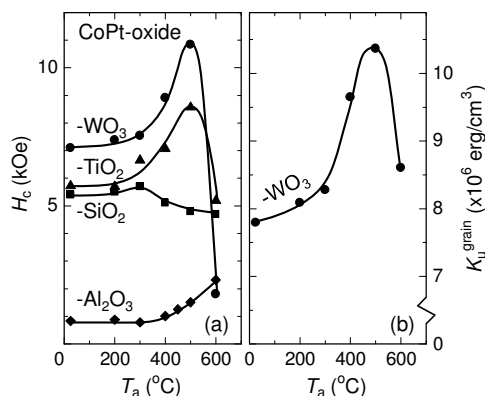


Fig.2 (a) H_c and (b) K_u^{grain} dependence of CoPt-X (X: Al₂O₃, SiO₂, TiO₂, WO₃) granular media on post annealing temperature (T_a).

周波数ドメインにおける磁化動特性測定用 Kerr 顕微鏡の開発

田丸慎吾、久保田均、薬師寺啓、福島章雄、湯浅新治
(産総研 ナノスピントロニクス研究センター)

Development of Kerr microscopy for the observation of magnetization dynamics in frequency domain

S. Tamaru, H. Kubota, K. Yakushiji, A. Fukushima, S. Yuasa
(AIST, Spintronics Research Center)

はじめに

微小な磁性体を用いた高周波デバイスの研究を行う上で、磁化の動的挙動を広帯域にわたって、高い空間分解能で測定する事は極めて重要である。この目的には、これまで Micro Focus-Brillouin Light Scattering (MF-BLS)[1]や Time Resolved-Scanning Kerr Effect Microscopy (TR-SKEM)[2]が使われてきているが、MF-BLS は入射光の弾性散乱の為、GHz より低い周波数の測定が困難であり、また TR-SKEM は多くの振動モードを一度に励起してしまうなど、それぞれ一長一短ある。我々は、広帯域、高空間分解能で磁化動特性を測定するため、TR-SKEM を発展させ、単一周波数の連続マイクロ波で興味あるモードを選択的に励起し、それによって生じたスピン波を Kerr 効果を用いて検出する、Spatially Resolved Ferromagnetic Resonance-Scanning Kerr Effect Microscopy (SRFMR-SKEM) という手法を開発した。[3,4]

実験方法及び結果

図1に SRFMR-SKEM のブロック図を示す。半導体レーザーは 10 MHz の基準クロックに同期して波長 408 nm、半値幅約 20 ps のパルス光を発生する。またマイクロ波発振器も基準クロックに位相同期した 8 GHz のマイクロ波を発生する。このマイクロ波に伴う高周波磁場が磁性膜に印加され、スピン波が励起される。パルス光はマイクロ波の決まった位相タイミングで磁性膜を照射し、反射光はその時点における磁化を反映する Kerr 回転を示す。低周波パルスによってマイクロ波は 180 度位相変調され、パルス光の入射タイミングは周期的に反位相に切り替えられる。よってフォトディテクタ出力を変調周波数に同期してロックイン増幅する事により、高感度でスピン波の複素振幅が得られる。試料をスキャンしながらこの測定を繰り返す事により、スピン波の空間分布を測定する事が出来る。

図2(a)に試料の構造を示す。この試料では、100 nm 厚のパーマロイ(Py)膜が 100 μm 四方の正方形に微細加工され、その下に平面導波路(CPW)が作りこまれている。この CPW にマイクロ波が流れ、Py 膜中にスピン波が発生する。

図2(b)に 520 Oe のバイアス磁場中で励起されたスピン波の振幅と位相の 1 次元分布を示す。位相分布よりその波長は約 15 μm である事がわかる。今回用いた Py 膜の幅は減衰定数よりも広いので、中心付近で励起されたスピン波が、両側に伝搬しつつ指数関数的に減衰し、Py 膜の端に到達する頃にはかなり弱くなる。その為 CPW 近傍では振幅が単調に減衰し、両端近傍でのみ進行波と反射波の干渉が見えている。講演では、この測定手法の詳細及び、磁場や試料形状等を変えた際の磁化動特性の測定結果について報告する。

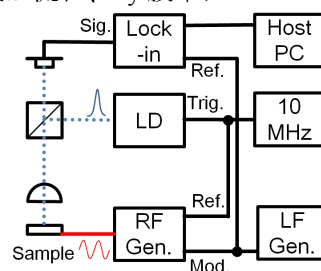


図1 SRFMR-SKEM ブロック図

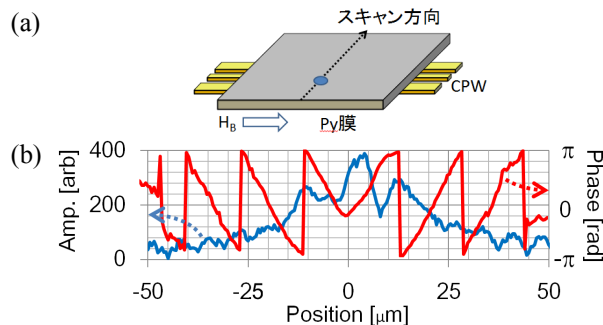


図2(a) 試料の構造、(b) 図2(a)の線上で観測されたスピン波の振幅(青線)と位相(赤線)の 1 次元分布

参考文献

- 1) A. A. Serga et al., Appl. Phys. Lett. 89, 063506 (2006)
- 2) W. K. Hiebert et al., Phys. Rev. Lett. 79, 1134 (1997)
- 3) S. Tamaru et al., J. Appl. Phys. 91, 8034 (2002)
- 4) S. Tamaru et al., Phys. Rev. B 70, 104416 (2004)

謝辞

本研究は、JST 戦略的イノベーション創出推進プログラム(S-イノベ)「3次元磁気記録新ストレージアーキテクチャのための技術開発」の支援によって行われた。

垂直磁化 $L1_0$ -FePd 薄膜における低ダンピング定数

○飯浜賢志, 水上成美*, 永沼博, 大兼幹彦, 宮崎照宣*, 安藤康夫

(東北大学大学院工学研究科応用物理学専攻, *東北大学原子分子材料科学高等研究機構)

Low magnetic damping in $L1_0$ -FePd thin films with a large perpendicular magnetic anisotropy

S. Iihama, S. Mizukami*, H. Naganuma, M. Oogane, T. Miyazaki*, and Y. Ando

(Department of Applied Physics, Tohoku Univ., *WPI-AIMR, Tohoku Univ.)

はじめに

大きな垂直磁気異方性を有する合金薄膜は、磁気抵抗ランダムアクセスメモリの高い熱安定性を確保するための磁性電極材料として重要である。他方、スピン注入磁化反転における反転電流密度は、垂直磁気異方性定数(K_u^{eff})とギルバートダンピング定数(α)に比例する。よって、高い垂直磁気異方性を保ちつつ小さな α を示す材料の探索が必須である。これまで我々は、垂直磁化 FePt 薄膜における磁化才差ダイナミクスを光学的検出を行い、比較的大きな α 値 (0.06) を報告した¹⁾。Pd は Pt に比べて軽い元素であるため、FePd の α は FePt のそれに比べ小さな値を示すことが期待される。本研究では比較的大きな垂直磁気異方性と小さな α を兼ねることが期待される $L1_0$ -FePd 薄膜において磁化才差ダイナミクスを測定し、 α を評価することを目的とした。

実験方法

試料は超高真空マグネトロンスパッタ法により作製した。膜構成は SrTiO₃ (001)単結晶基板/ FePd (20 nm)/Ta 保護層とした。薄膜試料は、基板温度 T_s で成膜した後、温度 T_a で真空中熱処理した。磁気特性は振動試料型磁力計(VSM), 結晶構造を X 線回折で評価し、磁化才差ダイナミクスはフェムト秒パルスレーザーを用いた全光学的ポンプ・プローブ法により検出した。

実験結果

温度 T_s を様々に変えて作製したところ、 T_s が 300°C 以上の時に垂直磁気異方性を有する試料が得られた。また T_a が 500°C 以上の場合に表面平坦性が良く、かつ大きな垂直磁気異方性を示す試料が得られた。Fig. 1(a)に $T_s = 300^\circ\text{C}$ および $T_a = 500^\circ\text{C}$ で作製した試料の磁化ダイナミクス測定結果を示す。外部磁場は 20 kOe とし、磁場角度 θ_H を様々に変えている。非常に周波数が速く減衰の小さい才差運動が観測されている。それぞれの波形に減衰振動関数をフィッティングすることで才差周波数 f および緩和時間 τ を求め、それらから実効 α 値 α_{eff} を評価した。その際 $\alpha_{\text{eff}} = 1/2\pi f\tau$ の関係式を用いた。Fig. 1(b)に異なる T_a で作製した試料の α_{eff} の磁場角度 θ_H 依存性を示す。 α_{eff} は θ_H に対して大きく変化している。これは異方性分散や 2 マグノン散乱といった磁気的な不均一性の影響によるものと考えられる。 $T_a = 500^\circ\text{C}$ の試料における α_{eff} の最小値は 0.006 であるため、FePd 垂直磁化膜の α は 0.006 よりも小さい可能性がある。この値は、垂直磁気異方性材料薄膜の中でも最も小さな値の一つである。

【謝辞】

本研究の一部は科研費(No. 24226001), 田中貴金属, NEDO 若手研究 Grant(No. 11B07018d), FIRST プログラム, JSPS 特別研究員奨励費(No. 26-4778)の援助のもと行われた。

参考文献

- 1) S.Iihama *et al.* Jpn. J. Appl. Phys. **52**, 073002 (2013),

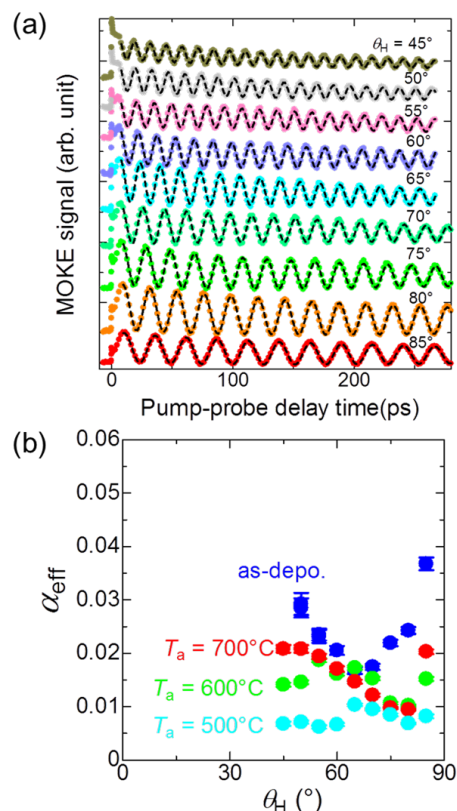


Fig. 1(a) Typical TRMOKE signals for the films with $T_s = 300^\circ\text{C}$ and $T_a = 500^\circ\text{C}$ with different field angle θ_H at fixed external field of 20 kOe. (b) θ_H dependence of α_{eff} obtained from the fitting with different T_a .

CoPtCr-SiO₂ 媒体の反転磁区形成時の実効ダンピング定数○日向 慎太郎^{a),b)}, 斉藤 伸^{b)}, 高橋 研^{b)}, 佐橋 政司^{b)}^(a)日本学術振興会特別研究員 (PD), ^(b)東北大学Effective damping factor for CoPtCr-SiO₂ medium with partially switched magnetic domains○Shintaro Hinata^{a),b)}, Shin Saito^{b)}, Migaku Takahashi^{b)}, and Masashi Sahashi^{b)}^(a)JSPS Research Fellow (PD), ^(b)Tohoku University

はじめに マイクロ波アシスト磁気記録 (Microwave Assisted Magnetic Recording: MAMR) は, trilemma 課題打破に有用な技術として提案され, 近年実際の媒体へのアシスト磁化反転結果が報告され始めた¹⁾. 実用化には第一世代として CoPt 基金合金を用いたグラニューラ媒体の適用が検討されている²⁾. MAMR 媒体の材料開発にあたっては, 静的な磁気定数 (飽和磁化 M_s , 一軸結晶磁気異方性定数など) に加え, 動的磁気定数, 特にマイクロ波の応答性に対応するダンピングファクター α の把握が重要である. 一般にグラニューラ媒体中の磁化が実効的に感じるダンピングファクター α_{eff} の評価は, 磁化が膜面直方向に飽和した状態での強磁性共鳴 (Ferromagnetic Resonance: FMR) の線幅から評価される^{1,3-4)}. しかしながら, 実媒体での記録時における磁化状態では, 上向きおよび下向きの磁化が膜中に混在しており, 磁性結晶粒は逆向きの磁化から粒間交換結合の影響を受けて歳差運動することとなるため, α_{eff} は磁化状態に依存して異なると考えられる. 本研究では, 粒間交換結合を変化させた Co₈₄Pt₁₆Cr₁₀-8mol(SiO₂)グラニューラ媒体について Q-band FMR を測定し, 媒体の磁化状態と α_{eff} との相関について検討したので報告する.

実験結果 粒間交換結合の調整には, 磁性層の成長初期部での結晶粒同士の接触度合いを変化させた. その具体的な手法としては下地層の成膜 Ar ガス圧 $P_{\text{Ar}}^{\text{Ru}}$ を変化させ, Ru 下地層の表面凹凸を変化させた. 図 1 に一例として表面凹凸の大きい $P_{\text{Ar}}^{\text{Ru}} = 8 \text{ Pa}$ の Ru 下地上に作製したグラニューラ媒体における FMR 信号を種々の磁化状態について示す. 各信号の相対高さは媒体の磁化 M/M_s に対応しており, 最上段および最下段の信号はそれぞれ磁化を上向きおよび下向きに飽和させた状態での共鳴に対応している. また, 赤および青の実線で示された FMR はそれぞれ反転磁界 H_{sw} の大きな上向きに磁化した結晶粒, および H_{sw} の小さな下向きに磁化した結晶粒の FMR に対応している³⁻⁴⁾. 上向き磁化の FMR に注目すると, 磁化飽和状態 ($M/M_s = 1$) において, 磁界約 2.4 kOe で線幅 $\Delta H_{\text{DC}}^{\text{res}}$ が約 500 Oe の FMR が観測された. また, 磁化反転の進行とともに共鳴磁界は低減し, かつ $\Delta H_{\text{DC}}^{\text{res}}$ は増大していくことがわかった. 図 2 には CoPtCr-SiO₂ グラニューラ媒体において (a) 上向きおよび (b) 下向きに磁化した結晶粒による FMR 線幅 $\Delta H_{\text{DC}}^{\text{res}}$ の磁化状態依存性を種々の $P_{\text{Ar}}^{\text{Ru}}$ 毎に示す. 副軸には $\alpha_{\text{eff}} = \Delta H_{\text{DC}}^{\text{res}} \times \gamma / 2\omega$ により導出した実効ダンピング定数を記載した. 上向き磁化起因の α_{eff} は $P_{\text{Ar}}^{\text{Ru}} = 0.6 \text{ Pa}$ の試料では $M/M_s = 1$ から 0.65 への減少により 0.050 から 0.065 へとわずかな増大であった. 一方, $P_{\text{Ar}}^{\text{Ru}} = 8.0 \text{ Pa}$ の試料では同様の M/M_s の変化で α_{eff} は約 0.025 から 0.115 へと大きく増大した. 下向きに磁化した結晶粒の共鳴の挙動は, 上記の上向きに磁化した結晶粒の共鳴と概ね同様であった. $P_{\text{Ar}}^{\text{Ru}}$ の大きな Ru 下地層を用いたグラニューラ媒体において α_{eff} の M/M_s に対する勾配が大幅に増大した理由としては, $P_{\text{Ar}}^{\text{Ru}}$ の増大にともない組織の不均一性が増加し, 粒間交換結合の強度に分散が生じたためと考えている.

参考文献 1) Y. Nozaki *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **112**, 083912 (2012). 2) K. Yamada *et al.*, *Digest of the 24th Magn. Rec. Conference. TMRC*, **24**, 64 (2013). 3) S. Hinata *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **111**, 07B722 (2012). 4) S. Hinata *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, **48**, 3177 (2012)

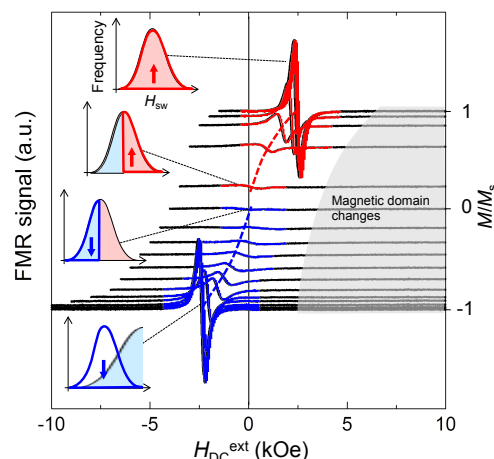


Fig. 1 FMR linewidth for CoPtCr-SiO₂ granular media deposited on Ru underlayer with various Ar pressure $P_{\text{Ar}}^{\text{Ru}}$.

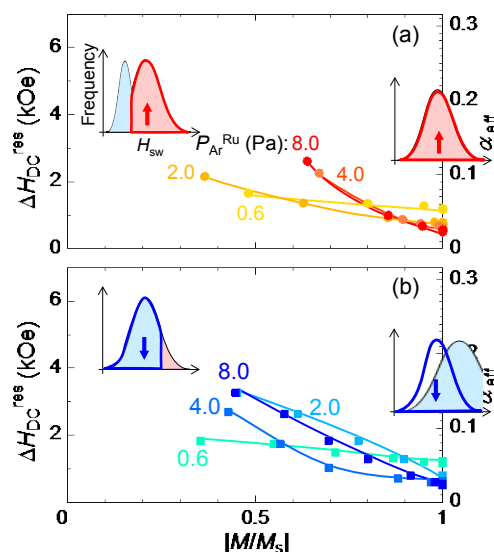


Fig. 2 FMR linewidths for (a) upwardly- and (b) downwardly magnetized grains for CoPtCr-SiO₂ granular media deposited on Ru underlayer with various Ar prewssure $P_{\text{Ar}}^{\text{Ru}}$.

CoPtCr-SiO₂ 媒体の反転磁界分布に及ぼす マイクロ波アシスト磁化反転の効果

○日向 慎太郎^{a,b)}, 斉藤 伸^{b)}, 高橋 研^{b)}, 佐橋 政司^{b)}

(^{a)}日本学術振興会特別研究員 (PD), (^{b)}東北大学)

Effect of microwave assisted switching on switching field distribution of CoPtCr-SiO₂ medium

○Shintaro Hinata^{a,b)}, Shin Saito^{b)}, Migaku Takahashi^{b)}, and Masashi Sahashi^{b)}

(^{a)}JSPS Research Fellow (PD), (^{b)}Tohoku University)

はじめに マイクロ波アシスト磁気記録 (Microwave Assisted Magnetic Recording: MAMR) は, trilemma 課題打破に有効であり, 現行の CoPtCr 合金を用いたグラニューラ媒体に適用することで更なる記録密度向上が期待されている¹⁾. 実際に MAMR が行われる際には, 媒体は書込ヘッドからの記録磁界を斜め方向に受けて反転する¹⁾. しかしながら一般にマイクロ波アシスト磁化反転の原理検証は, 直流磁界を試料垂直方向に印加した状況でマイクロストリップ線路を用いた周波数掃引型の測定系を用いて行われている²⁻³⁾. 今回我々は, 直流磁界の印加角度を試料の回転により容易に変更可能であり, かつ数 mm の領域に渡って強度が均一なマイクロ波を試料へ入射できる「キャビティ法」⁴⁾によりマイクロ波アシスト磁化反転を試み, その反転磁界分布を評価したので報告する.

実験結果 図 1 にアシスト反転と反転磁化量検出のためのマイクロ波の印加手順を示す. 細い実線は外部磁界 H_{DC}^{ext} を薄膜面直方向に印加した際のフルループを示している. 実験手順は以下の通りである. I) 磁化を飽和させるため, 外部磁界 H_{DC}^{ext} を膜面直方向へ A (最大磁界) まで印加. II) H_{DC}^{ext} を A から B ($H_{DC}^{ext} = 0$) まで掃引する. III) H_{DC}^{ext} の印加角度を変更した後, アシスト反転を促すために Q-band (約 34 GHz) のマイクロ波を印加しながら H_{DC}^{ext} を B から D (任意の折り返し磁界 $-H_{ret}$) へと掃引する. IV) H_{DC}^{ext} の印加角度を膜面直へ戻し, D から E へと磁化状態を維持したまま H_{DC}^{ext} を掃引する. V) H_{DC}^{ext} を E から A まで掃引しマイナーループを閉じる. VI) H_{ret} の値を変更し上記 I) - V) を繰り返す. 反転磁化量は, D から E へと磁界掃引中に弱振幅にて Q-band 強磁性共鳴を測定し, その共鳴磁界から見積もった⁵⁾.

図 2 には種々のマイクロ波強度 P において評価した H_{DC}^{ext} 印加角度 (a) 0 deg (膜面直) および (b) 45 deg における Co₇₄Pt₁₆Cr₁₀-8mol(SiO₂) グラニューラ媒体の反転磁界分布 (Switching field distribution: SFD) を示す. 各 SFD は積分面積が 100%となるように規格化されている. (a) において $P = 0.002$ mW (ほぼアシスト無し) では, SFD は約 3.8 kOe を最頻値とした分布をとった. P を増加させるに従い, SFD の形状全体が低磁界側へ移動した. $P = 160$ mW では 0.002 mW の場合と比較して約 200 Oe 低磁界側へ移動しており, 最頻値は 3.6 kOe となった. 一方, (b) において $P = 0.002$ mW での SFD は 2.5 kOe を最頻値とした分布をとった. P を増加させた場合, SFD の形状としては 5 - 8 kOe 以上の反転磁界領域において形状が約 200 Oe 低磁界側へ移動した. 上記の結果より, 斜め方向の磁界印加においてもマイクロ波アシストによる反転磁界の低減効果が認められることがわかった.

参考文献 1) K. Yamada *et al.*, *Digest of the 24th Magn. Rec. Conference. TMRC*, **24**, 64 (2013). 2) S. Okamoto *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **109**, 07B748 (2011). 3) Y. Nozaki *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **112**, 083912 (2012). 4) S. Hinata, *et al.*, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **34**, 214 (2010). 5) S. Hinata *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, **47**, 3951 (2011).

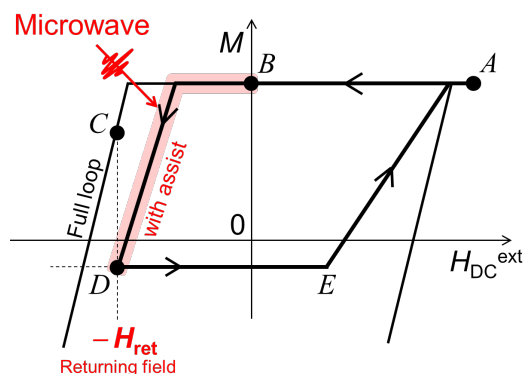


Fig. 1 A schematic of verification method for microwave assisted effect. Grey solid line shows the typical full-loop of the granular media ($\theta_H = 0$ deg).

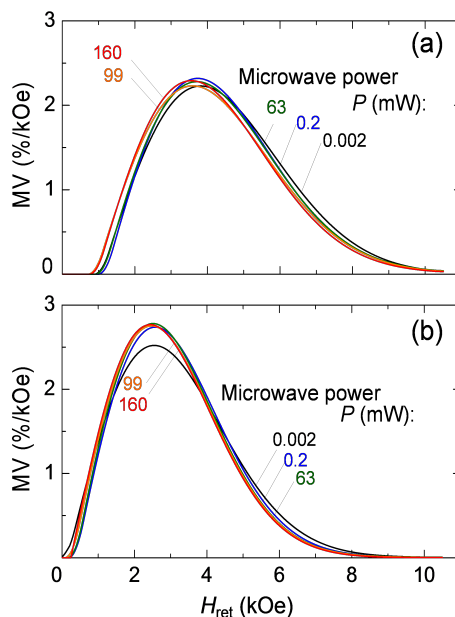


Fig. 2 Switching field distribution at various microwave assisting power for incident angle of DC external field θ_H is (a) 0 deg and (b) 45 deg.

熱アシスト磁気記録における媒体の磁気異方性

赤尾達也, 磯脇洋介, 小林正, 藤原裕司

(三重大)

Anisotropy constant required for Thermally Assisted Magnetic Recording

T. Akao, Y. Isowaki, T. Kobayashi, Y. Fujiwara

(Mie Univ.)

はじめに

熱アシスト磁気記録(TAMR)において必要な媒体の磁気異方性 K_u を考える。まず、熱伝導シミュレーションにより書き込み直後の媒体の冷却速度 $\partial T / \partial x$ を計算した。次に、情報安定性に注目して分子場近似シミュレーションにより必要な K_u を算出した。TAMR では K_u とともにキュリー温度 T_c も指定する必要があるが、 K_u は T_c の関数である。そこで、バルクの K_u に対する膜の K_u の比 K_u / K_{ubulk} というパラメーターを導入する。 K_u / K_{ubulk} が同じであれば K_u が異なっても膜の作製難易度は同じであるが、 K_u / K_{ubulk} を大きくするのは難しい。

計算結果

計算パラメーターは、媒体の膜厚 h 、1 ビットあたりのグレイン数 n 、グレインサイズの標準偏差 σ_D 、書き込み温度 T_w で、Table 1 には h を変化させた結果を示す。媒体を TAMR として使うためには、以下の 3 つの条件を満たす必要がある。(1) 情報の 10 年間保存に必要な媒体の熱揺らぎ指標 $K_u V / kT (330K)$ は、 n と σ_D から決まる熱揺らぎ指標 K_β より大きくなくてはならない。(2) 記録時において、記録位置の 1 ビット前、1 トラック隣の情報安定性から、媒体が要求する最低の冷却速度 $\Delta T / \Delta x$ が決まる。これは $\partial T / \partial x$ より低くなくてはならない。なお、熱伝導シミュレーションにより計算した媒体の冷却速度はダウントラック方向とクロストラック方向でおおよそ等しい。そして、ビットアスペクトレシオを最適化することで、媒体が要求する冷却速度も各方向で等しくすることができるので、ダウントラック方向でのみ考える。(3) 主磁極下の情報安定性より、主磁極下で媒体が情報を保持できる最大の磁界 H_{adj} が決まる。これは必要な記録磁界 H_w より高くなくてはならない。この計算条件では(2)が律速となっていて、これより最低の K_u / K_{ubulk} が決まる。 h が 6 nm から 10 nm に厚くなると、グレイン体積 V も同様に大きくなるが、 K_u / K_{ubulk} はそれほど小さくはならない。これは h の増加とともに $\partial T / \partial x$ が下がるためである。 $h = 8$ nm において $K_u V / kT = 63$ の媒体は情報を 10 年間保存できるが、TAMR として使うには K_u が不十分であり、 $K_u V / kT = 97$ が必要となる。もし $\partial T / \partial x$ を 6.9 K/nm から 13.5 K/nm まで上げることができれば $K_u V / kT = 65$ の媒体も TAMR として使うことができ、 K_u / K_{ubulk} を 0.87 から 0.55 まで下げることができる。したがって必要な K_u / K_{ubulk} は $\partial T / \partial x$ に大きく依存する。

本研究の一部は情報ストレージ研究推進機構(SRC)の助成のもとに行われました。ここに謝意を表します。

参考文献

- 1) T. Kobayashi et al.: J. Magn. Soc. Jpn., 36, pp. 282-286, 2012.

Table 1 Media specification of TAMR for 4Tbps

h [nm]	6	8	10
n [grain/bit]	4	4	4
σ_D [%]	10	10	10
T_w [K]	500	500	500
M_s (300K) [emu/cm ³]	675	655	643
K_u (300K) [Memu/cm ³]	27.8	25.2	23.9
H_c (300K)= H_k (300K) [kOe]	82.3	76.9	74.3
T_c [K]	544	532	524
$K_u V / kT(300K)$	97	118	139
$K_\beta = f(n, \sigma_D)$	63	63	63
(1) $K_u V / kT(330K) > K_\beta$	81	97	115
$\partial T / \partial x$ [K/nm]	7.72	6.92	6.23
(2) $\Delta T / \Delta x$ [K/nm] $< \partial T / \partial x$	7.72	6.92	6.23
H_w [kOe]	10.8	10.5	10.3
(3) H_{adj} [kOe] $> H_w$	24.5	27.2	29.8
K_u / K_{ubulk}	0.90	0.87	0.86

Sm-Fe-N 系磁石の磁気特性

齋藤哲治
(千葉工業大学)

Magnetic properties of Sm-Fe-N magnets

Tetsuji Saito
(Chiba Institute of Technology)

はじめに

Sm-Fe-N 合金粉末は高温で分解するため Nd-Fe-B 磁石とは異なり、焼結により固化成形できないことが欠点となっていた。そのため、現在 Sm-Fe-N 磁石はボンド磁石として使用されている。最近、新しい固化成形法として Nd-Fe-B アモルファス合金粉末などをアモルファスのまま固化成形できる冷間圧縮せん断法が開発された。この冷間圧縮せん断法は冷間で粉末を圧縮せん断することを特徴とする⁽¹⁾。そのため、高温で分解する Sm-Fe-N 合金粉末も冷間圧縮せん断法により固化成形できることがわかってきた⁽²⁾。しかし、冷間圧縮せん断法では板状の試料しか作製できない。そこで、放電プラズマ焼結法により Sm-Fe-N 合金粉末が固化成形できるかどうかについて検討したところ、高温で分解する Sm-Fe-N 合金粉末も放電プラズマ焼結法により固化成形できることがわかってきた。本研究では放電プラズマ焼結法により作製した Sm-Fe-N 磁石の磁気特性について調べたので報告する。

実験方法

原料粉末として TbCu₇ 型および Th₂Zn₁₇ 型の 2 種類の Sm-Fe-N 合金粉末を用いた。まず、これらの Sm-Fe-N 合金粉末の固化成形を冷間圧縮せん断法で試みた。なお、雰囲気は大気中、温度は室温で行った。次に Sm-Fe-N 合金粉末の固化成形を放電プラズマ焼結法で試みた。なお、焼結条件としては、雰囲気は真空中、焼結温度は 673–873K、焼結圧力は 100MPa とした。得られた試料の密度はアルキメデス法で測定した。得られた試料の構造と組織は、X 線回折装置、走査型電子顕微鏡および EPMA で調べた。また得られた試料の熱磁気特性は振動試料型磁力計で、ヒステリシス曲線は振動試料型磁力計で測定した。

結果および考察

冷間圧縮せん断法では TbCu₇ 型および Th₂Zn₁₇ 型の Sm-Fe-N 合金粉末ともほとんど分解することなくバルクの磁石に固化成形できることが、また得られた Sm-Fe-N 磁石は原料粉末と同様に高い磁気特性を示すことがわかった。しかし、放電プラズマ焼結法では Th₂Zn₁₇ 型の Sm-Fe-N 合金粉末は低温でも一部分解してしまうことが、また高温 (873K) では完全に分解してしまうことがわかった。それに対して、TbCu₇ 型の Sm-Fe-N 合金粉末も高温では完全に分解してしまうが、低温では分解することなく固化成形できることがわかった。

図 1 に TbCu₇ 型の Sm-Fe-N 合金粉末と放電プラズマ焼結法により作製した TbCu₇ 型の Sm-Fe-N 磁石のヒステリシス曲線を示す。放電プラズマ焼結法により作製した TbCu₇ 型の Sm-Fe-N 磁石は原料粉末とほぼ同等の高い磁気特性を示すことがわかった。

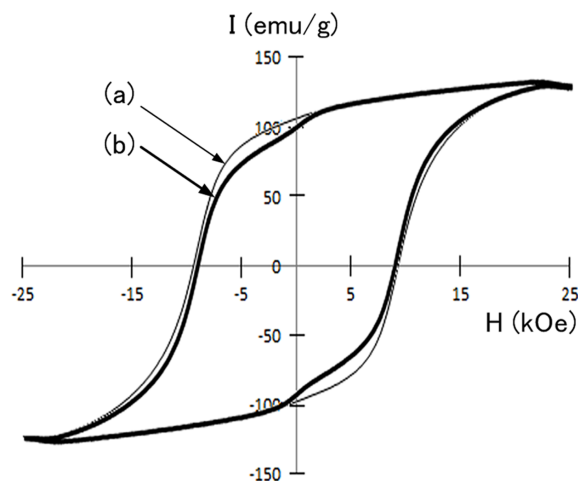


Fig.1 Hysteresis loops of (a) Sm-Fe-N powder and (b) Sm-Fe-N magnet produced by spark plasma sintering method.

参考文献

- 1) T. Saito, H. Takeishi, and N. Nakayama, J. Mater. Res., vol.20, No.3, pp.563-566 (2005).
- 2) T. Saito, H. Sato, H. Takeishi, and N. Nakayama, Appl. Phys. Lett. vol. 89, 162511 (2006).

面内磁気異方性を持つエピタキシャル RCO_5 規則合金膜の構造解析

堀田裕介・山田真・鈴木中・大竹充・二本正昭・桐野文良*・稲葉信幸**

(中央大, *東京藝大, **山形大)

Structural Characterization of RCO_5 Ordered Alloy Epitaxial Thin Films with In-plane Magnetic Anisotropies

Yusuke Hotta, Makoto Yamada, Ataru Suzuki, Mitsuru Ohtake,

Masaaki Futamoto, Fumiyoshi Kirino*, and Nobuyuki Inaba**

(Chuo Univ., *Tokyo Univ Arts, **Yamagata Univ.)

はじめに 希土類金属 (R) と $3d$ 強磁性遷移金属の Co からなる RCO_5 規則合金は高い K_u 特性を示し, その薄膜は薄膜磁石, アクチュエータ, マイクロモータなどへの応用に向けた研究が行われている. これまで, (100)もしくは(211)配向の $W^{1)}$ や $Cr^{2)}$, $Fe^{3)}$ などのbcc金属下地層を用いることにより, c 軸が面内に存在するエピタキシャル $SmCo_5$ 膜の形成が報告されている. 本研究では, MgO 単結晶基板の上にヘテロエピタキシャル成長させた $Cr(100)$ および $Cr(211)$ 下地層上に種々の希土類元素を用いた RCO_5 規則合金膜の形成を行い, 膜形成条件と膜構造の関係を調べた.

実験方法 膜形成には超高真空分子線蒸着装置を用いた. $MgO(100)$ および $MgO(110)$ 基板に, それぞれ, ヘテロエピタキシャル成長させた $Cr(100)$ および $Cr(211)$ 下地層上に 20 nm 厚の R と Co の組成比が 1 : 5 となる組成で基板温度 500 °C で膜形成した. 構造評価にはRHEEDおよびXRD, 磁気特性評価にはVSMを用いた.

実験結果 Fig. 1(a)および(b)に $Cr(100)$ 下地層上に $Sm-Co$ 膜形成中に観察した RHEED パターンを示す. 形成初期段階から製膜後まで, Fig. 1(d)の $SmCo_5(11\bar{2}0)$ 表面の形成を示す回折パターンが観察されており, エピタキシャル $SmCo_5$ 膜が得られていることが分かる. RHEED 解析により決定したエピタキシャル方位関係は以下の通りである.

$$\begin{aligned} SmCo_5(11\bar{2}0)[0001] &\parallel Cr(100)[011] \\ SmCo_5(11\bar{2}0)[1\bar{1}00] &\parallel Cr(100)[011] \end{aligned}$$

$SmCo_5$ 膜は, c 軸が面内に存在し, 互いに直交した方位関係を持つ 2 つのバリエーションから構成されていることが分かった. Fig. 2 に XRD パターンを示す. 面外パターンでは, $SmCo_5(11\bar{2}0)$ 反射が認められる. 面内パターンでは, $SmCo_5(0002)$ 基本反射に加え, $SmCo_5(0001)$ 超格子反射も観察されており, RT_5 型構造に規則化した $SmCo_5$ 膜が形成されていることが分かる. 当日は Sm 以外の R 元素を用いた RCO_5 膜についても報告する.

参考文献 1) E. E. Fullerton *et al.*: *Appl. Phys. Lett.*, **69**, 2438 (1996). 2) E. E. Fullerton *et al.*: *Appl. Phys. Lett.*, **71**, 1579 (1997). 3) M. J. Pechan *et al.*, *J. Appl. Phys.* **87** 6686 (2000).

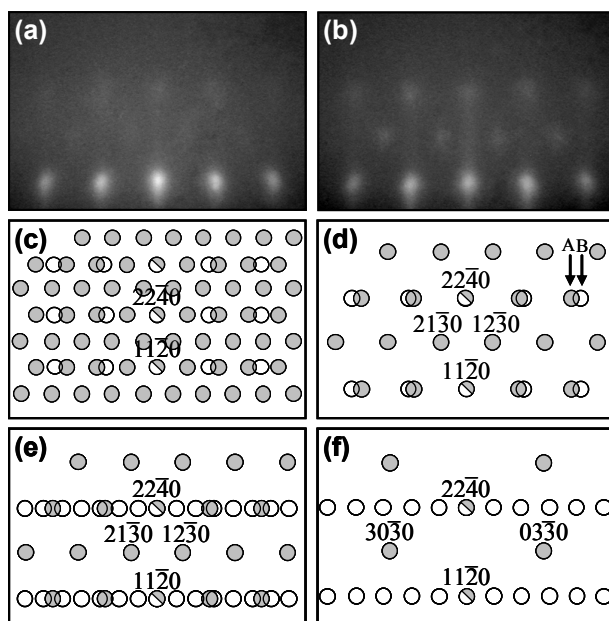


Fig. 1 (a, b) RHEED patterns observed during $Sm-Co$ deposition on $Cr(100)$ underlayer at 500 °C. The $Sm-Co$ film thicknesses are (a) 5 and (b) 20 nm. (c-f) Schematic diagrams of RHEED patterns simulated for (11 $\bar{2}0$) surfaces of (c) Sm_2Co_{17} , (d) $SmCo_5$, (e) Sm_2Co_7 , and (f) $SmCo_3$ crystals.

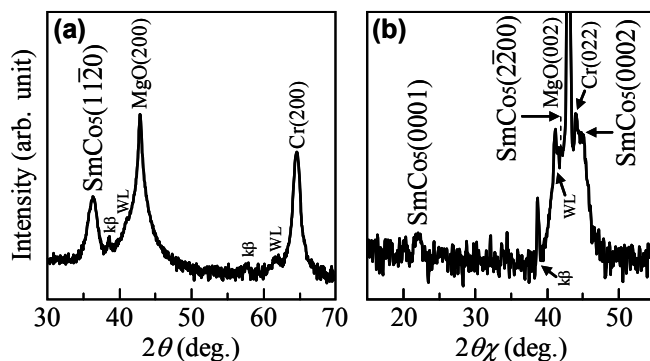


Fig. 2 (a) Out-of-plane and (b) in-plane XRD patterns of an $Sm-Co$ film deposited on $Cr(100)$ underlayer at 500 °C.

Cu(111)下地層上におけるエピタキシャル $R\text{Co}_5$ 規則合金薄膜の形成

山田真・堀田裕介・鈴木中・大竹充・二本正昭・桐野文良*・稲葉信幸**
(中央大, *東京藝大, **山形大)

Preparation of Epitaxial $R\text{Co}_5$ Ordered Alloy Thin Films on Cu(111) Underlayers

Makoto Yamada, Yusuke Hotta, Ataru Suzuki, Mitsuru Ohtake,
Masaaki Futamoto, Fumiyoshi Kirino*, and Nobuyuki Inaba**
(Chuo Univ., *Tokyo Univ. Arts, **Yamagata Univ.)

はじめに $R\text{Co}_5$ (R : 希土類元素) 規則合金は $10^7 \sim 10^8 \text{ erg/cm}^3$ オーダーの高い K_u を持つものが多く、そのため、これらの薄膜は高密度磁気記録媒体などへの応用に向けて研究されている。これまで、Cu(111)下地層を用いることにより、磁化容易軸である c 軸が面直に向いた SmCo_5 薄膜が形成されることが報告されている¹⁻³⁾。薄膜の基本構造や磁気特性を調べるためには、基板結晶に対して膜の結晶方位を制御できるエピタキシャルを用いることが有効である。しかしながら、 SmCo_5 合金膜以外の磁化容易軸が面直方向に向いたエピタキシャル $R\text{Co}_5$ 膜の形成例は殆ど報告されていない。本研究では、 R 元素として、 Y や Gd などを用いたエピタキシャル $R\text{Co}_5$ 膜の形成を試みた。

実験方法 薄膜作製には超高真空 MBE 装置を用いた。MgO(111)基板上に 20 nm 厚の $R\text{Co}_5$ (at. %) ($R = \text{Y}, \text{Gd}$, など) 合金膜を形成した。製膜時の基板温度を 500 °C とした。構造評価には RHEED および XRD を、磁化曲線測定には VSM を用いた。

実験結果 Fig. 1(a)に Y-Co 膜に対して観察を行った RHEED パターンを示す。形成初期過程から鮮明な回折パターンが観察されており、Fig. 1(b-2)に示す $RT_5(0001)$ 面の回折パターンと一致していることが分かる。このことからエピタキシャル $\text{YCo}_5(0001)$ 膜が形成されていることが確認された。また、Fig. 1(b-2)中の A, B に示すような異なる結晶方位関係を表す 2 つの回折パターンが重畳して現れている。よって作製した Y-Co 膜は双晶エピタキシャル膜であることが分かった。RHEED 解析から決定したエピタキシャル方位関係は以下の通りである。

$$\text{YCo}_5(0001)[11\bar{2}0], [1100] \parallel \text{Cu}(111)[11\bar{2}]$$

Fig. 2 に 20 nm 厚の Y-Co 膜から得られた面外 XRD スペクトルを示す。 $\text{YCo}_5(0002)$ 基本反射に加え、 $\text{YCo}_5(0001)$ 超格子反射が得られていることから、規則構造を持つ合金膜が形成されていることを確認できる。当日は、他の R 元素を用いた結果についても報告する。

参考文献 1) S. Takei *et al.*: *J. Magn. Magn. Mater.*, 272-276, 1703 (2004). 2) J. Sayama *et al.*: *J. Phys. D*, 37, L1 (2004). 3) M. Ohtake *et al.*: *J. Cryst. Growth*, 311, 2251 (2009).

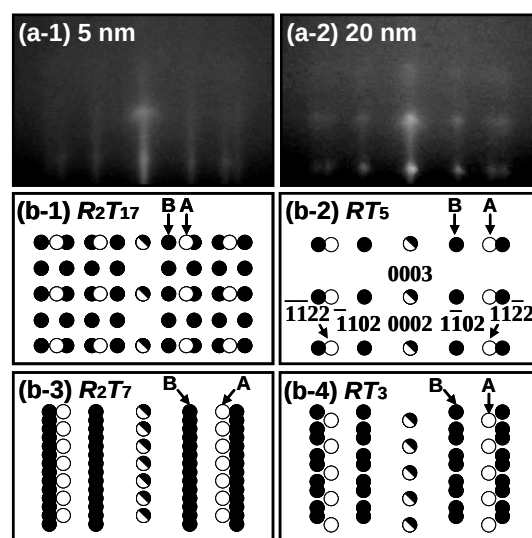


Fig. 1 (a) RHEED patterns of a Y-Co film observed during deposition on Cu(111) underlayer at 500 °C. The film thicknesses are (a-1) 5 and (a-2) 20 nm. (b) Schematic diagrams of RHEED patterns simulated for (0001) surfaces with (b-1) R_2T_{17} , (b-2) RT_5 , (b-3) R_2T_7 , and (b-4) RT_3 ordered structure.

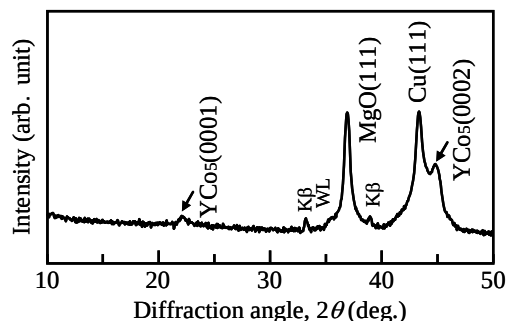


Fig. 2 Out-of-plane XRD pattern of a Y-Co film deposited on Cu(111) underlayer at 500 °C.

ドロップレット低減による Sm-Co/ α -Fe 積層型 ナノコンポジット厚膜磁石の磁気特性改善

牧原峻佑、藤昭徳、柳井武志、中野正基、福永博俊

(長崎大学大学院 工学研究科)

Improvement in magnetic properties of PLD-made Sm-Co/ α -Fe multi-layered nanocomposite film-magnets
due to suppression of droplets

S. Makihara, A. Tou, T. Yanai, M. Nakano, H. Fukunaga
(Nagasaki University)

はじめに

Sm-Co/ α -Fe ナノコンポジット磁石は高いキュリー温度、高い飽和磁化を有することから高温で使用される高性能磁石の候補として挙げられる⁽¹⁾。我々は、600~800 層の積層構造（一層の厚み：20~30nm）を有する等方性厚膜磁石を PLD 法を用いて作製し、室温において 100 kJ/m³、150℃において 60 kJ/m³の $(BH)_{\max}$ を有する磁石膜を報告した⁽²⁾。しかしながら、磁石膜にはドロップレットと呼ばれる微粒子が存在し、ナノオーダーの積層構造の妨げとなっていることが懸念される。

そこで本研究では、補助レーザを用いて Sm-Co/ α -Fe 積層型ナノコンポジット磁石膜のドロップレットを低減し、その磁気特性を改善した。

実験方法

積層型ナノコンポジット磁石の作製には、Sm_{1.9}Co₅合金と α -Feの複合ターゲット（面積比 1:1）を用いた。回転するターゲットに Nd:YAG レーザ（主レーザ： $\lambda=355$ nm）を照射し、対向する Ta 基板にターゲット物質を堆積させた。その際、ターゲットから放出されたドロップレットが基板に到達するのを防ぐため、主レーザに同期させた補助レーザを飛行するドロップレットに照射し（遅延時間 t_d ）、ドロップレットを再アブレーションした(Fig.1)。成膜後、膜表面の SEM 観察及び平均表面粗さ R_a の測定により、ドロップレットの増減を定性的に評価した。

なお、成膜直後の Sm-Co 層は非晶質状態にあったので、パルス熱処理により磁氣的に硬化させた。

実験結果及び考察

Fig.2に補助レーザの遅延時間 t_d に対する R_a の変化を示す。補助レーザを用いることで膜表面の平均粗さが小さくなることが了解される。このことは SEM 観察画像からも確認される。

Fig.3に角型比を示している。補助レーザを使用することで角型比が向上している。これは、ドロップレットの抑制したことで、Sm-Co 層および α -Fe 層間の交換結合が有効に機能するようになったためと考えられる。

その結果、 $(BH)_{\max}$ は補助レーザを使用しないものに比べて約 10%向上し、 $H_c=357$ kA/m, $J_r=1.06$ T, $(BH)_{\max}=110$ kJ/m³の特性が得られた。

参考文献

- (1) H. Fukunaga et al., IEEE Trans. Magn. **49**, 3240 (2013).
- (2) H. Fukunaga et al., IEEE Trans. Magn. **50**, 2101504 (2014).

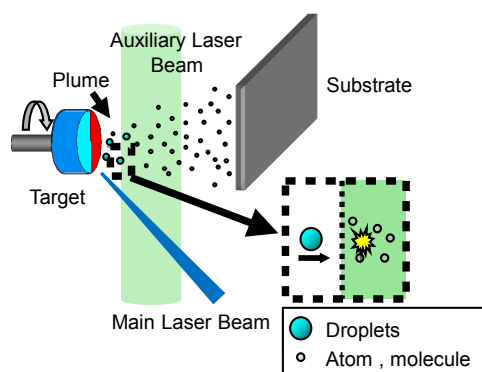


Fig.1 Experimental setup.

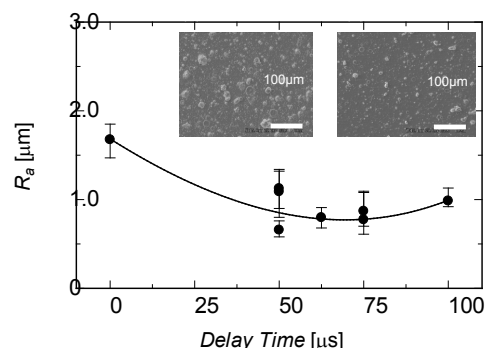


Fig.2 Average surface roughness R_a of Sm-Co/ α -Fe multi-layered films as a function of delay time of auxiliary laser.

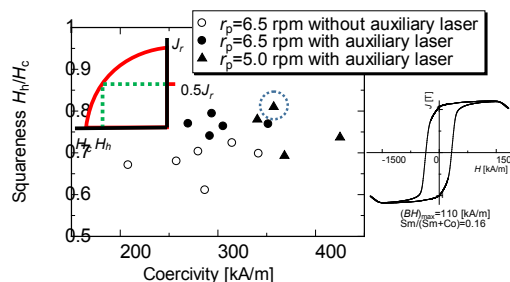


Fig.3 Squareness of demagnetization curve as a function of coercivity, together with hysteresis loop for the film shown by the dotted circle. The squareness is given by H_w/H_c which are defined in the inset.

アークプラズマ蒸着により作製した Fe 系ナノ粒子の磁気特性

松浦昌志, 山本鉄郎, 手束展規, 杉本諭
(東北大学 大学院工学研究科)

Magnetic properties of Fe-based nano-particles prepared by arc-plasma deposition

M. Matsuura, T. Yamamoto, N. Tezuka, and S. Sugimoto
(Graduate school of Engineering, Tohoku University)

諸言

Fe 系ナノ粒子はこれまで、液相法や気相法などの様々な方法を用いて作製されてきた。気相法の一つであるアークプラズマ蒸着法は金属ナノ粒子を作製する方法であるが^[1], さらに本手法は、金属ナノ粒子を基材となる粉末表面に担持させることが可能といった特徴を有している。しかしながら、本手法で Fe 系ナノ粒子を作製し、その磁気特性を調べた例はない。そこで本研究では、アークプラズマ蒸着法を用いて、安定酸化物である SiO₂ 粉末に Fe 系粒子を堆積させたときの組織と磁気特性を調べた。

実験方法

試料は、到達真空度が 2×10^{-4} Pa 以下のアークプラズマ蒸着装置を用いて作製した。ターゲットとして Fe-Co, Fe-Pt 合金を用い、平均粉末粒径が 70 nm の SiO₂ 粉末上に堆積した。なお、プロセスガスとして Ar+He 混合ガスを用い、100~1000 ショットだけ堆積した。さらに、得られた粉末を 10^{-3} Pa 以下の真空雰囲気下で熱処理した。得られた粉末を 1.6 MA/m の外部磁場中で配向した後、6.4 MA/m のパルス磁場で着磁し、減磁曲線を VSM で測定した。粉末粒径ならびに結晶構造の評価は加速電圧が 200 V の高分解能 TEM を用いて行った。

実験結果

Fig. 1 に、SiO₂ 粉末上に堆積させた Fe-Co 系ナノ粒子の HR-TEM 像を示した。Fig. 1 より、SiO₂ 粉末上に、5~10 nm の粉末粒径を有する Fe-Co 系ナノ粒子がみられた。このことから、アークプラズマ蒸着法により、SiO₂ 粉末上に分散性よく Fe-Co 系ナノ粒子を作製することができた。この Fe-Co 系ナノ粒子の粉末粒径は、ショット数の増大に伴い大きくなる傾向がみられた。

Fe-Pt 系についても同様の傾向がみられ、10~20 nm 程度の Fe-Pt 系ナノ粒子がアークプラズマ蒸着により得られ、ショット数の増加に伴いその粒径が増大する傾向がみられた。制限視野回折(SAD)により Fe-Pt 系粒子の構造解析を行った結果、熱処理により規則化が進行し、L1₀ FePt 相が出現することが分かった。さらに、この Fe-Pt 系粉末の保磁力は熱処理に伴い増大することが明らかになった。

参考文献

[1]阿川ら, ULVAC TECHNICAL JOURNAL, 65 (2003) 1-5.

謝辞

本研究の一部は、学技術振興機構の戦略的創造研究推進事業 (JST-CREST) ならびに、文部科学省の委託事業である元素戦略磁性材料研究拠点の支援の下で行われました。

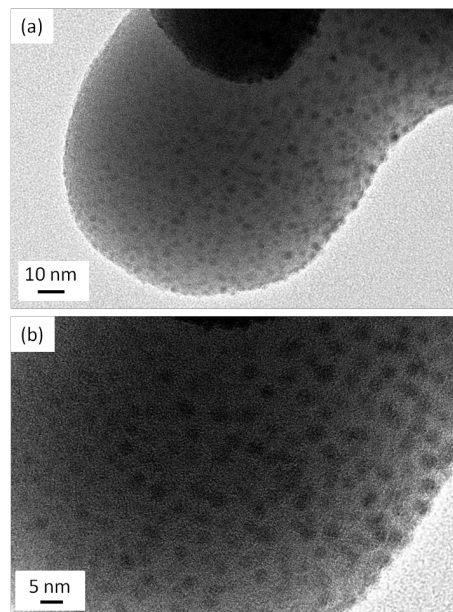


Fig. 1 HR-TEM images of Fe-based nano-particles prepared by arc-plasma deposition.

NdFe₁₂、NdFe₁₂N_x 薄膜の作製とその磁気特性評価

平山悠介、高橋有紀子、宝野和博
(物質・材料研究機構)

Preparation and magnetic properties of NdFe₁₂N_x thin film

Y.Hirayama, Y.K.Takahashi, K.Hono

(The Elements Strategy of Initiative Center for Magnetic Materials, National Institute for Materials Science)

はじめに

R-Fe 系化合物 (R: 希土類元素) には多くの相が存在するが、ThMn₁₂ 相は鉄の含有量が最大であるために、大きな磁化が期待される。また、希土類元素の含有量が少なく、資源の観点からも非常に有用な材料である。薄膜では SmFe₁₂ の合成に成功した例があるが¹⁾、バルクで ThMn₁₂ 構造を有する材料は、R(Fe, M)₁₂ のように Fe の一部を第三元素 M (Ti, Mo, V, W 等) に置換することで ThMn₁₂ 構造を保持できる²⁾。NdFe₁₁Ti は窒素を導入することで一軸異方性を示し、磁化は 1.38 T、異方性磁界は 8.0 T (@300K)、キュリー温度は 740 K であり³⁾、高温では Nd₂Fe₁₄B 磁石に匹敵する可能性を持つ。しかしながら、室温において保磁力は 1 T 以下に留まり、異方性磁界の約 1/10 程度である。高い保磁力を得るためには、保磁力機構の解明が必要不可欠であり、薄膜でのモデル磁石を用いた系統的な実験が求められる。そこで、本研究ではまず第三元素を添加せず、エピタキシャル NdFe₁₂N_x 膜形成を目的として MgO(100) 単結晶基板に NdFe₁₂N_x 膜の形成を試み、その結晶構造と磁気特性を評価した。

実験方法

試料作製には DC マグネトロン同時スパッタ法を用いた。600°C に加熱した MgO(100) 基板に下地層として W(001) をエピタキシャル成長させ、その上に約 70 nm の NdFe₁₂ (at. %) 膜を形成した。その後、15 mtorr の N₂ 雰囲気下、400°C において 1 時間窒化処理を行うことで NdFe₁₂N_x 膜を得た。構造評価には XRD (RIGAKU, SmartLab)、TEM (FEI, TitanG2) を、磁化曲線測定には VSM (Quantum Design, Inc. MPMS SQUID VSM) を用いた。

実験結果

Fig.1(a) に作製した試料の XRD 結果を示す。Fig.1(b) には chi, phi を適切に設定することにより得られた面からの回折ピークを示した。これらのことより、両試料で多少の α -Fe の析出は確認できるものの、 c 軸が MgO(001) 面に垂直であるエピタキシャル NdFe₁₂(N) の作製に成功した。さらに、これらの回折パターンより、格子定数はそれぞれ $a = 0.852$ nm、 $c = 0.480$ nm (NdFe₁₂)、 $a = 0.849$ nm、 $c = 0.492$ nm (NdFe₁₂N_x) と算出され、窒素を導入することで体積が約 1.8% 膨張したことがわかる。磁化測定結果より窒素を導入することにより、容易軸が ab 面から c 軸に変化し、一軸異方性を有する材料であることが確認できた。本発表では、詳細な磁化測定結果、TEM 観察結果も含めて報告する。

参考文献

- 1) Eric E. Fullerton *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **69** (1996) 2438.
- 2) K H. J. Buschow, *J. Appl. Phys.* **63** (1988) 3130.
- 3) Ying-chang Yang *et al.*, *Solid State Commun.* **78** (1991) 317.

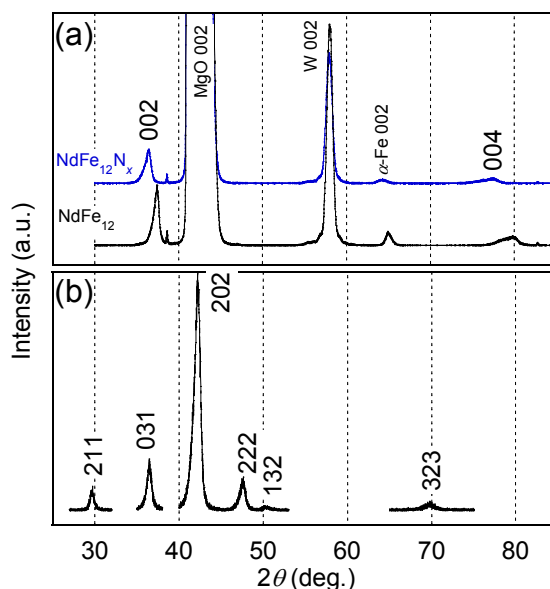


Fig.1 XRD spectra of NdFe₁₂ and NdFe₁₂N_x (a) and obtained by setting the chi and phi appropriately in each plane of NdFe₁₂ film (b).

Coercivity enhancement of bulk hot-deformed Nd-Fe-B magnets by the eutectic grain boundary diffusion process using Nd₆₀Dy₁₀Cu₃₀ alloy

L. H. Liu^{a,b)}, H. Sepehri-Amin^{a)}, T. Akiya^{a)}, T. Ohkubo^{a)}, A. Hattori^{c)}, K. Hioki^{c)}, and K. Hono^{a,b)}

^{a)}National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan

^{b)}Graduate School of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba, Tsukuba 305-8577, Japan

^{c)}Daido Steel Co., LTD, Nagoya 457-8545, Japan

Hot-deformed Nd-Fe-B magnets have high anisotropic microstructure composed of ultrafine grains that is comparable with single domain size of Nd₂Fe₁₄B phase^[1]. Coercivity, as extrinsic property, can be improved via modifications of grain boundary structure or its chemistry^[2,3]. (Nd,Dy)₂Fe₁₄B shell structure that forms after grain boundary diffusion has been considered as the reason of coercivity enhancement^[4]. In this work, we applied low-temperature grain boundary diffusion to bulk hot-deformed Nd-Fe-B magnets using Nd₆₀Dy₁₀Cu₃₀ alloy powder to modify grain boundary composition and to enhance anisotropy field by localizing Dy at surface of Nd₂Fe₁₄B grains.

Hot-deformed magnets with the composition of Nd_{12.9}(Fe,Co)_{bal}B_{5.5}Ga_{0.5} (at.%) in 7×7×5.6 mm³ size were used as the starting materials. The eutectic grain boundary diffusion was carried out by annealing at 650°C with sample coated with Nd₆₀Dy₁₀Cu₃₀ powder. The microstructures of the samples were studied using SEM/FIB (Carl ZEISS 1540EsB), TEM (Titan G2 80-200).

Demagnetization curves of the hot-deformed and diffusion-processed magnets of different heights are shown in Figure 1. The coercivity (μ_0H_c) of 5.6 mm, 5.8 mm, 6.0 mm high samples were enhanced from 1.4 T to 1.91 T, 2.15 T, and 2.26 T after diffusion process, respectively. The large slope of the demagnetization curves of diffusion-processed samples indicated coercivity distribution from surface to center. We find the formation of thicker intergranular phase with higher Dy segregation close to surface than that of the center region. STEM-EDS elemental maps showed micro-scale phase segregation of Nd and Nd-Dy-Cu (Fig.2). Formation of Nd-rich phase and (Nd,Dy)₂Fe₁₄B shell at surface of Nd₂Fe₁₄B grains are the main reasons for coercivity enhancement of diffusion-processed samples. Based on SEM and detailed TEM results, the mechanism of coercivity enhancement of bulk hot-deformed Nd-Fe-B magnets by grain boundary diffusion process will be discussed.

Reference

- [1] R. W. Lee, E. G. Brewer, and N. A. Schaffel, IEEE Trans. Magn. **21**, 1958 (1985).
- [2] H. Nakamura, K. Hirota, M. Shimao, T. Minowa, M. Honshima, IEEE Trans. Magn. **41** (2005), p. 3844
- [3] H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo, T. Nishiuchi, N. Zozawa, S. Hirose and K. Hono, Scripta Mater, **63**, 1124 (2010)

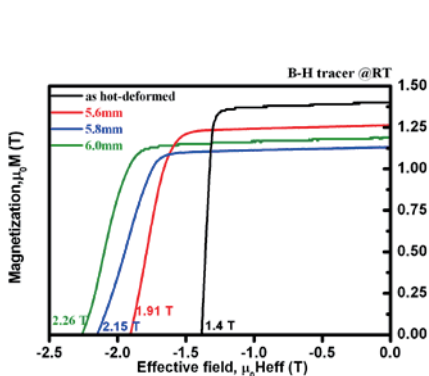


Fig.1 Demagnetization curves of hot-deformed and diffusion-processed magnets

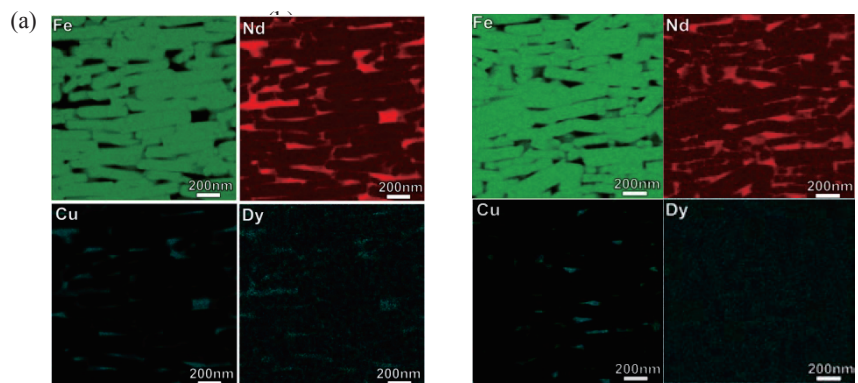


Fig.2 STEM-EDS mapping of surface region (a) and center region (b) of 6.0 mm high Nd-Dy-Cu diffusion-processed sample

Microstructure and Coercivity of Tb₄O₇ Grain Boundary Diffusion Processed Sintered (Nd,Dy)-Fe-B Magnets

U.M.R. Seelam¹, J. Liu², T. Ohkubo¹, H. Nakamura³ and K. Hono^{1,2}

¹Elements Strategy Initiative Center for Magnetic Materials (ESICMM)

National Institute for Materials Science, 1-2-1 Sengen, Tsukuba, Ibaraki, Japan 305-0047

²Graduate School of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba, Tsukuba 305-8571, Japan

³Shin-Etsu Chemical Co. Ltd., Chiyoda, Tokyo 100-0004, Japan

In the grain boundary diffusion (GBD) process of Nd-Fe-B magnets, heavy rare earth elements (HREs) such as Dy and Tb are incorporated preferentially along the grain boundaries, instead of alloying them into the bulk. This results in a dramatic improvement in coercivity without losing remanence, leading to substantial savings in HREs.¹⁻³ However, it is well known that the alloying of Dy to the matrix is required to attain the coercivity higher than 2 T. In this study, a detailed microstructural characterization was carried out on terbium fluoride GBD processed (Nd,Dy)-Fe-B sintered magnets with four different Dy contents in order to understand the combined effect of Dy alloying and Tb GBD process. The nominal Dy compositions of the four base-alloys (prepared by two-alloy method) were 0, 2, 5, and 11 wt.%. Coercivity values of the four magnets before and after GBD process are, 1.2 and 1.9 T, 1.5 and 2.4 T, 2.1 and 3.2 T, and 3.6 and 4.3 T respectively. Microstructure of the four samples was characterized using scanning electron microscopy (SEM), electron probe micro analysis (EPMA), transmission electron microscopy (TEM) and atom probe tomography (APT). Figure 1 shows STEM/EDS mapping of Nd, Dy, Tb and Fe; average concentration (wt.%) of each element in the shells is shown next to it. Figure 2 shows high resolution STEM/EDS mapping of a grain boundary region containing shell. In addition to the Tb and Dy rich shell, a thin Nd-rich grain boundary phase is observed. The concentrations of Tb and Dy in the shell next to the grain boundary phase were estimated from the EDS analysis and correlated with coercivity. The coercivity after the GBD process is in accordance with the increase in the anisotropy field estimated from the concentration of Tb and Dy.

References

- 1) H. Nakamura, K. Hirota, M. Shima, T. Minowa, M. Honshima, IEEE Trans. Magn. 41 (2005) 3844.
- 2) Z. Samardzija, P. McGuinness, M. Soderznik, S. Kobe, M. Sagawa, Mater. Charact. 67 (2012) 27.
- 3) H.S. Amin, T. Ohkubo and K. Hono, Acta Mater. 61 (2013) 1982.

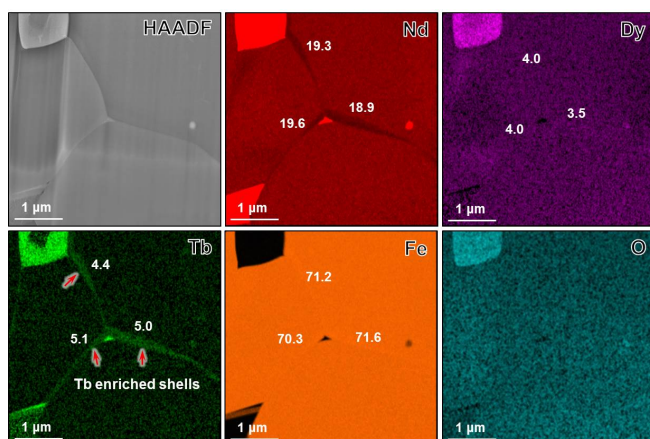


Figure 1. STEM/EDS mapping of Nd-5Dy-Fe-B sintered magnet showing Tb enriched shells

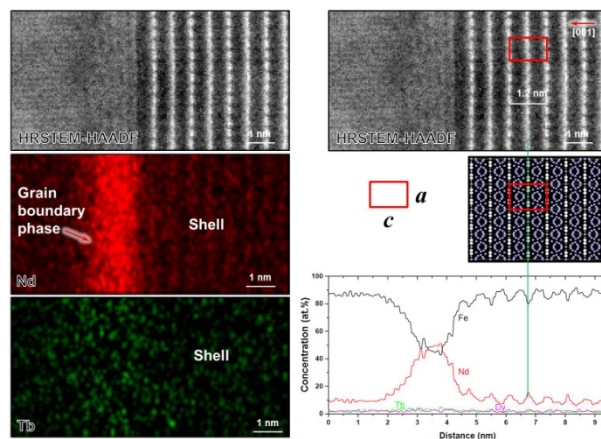


Figure 2. High resolution STEM/EDS mapping of the magnet showing Nd-rich grain boundary phase. Concentrations of Nd, Tb and Dy in a shell very close to the grain boundary were obtained

Nd-Fe-B 永久磁石における粒界相物性の焼結後熱処理温度依存性

保井晃、中村哲也、小谷佳範、深川智機*、西内武司*、広沢哲**
(JASRI/SPring-8、*日立金属、**物材機構)

Temperature dependence of post-sintered annealing on magnetic properties of intergranular phase
in Nd-Fe-B permanent magnet

A. Yasui, T. Nakamura, Y. Kotani, T. Fukagawa*, T. Nishiuchi*, S. Hirose**
(JASRI/SPring-8, *Hitachi Metals, Ltd., **NIMS)

背景

Nd-Fe-B 永久磁石を製造する際に微量の Cu を添加し、焼結後に約 550°C で熱処理（アニーリング）を行うと保磁力が向上することが知られている[1]。これは、Nd/Nd-Cu の共晶反応により、粒界三重点に存在していた Nd-Cu を主とした物質が主相結晶間に薄く均一に広がり、主相結晶粒間の二粒子粒界相が幅約 3 nm に成長することで[2]、二粒子粒界相が磁壁の伝搬を阻害するピンニングサイトとして働くためと考えられている。しかし、最適温度の 550°C を超えた温度でアニーリングした時に保磁力が減少傾向に転じる原因については、粒界相に何らかの変化があることが予想されるが、詳細は明らかになっていない。そこで、軟 X 線磁気円二色性 (MCD) 分光実験を用いて、粒界相における Fe および Nd 磁気モーメントと Cu 濃度を評価することで、アニーリング温度と保磁力および粒界相の物性との相関を調べた。

実験

測定試料は $\text{Nd}_{13.7}\text{Fe}_{78.0}\text{B}_{6.0}\text{Cu}_{0.1}$ 焼結磁石であり、組成分析の結果、O:1.4、C:0.5、Al:0.1、Si:0.1、N:0.1、Mn:0.02、Pr:0.02 (at%) が含まれていることが分かっている。それを石英ガラス管に真空封入し、1 時間アニーリングした後、石英管に封入した状態で外気に暴露し冷却した。アニーリング温度は、500°C、600°C、800°C、1000°C である。実験は SPring-8 BL25SU 電磁石 XMCD 装置を用いて行った。Nd-Fe-B 焼結磁石は粒界破断が支配的であるため、超高真空チャンバー ($\sim 5.0 \times 10^{-7}$ Pa) 内で試料を破断し、その破断面に対し軟 X 線 MCD 測定を行うことで、二粒子粒界相の物性を調べた。

実験結果

Fig. 1 に、 $\text{Nd}_{13.7}\text{Fe}_{78.0}\text{B}_{6.0}\text{Cu}_{0.1}$ 焼結磁石の破断面における $\text{Cu } L_3$ 吸収スペクトルのアニーリング温度依存性を示す。Cu 濃度は 500°C で最大をとり、それ以上のアニーリング温度では減少傾向に転じることが分かった。Fig. 1 の挿入図に示す通り、破断面での保磁力はバルクのそれと同様に最適アニーリング温度である 550°C 付近で最大となり、粒界相の Cu 濃度と保磁力のアニーリング温度依存性の間に正の相関が見出された。

本研究の一部は、文部科学省の委託事業である元素戦略磁性材料研究拠点の支援を受けて行われました。

参考文献

- [1] 秋屋 貴博、加藤 宏朗、宇根 康裕、佐川 真人, 日本金属学会誌 第 76 巻, 36 (2012).
- [2] H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo, T. Shima, K. Hono, Acta Materialia **60**, 819 (2012).

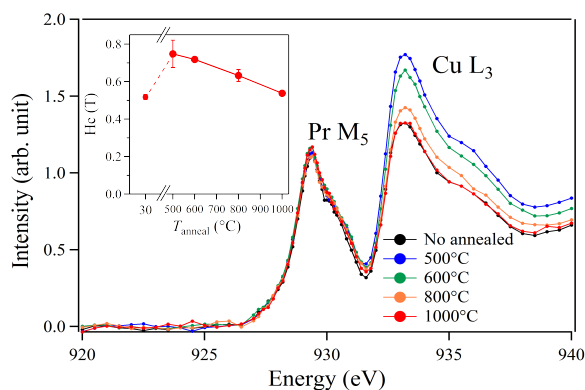


Fig. 1: Annealing temperature dependences of $\text{Cu } L_3$ absorption spectra normalized with $\text{Fe } L_3$ absorption intensities. The inset shows coercivity of Fe-XMCD hysteresis curves measured on the fractured surface. This magnet contains Pr as an impurity.

モータ駆動負荷による Nd-Fe-B 系焼結磁石の減磁評価

池田壮一郎、藤原幸星、森本祐治、竹澤昌晃、梶嶋寿行*
(九工大、*マツダ株式会社)

Evaluation of demagnetization of Nd-Fe-B sintered magnet by motor drive load

S. Ikeda, K. Fujiwara, Y. Morimoto, M. Takezawa, H. Kabashima*
(Kyushu Institute of Technology, *Mazda Motor Corporation)

はじめに

HEV、EV 等に用いられる永久磁石式同期モータの耐久信頼性を確保する上で、使用する磁石の耐減磁性能を正確に把握しておく必要がある。本研究では、Kerr 効果顕微鏡を用いてモータ用途を想定した形状の Nd-Fe-B 系焼結磁石をモータに搭載し、駆動前後の磁区構造変化を観察し、試料の位置による減磁特性の違いを明らかにすることを目的とした。そのために、観察結果に画像処理を施すことで、磁化反転領域を抽出し、各観察箇所における減磁率の算出を行ったので報告する。

実験方法

観察試料は、着磁方向である板厚が薄い Nd-Fe-B 系焼結磁石(幅 35.5 mm、長さ 40.5 mm、厚さ 2.0 mm)で、Dy は添加されておらず保磁力は約 11 kOe である。試料に合わせた研磨治具を作製し、着磁方向と平行な観察面を鏡面研磨した。磁区観察には縦 Kerr 効果顕微鏡を用いた。着磁した試料の残留磁化状態の磁区を観察した後、実際に試料を出力 1.5kW の IPM モータに搭載して 150℃ まで加熱し、モータ駆動を行うことで試料に熱及び減磁界を与えた。その後、室温に戻した状態で再び磁区観察を行った。モータ駆動試験前後の磁区画像を比較し、磁化反転を起こした箇所を抽出し、その面積から減磁率の算出を行った。また、試料の位置による減磁率の違いを評価するために、Fig. 1 に示す(a)中央、(b) (a)と(c)の間、(c)右上角、(d)上端の 4 点をそれぞれ観察し比較した。

実験結果と考察

観察点(a)と(c)の磁化反転位置の観察結果を Fig. 2 と Fig. 3 にそれぞれ示す。図中の色付けを行っている領域が磁化反転を起こしている結晶粒である。Fig. 2 に示す中央において、モータ駆動により、多磁区構造をとらず粒全体で磁化反転する結晶粒が複数箇所を確認できた。磁化反転した部分の面積から減磁率の算出を行うと 18.7% となった。Fig. 3 に示す右上角では、磁化反転した結晶粒が Fig. 2 の場合より多く、減磁率は 40.6% であった。同様に減磁率を算出すると、(b)位置で 19.6%、(d)位置で 29.3% であった。これらの結果より、中央部から角部に近づくにつれて減磁率が高くなり、角部での減磁率は中央の約 2 倍大きくなることが分かった。モータ内の磁石周辺の磁気抵抗は、一様ではなく、磁石の両端部付近が、最も小さい。このため、磁石が受ける減磁界は、中央部よりも端部付近に集中する。よって、この減磁界強度の分布が、試料位置による減磁率の差異を生じさせたものと考えられる。これに加えて、本研究で用いた試料は、板厚が試料長さに比べ非常に薄いために反磁界が大きい。この反磁界は、中央部よりも端部で大きくなる。よって、この反磁界強度の違いが、端部と中央部との減磁率の差を拡大させた可能性があるかと推察する。

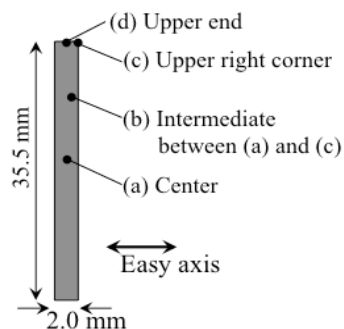


Fig. 1 Observed position.

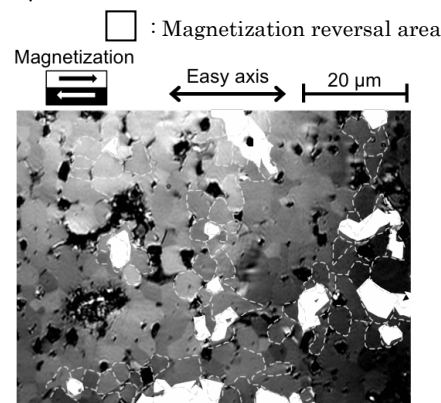


Fig. 2 Image processed magnetic domain image at center.

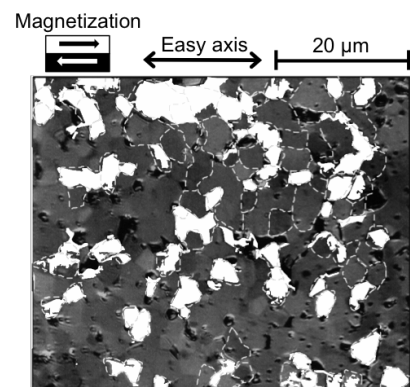


Fig. 3 Image processed magnetic domain image at upper right corner.

Synchrotron radiation analysis of structure and magnetism of grain boundary phase in Nd-Fe-B sintered magnet

T. Nakamura, A. Yasui, W. Ueno, N. Tsuji, T. Ohkubo*, H. Iwai*, T. Akiya*, Y. Kotani, T. Fukagawa**,
T. Nishiuchi**, Y. Gohda***, K. Hono*, and S. Hirosawa*
(JASRI/SPring8, *NIMS, **Hitachi Metals Ltd., ***Univ. of Tokyo)

A high performance Nd-Fe-B permanent magnet has become an indispensable material for electric products, hybrid vehicles, and power generators, which are key technologies for energy sustainability. Associating with problem on the critical materials, improvement in coercivity without reduction of magnetization is intensely required in Dy-free type Nd-Fe-B magnets. Since it has been known that microstructure is essential for permanent magnets in order to increase the coercivity, the microstructure control may, therefore, bring a solution to developing the high performance Dy-free Nd-Fe-B sintered magnet. In a micro-magnetic point of view, a thin-film-like grain boundary (GB) phase existing between neighboring $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ grains is preferred to be paramagnetic so as to prevent reversed magnetic domains from expanding into neighboring grains. Although the GB phase had been believed to be paramagnetic for a long time, the recent study using a three dimensional laser atom probe technique by Sepehri-Amin *et al.* showed convincing results indicating that the amorphous GB phase could be ferromagnetic [1]. Further studies on magnetism of the GB phase, however, are needed to uncover the origin of the coercivity.

In the present work, we have measured X-ray magnetic circular dichroism (XMCD) spectra in a $\text{Nd}_{14.0}\text{Fe}_{79.7}\text{B}_{6.2}\text{Cu}_{0.1}$ sintered magnet using synchrotron soft X-rays at BL25SU of SPring-8 in order to clarify the magnetic state of the GB phase. Since the Nd-Fe-B sintered magnets have a grain-boundary fracturing character, magnetism of the GB is directly investigated by the surface-sensitive XMCD measurement using a total electron yield (TEY) method [2]. The XMCD of the Fe $L_{2,3}$ -edges was measured on the fractured surface which was covered with the GB phase. Applying the magneto optical sum rule [3-5], the apparent Fe magnetic moment was obtained as $1.66 \mu_B$ from the XMCD spectra measured at 30 °C. Since the recorded XMCD signal was composed of those coming from the GB phase and the under-layered $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ main phase, the magnetic moment of $1.66 \mu_B$ was deconvoluted into each contribution on assumption of the probing depth of the TEY ($\lambda_e=1.2 \text{ nm}$) at the Fe $L_{2,3}$ -edges [2] and a thickness of the GB phase ($t_B=3 \text{ nm}$) [1]. As the result of the deconvolution analysis, the Fe magnetic moment of the GB phase was estimated as $1.4 \mu_B$. This value is of about 60 % compared to that of $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ and implies that the GB phase is ferromagnetic. Moreover, the temperature dependence of Fe magnetic moment in Fig. 1, which was obtained from the XMCD spectra, indicated that the Curie temperature of the GB phase was lower than that of the main phase, $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$. The present result, therefore, implies that the coercivity will possibly be improved by forming the GB phase which has the Curie point being lower than the operating temperature.

It was reported that the thin-film-like GB phase grows by post-sintered annealing process [1]. The materials to form the GB phase could be supplied from somewhere like the Nd-rich phase at the triple junction during the annealing process. In order to elucidate the metallurgical phenomena with respect to the constitutional phases, we have investigated the crystal phases in the $\text{Nd}_{14.0}\text{Fe}_{79.7}\text{B}_{6.2}\text{Cu}_{0.1}$ sintered magnet by X-ray diffraction (XRD) experiment up to 1000 °C. High temperature *in-situ* XRD measurements were performed at BL02B2 of SPring-8. In

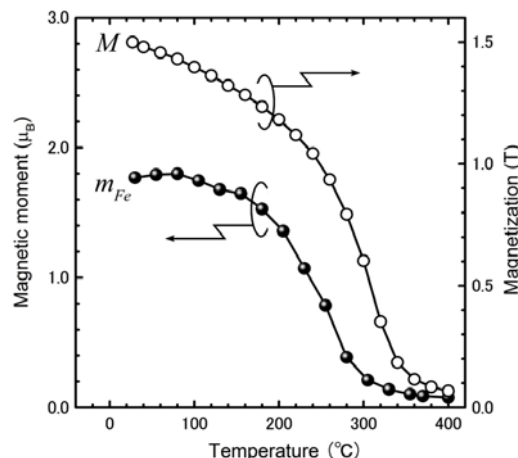


Fig. 1 Temperature dependence of Fe magnetic moments (m_{Fe}) obtained by sum rule analysis of XMCD spectra at the Fe $L_{2,3}$ -edges and a magnetization (M). Both XMCD and magnetization were measured under 1.9 T.

previous studies by means of transmission electron microscopy (TEM) [6, 7], it has been reported that the Nd-rich phase is a mixture of Nd ($P6_3/mmc$), Nd_2O_3 ($P6_3/mmc$), NdO_x ($Fm\bar{3}m$), and small amounts of other compounds, where symbols in parentheses denote the space groups of crystallography. Among them, the Nd-metal phase is expected to relate to the formation of the GB phase because the optimum annealing temperature of 540 °C is very close to the eutectic point of 520 °C in the Cu-Nd system. Fig. 2 shows temperature dependence of XRD patterns with labels denoting crystal phases determined by analysis of the XRD patterns. The Nd-metal phase ($P6_3/mmc$) starts melting at 580 °C (XRD pattern at 580 °C is not shown here), and completely melts at 606 °C. The melting point of the metallic Nd phase in the present experiment is higher than that expected from the eutectic point by 60 ~ 80 °C. This difference of the temperature is explained as that the XRD detects the crystalline Nd-metal unused in the eutectic reaction because the Cu concentration (0.1 at%) is too small to consume all of the crystalline Nd phases (>1 at%). Here, the volume fraction of Nd which exists as Nd metal was estimated from the Rietvelt analysis of XRD pattern. On the other hand, a different Nd phase having cubic crystal symmetry ($Fm\bar{3}m$) was also found in the temperature range between 335 ~ 788 °C. Variation in volume fraction of the cubic and hexagonal phases of Nd was invisible at the eutectic point. The Nd_2O_3 phase remains solid state even at 1000 °C, but shows some phase transitions with respect to crystal symmetries involving $P6_3/mmc$, $Ia\bar{3}$, and $P\bar{3}m1$. Although the mechanism of these phase transitions in the Nd_2O_3 phases is still not clear, the information may be useful in refining the Nd-O phase diagram which is important in elucidation of the microstructural formation mechanism of Nd-Fe-B magnets.

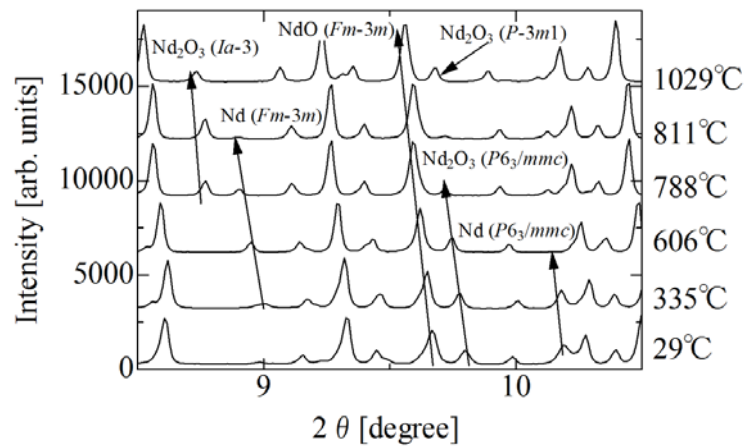


Fig. 2 Temperature dependence of XRD patterns of $Nd_{14.0}Fe_{79.7}B_{6.2}Cu_{0.1}$ sintered magnet. Arrows beside XRD peaks denote trends of shift of peak positions for identified crystalline phases.

Acknowledgements

The authors are grateful to Drs. J. Kim, K. Sugimoto, M. Suzuki, A. Fujiwara, and M. Takata of JASRI, and Dr. H. Sepehri-Amin and T. Abe of NIMS for fruitful discussions. A part of this work is supported by the Elements Strategy Initiative Center for Magnetic Materials under the outsourcing project of MEXT.

References

- [1] H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo, T. Shima, K. Hono, *Acta Mater.* **60**, 819 (2012).
- [2] B. H. Frazer, B. Gilbert, B. R. Sonderegger, and G. De Stasio, *Surf. Sci.* **537**, 161 (2003).
- [3] B. T. Thole, P. Carra, F. Sette, and G. van der Laan, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 1943 (1992).
- [4] P. Carra, B. T. Thole, M. Altarelli, and X. Wang, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 694 (1993).
- [5] C. T. Chen, Y. U. Idzerda, H. -J. Lin, N. V. Smith, G. Meigs, E. Chaban, G. H. Ho, E. Pellegrin, and F. Sette, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 152 (1995).
- [6] J. Fidler, *IEEE Trans. Magn.* **21**, 1955 (1985).
- [7] Mo W, Zhang L, Liu Q, Shan A, Wu J, Komuro M. *Scripta Mater.* **59**, 179 (2008).

Effect of grain size reduction of Nd-Fe-B sintered magnet on temperature coefficient of coercivity.

Y. Une, H. Kubo, T. Mizoguchi, T. Iriyama, M. Sagawa, M. Nakamura^{*}, M. Matsuura^{*}, S. Sugimoto^{*}
(Intermetallics Co., Ltd., ^{*}Tohoku Univ.)

1. Introduction

Grain size reduction technique of Nd-Fe-B sintered magnets is well known process to increase a coercivity without substitution of Dy for Nd. We have been developing ultrafine grained Nd-Fe-B sintered magnets using a helium gas jet-mill which can produce smaller particle size of the powder than a conventional nitrogen gas jet-mill⁽¹⁾. Recently, Nakamura *et al.*⁽²⁾ have reported the development of single crystal powders with particle size of under 0.6 μm using a combination of HDDR (hydrogenation-disproportionation-desorption-recombination), hydrogen decrepitation, and the helium gas jet-mill processes. In the present study, we report magnetic properties of ultrafine-grained Nd-Fe-B sintered magnets with grain size of under 1 μm .

2. Experiment

The starting material in this study is the strip-cast (SC) alloy with the nominal composition of $\text{Nd}_{27.2}\text{Pr}_{4.23}\text{FeB}_{0.96}\text{Cu}_{0.1}\text{Al}_{0.24}\text{Co}_{0.95}\text{Fe}_{\text{bal.}}$ (wt%). We prepared 3 kinds of powders with particle sizes of 3, 1 and <1 μm . The 3 μm powders and the 1 μm powders were produced by using the nitrogen gas jet-mill and the helium gas jet-mill, respectively. For the <1 μm powders, the SC alloys were performed the hydrogen decrepitation followed by HDDR treatment. Subsequently, the HDDR-treated alloys were crushed into ultrafine powders by using the helium gas jet-mill⁽²⁾. Each powder was filling into a carbon mold and subsequently was aligned with pulse magnetic fields of 5T. Then each powder in the molds was sintered at the optimum temperature in vacuum and annealed at optimum temperature. Magnetic properties were measured by B-H loop tracer from room temperature up to 180°C.

3. Results

Fig.1 shows the variation of the temperature coefficient of the coercivity (β) of the Nd-Fe-B sintered magnet vs a function of temperature interval ($T-23^\circ\text{C}$). The temperature coefficient of the HcJ (β) of the magnets improves from -0.55 to -0.47 %/K between 23 and 180°C with decreasing the particle size of the starting powders from 3 to under 1 μm .

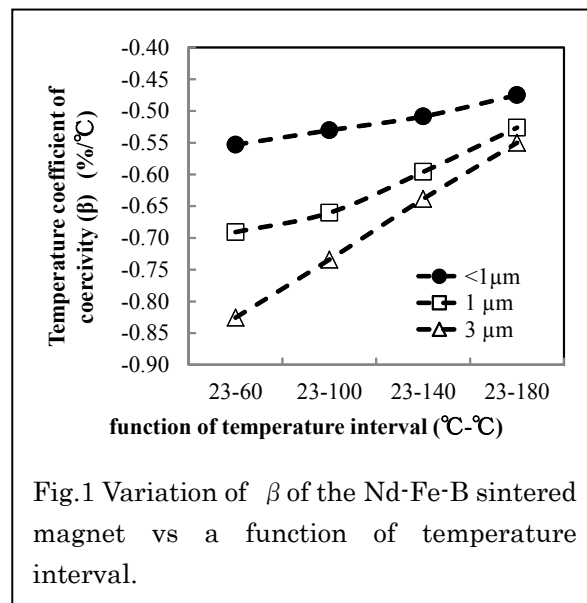


Fig.1 Variation of β of the Nd-Fe-B sintered magnet vs a function of temperature interval.

Reference

- 1) Y. Une and M. Sagawa, J. Jpn. Inst. Met. **76**, 12(2012) (in Japanese).
- 2) M. Nakamura *et al.*, Appl Phys. Lett. **103**, 022404 (2013).

This study was supported by the "Future Pioneering Projects / Development of magnetic material technology for high-efficiency motors" from the New Energy and Industrial Technology Development Organization (NEDO) of Japan.

Low eutectic temperature alloy diffusion process for hot-deformed Nd-Fe-B magnet

T. Akiya¹, H. Sepheri-Amin¹, J. Liu^{1,2}, L. Liu^{1,2}, T. Ohkubo¹, K. Hioki³, A. Hattori³, K. Hono^{1,2}

¹Elements Strategy Initiative Center for Magnetic Materials, National Institute for Materials Science

²Graduate School of Pure and Applied Science, University of Tsukuba

³Daido Steel Co. Ltd.

Nd-Fe-B magnets have been studied for more than thirty years. One of main research issues of Nd-Fe-B magnet is low thermal stability due to its low Curie temperature ($T_c \sim 310^\circ\text{C}$). To improve the thermal stability, coercivity (H_c) enhancement is a possible way. For example, H_c of 3 T at room temperature (RT) is required for hybrid or pure electric vehicle and wind turbine generator to prevent a thermal demagnetization.

Coercivity of permanent magnet relates to the magnetocrystalline anisotropy field, H_a . The H_a of $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ phase is about 7 T at RT and the value is theoretical maximum limit of coercivity. However, the coercivity of Nd-Fe-B magnet produced by conventional mass production route is only 1 T without Dy. It is accepted that the surface defects on $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ particle and inclusions causes the degradation of coercivity, because the nucleation of reversed magnetic domain may occur at these sites. Here, $(\text{Nd,Dy})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ phase possesses a higher magnetocrystalline anisotropy field than $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$. Therefore, Dy-rich shell structure formed by grain boundary (GB) diffusion process enhances the coercivity effectively with minimum amount of Dy for sintered magnet¹⁾.

It is empirically known that the coercivity of Nd-Fe-B magnet can be increased by refinement of $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ crystals without Dy. A Nd-Fe-B sintered magnet with $H_c \sim 2$ T without Dy had been reported by Intermetallics Co.²⁾. They prepared fine $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ powder with about 1 μm diameter by He-gas jet-milling technique. However, it is difficult to obtain sub-micron sized powder by jet-milling or any mechanical pulverization technique while preventing oxidation of the powders. Ultrafine $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ crystal can be obtained by Hydrogenation-Decreepitation-Desorption-Recombination (HDDR) technique or die up setting process of rapidly quenched Nd-Fe-B alloy and then hot-deform processed magnet. These crystal sizes are one order of magnitude smaller than that of sintered magnet, about 300 nm in diameter particle (HDDR) and 300 nm in width and 50 nm in height of platelet shaped grain (hot-deformed), respectively. However, the reported coercivity of ultra-fine grain sized Nd-Fe-B HDDR powders and hot-deformed magnets is only around 1.5 T. This value is lower than expected from a trend of sintered Nd-Fe-B magnet, $H_c \sim 2.5$ T at 300 nm in diameter³⁾.

We have studied the reasons of the low coercivity in three kind of Nd-Fe-B magnets, sintered^{4,5)}, HDDR processed powder⁶⁾ and hot deformed Nd-Fe-B magnet⁷⁾. In any case, the coercivity of Nd-Fe-B magnet relates to structure and chemistry of GB. It have been found that the GB of high coercivity magnet is thicker and contains lower Fe concentration⁷⁾. Fe-rich GB phase shows ferromagnetic property⁵⁾, therefore, such ferromagnetic GB causes the magnetic coupling between $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ grains. Thus, magnetic isolation between $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ grains by nonmagnetic GB layer is critical point to enhance the coercivity.

We demonstrated that the low eutectic alloy diffusion technique is suitable way to modify the structure/chemistry of the grain boundary phase and enhance the coercivity in HDDR powder and hot-deformed magnet. This technique was independently reported by Sepehri-Amin *et al.*⁶⁾ and Mishima *et al.*⁸⁾ in the HDDR processed magnet powders. A low eutectic temperature alloy, such as Nd-Cu, Nd-Al and so on, infiltrates into GB rapidly in HDDR processed powder and hot-deformed magnet and thicker GB layer is formed between $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ grains without significant grain growth. While, in sintered magnet, Cu diffuses into GB rapidly but the microstructure remains almost unchanged. Thus, the effect of Nd-Cu diffusion process is small in sintered Nd-Fe-B magnet.

Currently, we are focusing on the low eutectic temperature alloy diffusion process for hot deformed magnet. We have observed a coercivity enhancement from 1.5 T to 2.3 T using Nd-Cu eutectic alloy⁹⁾, and 1.6 T to 2.6 T using

Nd₆₀Dy₂₀Cu₂₀ near-eutectic alloy¹⁰⁾ for small hot-deformed magnet with 1 mm thickness. While, remanence reduction of about 20 % was also observed due to infiltration of much amount of nonmagnetic material into magnet. After these works, we applied the technique to larger hot-deformed magnet with 5.6 mm thickness, and we confirmed that the infiltration effect occurs almost homogeneously and the coercivity enhancement occurs same as small specimen¹¹⁾. In addition, we observed sample expansion to mainly easy direction. The amount of diffusion alloy and volume expansion of magnet was almost comparable. So, we tried an expansion constraint method during diffusion process to prevent the excess diffusion of Nd-Cu phase¹²⁾. As a result, we observed that the diffusion processed hot deformed magnet with constraint possesses higher remanence ($M_r = 1.36$ T) than simply diffusion processed one ($M_r = 1.27$ T). One of the reasons can be estimated that the diffusion processed magnet under constraint maintains the higher crystallographic texture than that of as hot-deformed and diffusion processed magnet without applying expansion constraint.

Temperature dependence of H_c and energy density $[(BH)_{\max}]$ of hot-deformed magnet and the samples that were Nd-Cu diffusion processed with and without an expansion constraint are shown in figure. For comparison, the energy densities of commercial 4% Dy and 8% Dy sintered magnets are also shown¹³⁾. The temperature dependence of coercivity of Nd-Cu diffusion processed magnet is much better than original hot-deformed magnet and 4% Dy sintered magnet. This data suggests that the effect of ultrafine grain Nd₂Fe₁₄B crystals appears by magnetic isolation in high temperature. In addition, the $(BH)_{\max}$ of expansion constraint processed hot-deformed magnet is 358 kJ/m³ at RT and 191 kJ/m³ at 200 °C. This high-temperature property is slightly higher than that of Dy 4% sintered magnet.

We modified the GB of hot-deformed magnet by Nd-Cu diffusion technique. The amount of infiltrated nonmagnetic Nd-Cu into hot-deformed magnet was controlled by expansion constraint diffusion technique. As a result, we could obtain high coercivity as same as 4% Dy containing sintered magnet with high remanence. Obtained magnet possesses higher maximum energy product than 4% Dy containing sintered magnet at 200°C without Dy. The next step of this work is to realize a magnet with $H_c > 0.8$ T and $(BH)_{\max} > 150$ kJ/m³ at 200 °C.

References

- 1) H. Nakamura, K. Hirota, M. Shimao, T. Miniwa, M. Honshima, IEEE Trans. Magn. 41 (2005) 3844.
- 2) Y. Une, M. Sagawa, J. Japan. Inst. Metals, 76 (2012) 12-16.
- 3) K. Hono, H. Sepehri-Amin, Scripta Mater. 67 (2012) 503.
- 4) W.F. Li, T. Ohkubo, K. Hono, M. Sagawa, J. Magn. Magn. Mater. 321 (2009) 1100.
- 5) H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo, T. Shima, K. Hono, Acta Mater. 60 (2012) 819.
- 6) H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo, T. Nishiuchi, S. Hirokawa, K. Hono, Scripta Mater. 63 (2010) 1124.
- 7) J. Liu, H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo, K. Hioki, A. Hattori, T. Schrefl, K. Hono, Acta Mater. 61 (2013) 5387.
- 8) C. Mishima, K. Noguchi, M. Yamazaki, H. Mitari, Y. Honkura. Proceedings of the 21st Workshop on Rare-Earth Permanent Magnets and their Applications, Bled, 29 August 2010, p. 253.
- 9) H. Sepehri-Amin, J. Liu, T. Ohkubo, K. Hioki, K. Hono, Scripta Mater. 69 (2013) 647.
- 10) H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo, S. Nagashima, M. Yano, T. Shoji, A. Kato, T. Schrefl, K. Hono, Acta Mater. 61 (2013) 6622.
- 11) T. Akiya, J. Liu, H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo, K. Hioki, A. Hattori, K. Hono, J. Appl. Phys. 115 (2014) 17A766.
- 12) T. Akiya, J. Liu, H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo, K. Hioki, A. Hattori, K. Hono, Scripta Mater. 81 (2014) 48.
- 13) <http://www.hitachi-metals.co.jp/products/auto/el/pdf/nmx.pdf>

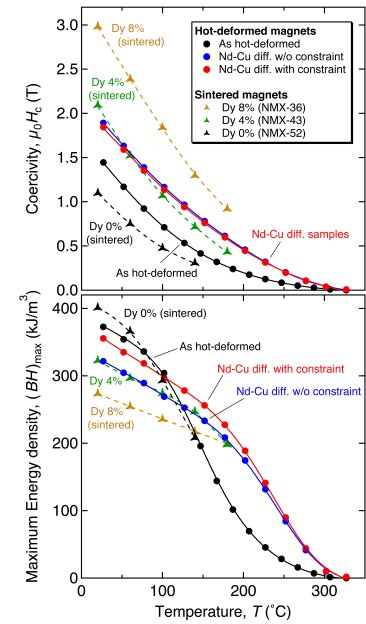


Fig. Temperature dependence of coercivity and maximum energy density.

Magnetic domain structure observation of Dy free hot-deformed Nd-Fe-B magnets

Keiko Hioki, Atsushi Hattori, Takahiko Iriyama
(Daido Steel Co., Ltd.)

Nd-Fe-B magnets have a fine microstructure due to their unique fabrication procedure, which gives them 1/10 finer crystal grain size (100~500nm) compared to sintered magnets and produces both better coercivity and reduced Dy content⁽¹⁾. However, the coercivity is not as high as expected from the grain size. To further improve the magnetic properties of this type of magnet, it is important to clarify the reason for the higher coercivity of this magnet. As the first step, we investigated the magnetic domain pattern structure of this magnet in detail.

A hot-deformed Dy-free Nd-Fe-B magnet with the composition of $\text{Nd}_{13.5}\text{-Co}_{3.82}\text{-B}_{5.64}\text{-Ga}_{0.57}\text{-Fe}_{\text{bal}}$ (at.%) was prepared. Its remanence and coercivity were 1.35 T and 1353 kA/m (17.0 kOe), respectively. Observations for this sample were performed from two directions, perpendicular to the c-axis and almost parallel to the c-axis. In this study, the observations of the magnetic domains in the thermally magnetized state and in the magnetization process were performed. These observations were performed using not only Magnetic Force Microscope (MFM) and Atomic Force Microscope (AFM) but also Low Voltage Scanning Electron Microscope (LV-SEM) at the same areas, in order to investigate the relationship between the microstructure and magnetic domain pattern.

Figure 1(a) shows MFM images for the c-plane and (b) shows the illustration of magnetic domain pattern in the same area. Contours of grains observed using LV-SEM are overlaid in the figure. These figures reveal the following: 1. the sample consists of single domain and multi-domain grains, 2. a group of grains form a maze pattern, 3. multi-domain grains exist uniformly throughout the powder, and 4. relatively large grains at the edges of the maze pattern are multi-domain grains. In Fig. 1(c), magnetic domains looking at the plane parallel to the c-axis exhibited the stripe patterns parallel to the c-axis with various widths, some of which are interrupted by the equiaxial grains at powder boundaries. From these observations, the 3D magnetic domain structure of hot-deformed magnet is as portrayed in this figure.

Based on these observations, the magnetic domain structure of hot-deformed Nd-Fe-B magnets will be discussed.

Reference

- 1) K. Hioki, A. Hattori, and, T. Iriyama, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **38**, 79-82(2014)

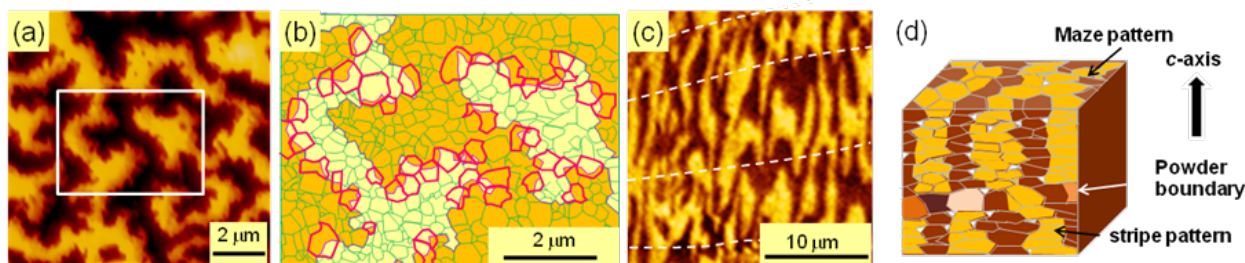


Fig. 1. (a)(c) MFM images in the thermally demagnetized state. Looking at the planes (a) perpendicular and (c) parallel to the c-axis, respectively. Dotted lines indicate powder boundaries. (b) Illustration of magnetic domain pattern shown in Fig. 1(a) in the white square. Contours of grains observed using LV-SEM are overlaid. Multi-domain grains are shown in bold lines. (d) Illustrations of three dimensional magnetic domain structure of hot-deformed magnet in the thermally demagnetized state.

Observation of magnetic domain reversals in Nd-Fe-B hot-deformed and infiltrated magnets by SANS

M. Yano¹, T. Ueno², K. Saito³, K. Ono³, M. Harada⁴, A. Manabe¹, T. Shoji¹, N. Sakuma¹, A. Kato¹, and U. Keiderling⁵

¹ Advanced Material Engineering Div., Toyota Motor Corporation, Susono 410-1193, Japan

² Elements Strategy Initiative Center for Magnetic Materials, National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan

³ High Energy Accelerator Research Organization (KEK), Tsukuba 305-0801, Japan

⁴ Toyota Central R&D Labs. Inc., Nagakute 480-1192, Japan

⁵ Helmholtz-Zentrum Berlin für Materialien und Energie, Berlin 14109, Germany

Nd-Fe-B magnet in motors in hybrid or electric vehicles requires Dy to increase its coercivity to maintain their magnetization in an operating temperature. However, Dy reduces magnetization in the magnet due to anti-parallel coupling of the magnetic moment between Dy and Fe [1]. To understand the coercivity mechanism in the Nd-Fe-B magnet to satisfy both high coercivity and magnetization, we have studied microstructures and magnetic domains in the magnet.

In general, the coercivity of Nd-Fe-B magnets can be enhanced by reducing the grain size of Nd₂Fe₁₄B phase but it was found that only the grain size reduction cannot realize enough coercivity because of the reversal domain connections during demagnetizing procedures [2]. To reveal factors for higher coercivity, it is important to show the relation among magnetic properties, microstructures and magnetic domain reversals by using several kinds of methods because the microstructures and the magnetic domains are correlated to the coercivity.

Small-angle neutron scattering (SANS) is one of the complementary method to two-dimensional observations using microscope and it has a possibility to quantify the three-dimensional and multi-scaled microstructures and magnetic domains. The SANS enables us to investigate the bulk magnets using high transmission neutrons. Moreover, SANS can be performed under various sample environments of magnetic fields or temperatures.

In order to clarify the effect of grain isolation in nano-crystalline Nd-Fe-B magnets, we have prepared samples with different grain isolation and have performed SANS measurement to observe the difference in microstructures and magnetic domain reversals in these samples.

The hot-deformed Nd-Fe-B magnets have been made from rapidly quenched melt-spun ribbons. The melt-spun ribbons were crushed into a few hundred μm and then sintered at 873 K under a pressure of 100 MPa. The sintered bulk was hot-deformed with height reduction of about 80% to develop a (001) texture of phase. The hot-deformed magnet was soaked into the molten Re-Cu (Re=Pr or Nd) alloys to infiltrate into the grain boundaries to isolate grains [3]. The magnetic properties of as-deformed and Pr-Cu infiltrated samples are shown in Fig. 1 (a).

The SANS was performed at the V4 beamline of the research reactor BER-II at Helmholtz-Zentrum Berlin (HZB), Germany. The samples were fully magnetized along the easy magnetization axis ([001]-axis) at 10 T in advance. The sample temperature was set to 300 K. Neutron beam with the wavelength of 1.147 nm was used. Incoming beam direction was perpendicular to the [001]-axis and the irradiated area at the sample was set to 8 mm in diameter by the neutron window. The typical q range was 0.013–0.165 nm^{-1} with a sample-detector distance of 15.76 m. External magnetic fields of ± 5 T were applied along the [001]-axis to obtain magnetic field-dependent SANS patterns.

The magnetic field dependences of intensity $I(q)$ along the [001]-perpendicular direction for as-deformed and Pr-Cu infiltrated samples are shown in Fig. 1 (b). Note that the scattering vector q and the dimension in real space d can be converted using Bragg equation, $d = 2\pi/q$. The variation of the intensities in a specific q -range corresponds to the variation of the microstructure or magnetic domains of the dimension d . As shown in Fig. 1 (b), the intensities increase by applying the reversal field for as-deformed sample and become maximum at the coercive field of $\mu_0 H_c = -1.46$ T. For

the infiltrated sample, intensities along the [001]-perpendicular direction also increase by applying the reversal field, as observed in the as-deformed sample, but the intensity difference is smaller. To magnify the magnetic field dependence as a function of the q or d , the intensity difference from that at 5 T are shown in Fig. 1 (c). The intensity difference becomes maximum at the coercive field of each sample. The intensity of smaller d range is dominant for as-deformed sample although the intensity of larger d range is dominant for infiltrated sample. These results indicate that the single particle reversal is dominant in the infiltrated sample implying that the larger ratio of the isolated grains than that of the interacting grains in the [001]-perpendicular direction, as compared to the as-deformed one.

These SANS results will be compared with the results of Nd-Cu infiltrated samples or direct magnetic domain observation by microscope.

Reference

- [1] J. F. Herbst and W. B. Yelon, J. Appl. Phys. **57**, 2343 (1985).
- [2] M. Yano *et al.*, IEEE Trans. Mag., **48**, 2804 (2012).
- [3] H. Sepehri-Amin *et al.*, Acta Materia., **61**, 6622 (2013).

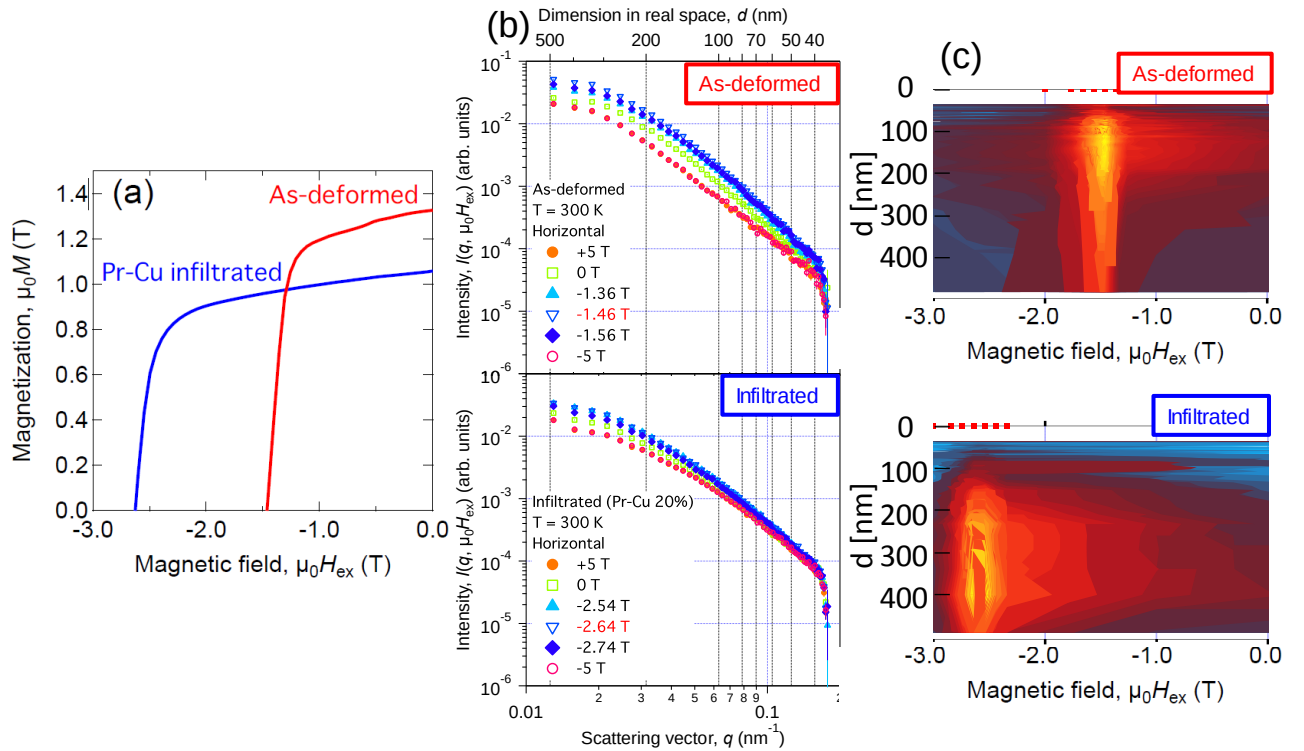


Fig. 1 (a) Demagnetization curves for as-deformed and Pr-Cu infiltrated Nd-Fe-B nano-crystalline magnets. (b) Magnetic field dependence of SANS intensities of as-deformed and infiltrated magnets. (c) Intensity difference between fully magnetized state and each demagnetization field. These intensity maps can be produced by (b).

Large-Scale Micromagnetic Simulation of Reversal Processes in Nd-Fe-B Magnets

A. Furuya¹, J. Fujisaki¹, K. Shimizu¹, T. Tanaka¹, T. Ataka¹, Y. Uehara¹, H. Oshima², T. Ohkubo³,
S. Hirose³ and K. Hono³

¹Fujitsu Limited, Kawasaki 211-8588, Japan

²Fujitsu Laboratories Limited, Atsugi 243-0197, Japan

³National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan

Introduction:

Nd-Fe-B sintered magnets which have high maximum energy product and coercivity are widely used in electric motors and generators. To improve their properties, theoretical elucidation of the reversal process is demanded. In particular, the relationship between coercivity and their microscopic structures is an important topic for the improvement both from the scientific and technological points of view [1, 2]. To understand coercivity mechanism, theoretical studies based on micromagnetics have been performed to analyze the reversal process in Nd-Fe-B magnets. However, the edge length of numerical mesh element has to be smaller than the exchange length (1.7nm in Nd-Fe-B phase) in order to avoid “artificial pinning” in the simulation. Typically, grain size of sintered Nd-Fe-B magnets is from 100nm to 10μm. To simulate the pinning and nucleation process in the realistic grain structures, therefore, the number of finite elements involved in the numerical calculations exceeds a huge value of the order of millions. In this study, large-scale micromagnetic simulation is performed on K computer [3]. The effects of microstructure on the coercivity are numerically investigated.

Calculation methods:

We consider the following micromagnetic energy E_{tot} to analyze the magnetization in the simplified microstructure of Nd-Fe-B magnets,

$$E_{tot} = E_{Zeeman} + E_{exc} + E_{ani} + E_d, \quad (1)$$

where, E_{Zeeman} , E_{exc} , E_{ani} and E_d are Zeeman energy, exchange energy, anisotropy energy and magneto-static energy, respectively. The magnetization dynamics of the reversal processes are simulated by calculating the Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) equation,

$$(1 + \alpha^2) \frac{\partial \mathbf{m}}{\partial t} = -\gamma (\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{eff}) - \gamma \alpha \mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{eff}), \quad (2)$$

where, $\mathbf{m}$, γ and α are the normalized magnetization vector, the gyro-magnetic ratio, and the Gilbert damping factor. The effective field $\mathbf{H}_{eff}$ is derived from partial derivative of magnetization energies. The spatial distribution of the magnetization vector is numerically divided to the elements of the unstructured mesh which is commonly used in finite element method. To handle the domain wall motion and nucleation of the reverse domains, we used a small mesh size(1nm) and adapted the domain decomposition method by using METIS library, which divided the entire model in the small region and each region was calculated by the separate CPUs [4].

Simulations:

The simulation model is shown in Fig.1. This model is composed of 27 grains whose diameter is 50 nm. The grains are three-dimensionally aligned and the width of grain boundary is 2 nm. The total number of mesh model is about 5 million. We here label the state of a magnetic vector which points to positive y-direction “up”, and the opposite state “down”. As shown in Fig.1, all the initial magnetic vectors are down except for those in the grain of the front side of the top layer, which are initially in the up state. The simulated reversal process in the case of the alignment $\alpha=1$ is shown in Fig.2. Due to the inclusion of the soft magnetic layers in the grain boundaries, the reversal domain easily propagates into neighboring grains. The simulation result at the alignment $\alpha=0.5$ is also shown in Fig.3.

This result shows that the grain boundaries pin the domain wall of initial reverse domain and the nucleation occurs at another grains. The reversal mechanism depends on the microstructure and material parameters of the grain boundaries. In the presentation, the parameter dependences of the reversal processes and coercivity will be reported in detail.

Acknowledgment

This research used computational resources of the K computer provided by the RIKEN Advanced Institute for Computational Science through the HPCI System Research project (Project ID: hp120086).

References

- 1) Y. Matsuura; Proc. of the 22nd REPM (2012) pp.147-150
- 2) H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo, T. Shima, and K. Hono, Acta Mater. 60, 819 (2012).
- 3) <http://www.aics.riken.jp/en/kconmuputer/>, Homepage of RIKEN Advanced Institute for Computatonal Science
- 4) G. Karypis and V. Kumar. SIAM Journal on Scientific Computing, 20 (1999) 359

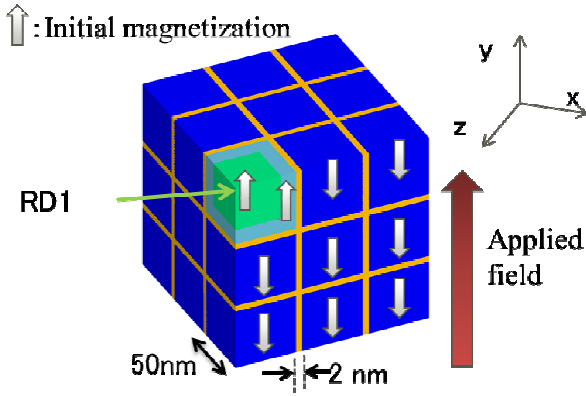


Fig. 1 Simulation Model of multi-grain structure

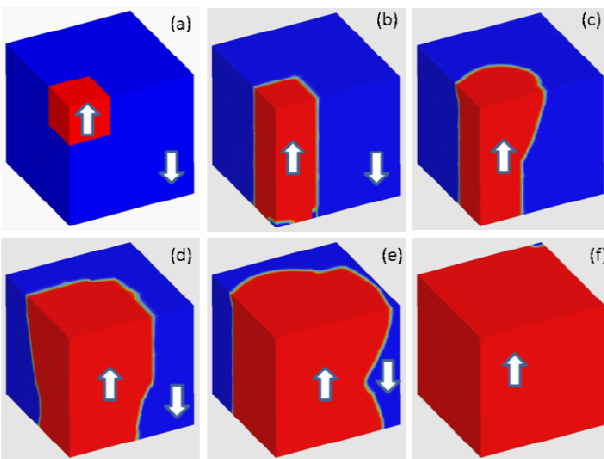


Fig. 2 Contour plot of m_z in the case of alignment parameter $\alpha=1$.

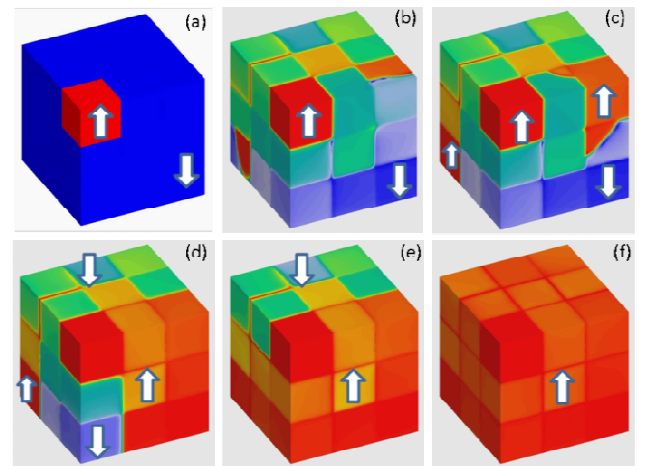


Fig. 3 Contour plot of m_z in the case of alignment parameter $\alpha=0.5$

Anisotropy inducement mechanism in hydrogen disproportionation desorption recombination (HDDR) processed Nd-Fe-B powders

H. Sepehri-Amin¹, T. Ohkubo¹, K. Hono¹, K. Güth², and O. Gutfleisch^{2,3}

¹Elements Strategy Initiative Center for Magnetic Materials, NIMS, Tsukuba, Japan

²Fraunhofer ISC Projektgruppe IWKS, Germany

³Materialwissenschaft, Technische Universität Darmstadt, Germany

Introduction

The hydrogenation-disproportionation-desorption-recombination (HDDR) process is an attractive and unique method for producing anisotropic nanocrystalline Nd-Fe-B powders. In order to develop highly textured Nd-Fe-B powders, HDDR process parameters need to be carefully chosen and controlled [1]. Although lots of investigations have been carried out to understand the mechanism of the anisotropy development in HDDR powders [1-3], some questions still remain. In this work, the microstructures of Nd-Fe-B powders that were HD processed at different hydrogen pressure ($P_{H_2}^{HD}$) were investigated to fully clarify the mechanism of the anisotropic microstructure evolution.

Experimental

Dynamic hydrogenation disproportionation (HD) desorption recombination (DR) process was carried out on $Nd_{12.8}Fe_{80.1}B_{6.6}Ga_{0.3}Nb_{0.2}$ alloy powders at different HD hydrogen pressure, $P_{H_2}^{HD} = 30$ kPa and 100 kPa. The microstructures of the samples in early stages of the HD process, a fully HD process, and an early DR process were investigated using SEM/FIB (Carl Zeiss 1540EsB), TEM (Titan G2 80-200), and a locally built laser-assisted three dimensional atom probe (3DAP) to characterize the memory sites responsible for the texture development.

Results

A high remanent magnetization of 1.43 T was obtained for the fully HDDR processed powder with $P_{H_2}^{HD} = 30$ kPa, indicating a strong [001] crystallographic texture. However, $P_{H_2}^{HD} = 100$ kPa led to weakly textured Nd-Fe-B powders with a remanent magnetization of 0.89 T.

TEM observations from early HD processed powder with $P_{H_2}^{HD} = 30$ kPa showed that the Fe_2B phase has a direct crystallographic orientation relationship with the initial $Nd_2Fe_{14}B$ grains, i.e. $[420]_{Fe_2B} \parallel [211]_{Nd_2Fe_{14}B}$ and $(00\bar{2})_{Fe_2B} \parallel (\bar{1}11)_{Nd_2Fe_{14}B}$. Energy filtered (EF)-TEM and 3DAP results obtained from a fully HD processed sample showed boron not only in the Fe_2B phase but also at the $NdH_2/\alpha-Fe$ interfaces in both weakly and highly textured samples. High resolution STEM-HAADF image and nano-beam diffraction analysis from $NdH_2/\alpha-Fe$ interfaces showed that boron enrichment at these interfaces does not make a separate phase, such as iron boride. However, there is boron enrichment more in Fe grain of the $NdH_2/\alpha-Fe$ interface in nano-scale. Fig. 1(a) shows EF-TEM maps of B and Nd for the fully HD processed sample with $P_{H_2}^{HD} = 30$ kPa. Bright field (BF)-TEM images obtained from the fully HD processed samples with different $P_{H_2}^{HD}$ showed that the Fe_2B regions in both

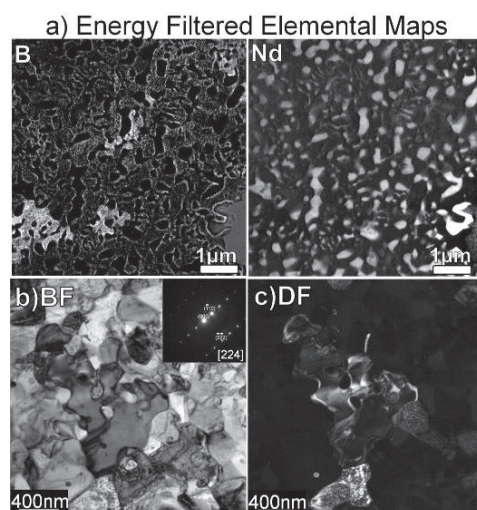


Fig. 1: (a) Energy filtered B and Nd maps of fully HD processed sample at $P_{H_2}^{HD}=30$ kPa. (b) BF and (c) DF TEM images from the same sample indicating well textured Fe_2B grains. SADP obtained from a Fe_2B grain is shown in inset of (b).

weakly and highly textured samples comprise of several small Fe_2B grains. Fig. 1 (b) and (c) shows BF and dark field (DF)-TEM images obtained from fully HD processed $P_{\text{H}_2}^{\text{HD}}=30$ kPa sample. The DF-TEM image shows that the Fe_2B sub-grains in boride region of fully HD processed $P_{\text{H}_2}^{\text{HD}} = 30$ kPa sample is strongly textured. Fig. 2 (a) shows BF-TEM image taken from the sample fully HD processed at $P_{\text{H}_2}^{\text{HD}} = 100$ kPa. Superimposed EF-TEM maps of Nd (red), Fe (Blue), and B (green), obtained from the same region as Fig. 2(a), is shown in Fig. 2 (b). By comparing Fig. 2 (a) and (b), NdH_2 , $\alpha\text{-Fe}$, and Fe_2B phases can be distinguished. Selected area diffraction patterns obtained from different Fe_2B grains in boride area are shown in Fig. 2(c), indicating that the Fe_2B grains in the boride area are not well aligned in the sample fully HD processed at $P_{\text{H}_2}^{\text{HD}} = 100$ kPa. Orientation relationship study of $P_{\text{H}_2}^{\text{HD}} = 30$ kPa sample at early DR processed stage showed that recombined $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ grains have direct orientation relationship with the remaining Fe_2B phase from HD process. In addition, 3D SEM tomography obtained from 3D serial sectioning of BSE images from $P_{\text{H}_2}^{\text{HD}} = 30$ kPa sample at very early stage of DR process showed that the recombined $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ grains nucleate at the interface of $\text{Fe}_2\text{B}/\text{NdH}_2$ grains and grow through the interface of $\text{NdH}_2/\alpha\text{-Fe}$ grains.

These microstructure investigations indicate that the highly aligned Fe_2B grains act as memory sites for the development of the texture in the sample HD processed at $P_{\text{H}_2}^{\text{HD}} = 30$ kPa, as shown schematically in Fig. 3, consistent with the previously proposed texture memory effect (TME) model. Importantly, it can now be shown that the recombined $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ phase nucleates at the interface of Fe_2B with NdH_2 phase and grow through the interface of $\text{NdH}_2/\alpha\text{-Fe}$ interfaces and boron segregated at the $\text{NdH}_2/\alpha\text{-Fe}$ interface acts as a boron source for the growth of the recombined $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ grains during DR process.

Reference

- [1] O. Gutfleisch et al. IEEE Trans. Magn. 39 (2003) 2926.
- [2] T. Tomida et al. Acta Mater. 47 (1999) 875.
- [3] Y. Honkura et al. JMMM 290-291 (2005) 1282.

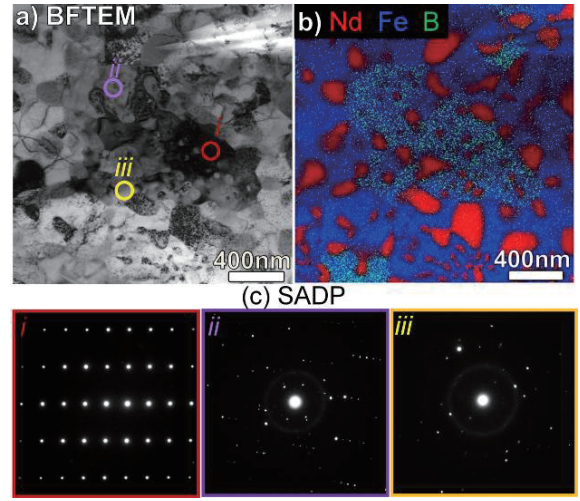


Fig. 2: (a) Bright field TEM image and (b) superimposed energy filtered Nd, Fe, and B maps of fully HD processed sample at $P_{\text{H}_2}=100\text{kPa}$. (c) Selected area diffraction patterns obtained from different Fe_2B sub-grains in boride region.

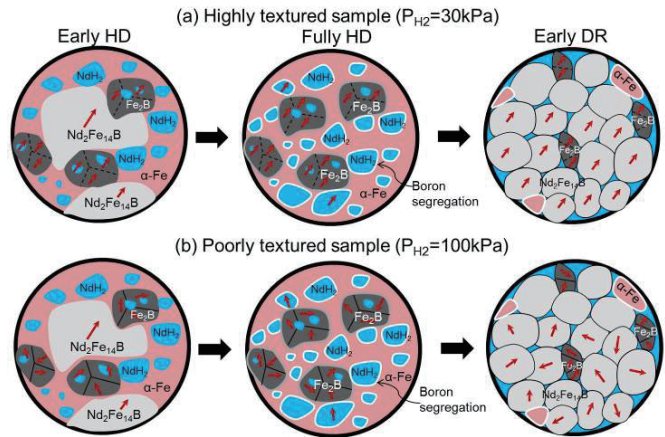


Fig. 3: Schematic illustration of microstructure evolution of HDDR processed sample with (a) $P_{\text{H}_2}^{\text{HD}} = 30$ kPa (b) $P_{\text{H}_2}^{\text{HD}} = 100$ kPa. This figure shows that in the highly textured powder, highly aligned Fe_2B grains act as memory sites and remembering the crystallographic orientation of initial $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ grains and transferring the same orientation to the recombined $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ grains.

低炭素鋼の冷間圧延・回復過程における硬度と磁気特性変化

伊藤 史也, 武川 幸平, 村上 武, 菊池 弘昭
(岩手大学)

Magnetic properties and hardness changes on cold rolled low carbon steel under recovery process
Fumiya Ito, Kohei Takekawa, Takeshi Murakami and Hiroaki Kikuchi
(Iwate University)

1. 緒言

橋梁・高速道路などの社会基盤構造物の経年劣化が問題となっている。構造物の安全性・信頼性の確保のために、高精度、信頼性の高い非破壊検査技術の確立が求められている。構造物の多くには強磁性材料である鋼が使用されており、材料の内部組織変化が磁気特性や硬度などの機械特性に影響を与えることから、磁気的非破壊評価が有効であると考えられる¹⁾。磁気特性と機械特性の相関については多くの検討がなされているが^{2), 3)}, その定量的な対応関係については不明な点もある。そこで本研究では、磁気的非破壊評価を実用化する上で重要な磁気特性と硬度との定量的関係について明らかにするため、低炭素鋼(S15C)を試料として用い、それらを冷間圧延および熱処理することで内部組織を変化させ、磁気特性と硬度を評価した。

2. 実験方法

試料には低炭素鋼 S15C を用いた。はじめ試料に圧延率 0, 5, 10, 40% で冷間圧延を施し、それぞれの試料に対し熱処理前後で試料の組織の分析と磁気特性の評価、及び硬度測定を行った。試料の内部組織観察には EBSD を用いた。磁気特性の評価は磁気ヒステリシスループの計測から保磁力を求め、測定時には励磁方向を変化させた。圧延方向を 0° とし 0~180° の範囲で変化させた。熱処理温度は 600°C, 熱処理時間は 1, 3, 5, 10, 15, 25, 40 分とした。硬度測定はビッカース硬さ試験を用いた。

3. 実験結果

Fig. 1 は熱処理前の試料について保磁力とビッカース硬度を圧延率に対してプロットしたグラフである。圧延率の増加に伴って保磁力と硬度は増加する。一般に冷間圧延により格子欠陥である転位が増加する。この転位が磁壁のピンニングサイトとして働くので保磁力は増加する。また、増加した転位は互いに相互作用し合い、転位同士の移動を妨げるので、硬度は増加する。このことから保磁力と硬度は良い相関を示す。Fig. 2 は圧延率 40% の試料において、真空中 600°C で熱処理を施した時の各熱処理時間における保磁力とビッカース硬度の変化を示した図である。保磁力は熱処理時間初期に大幅に低下している。一方、硬度は 20 分程度までの変化は小さく、保磁力と硬度の挙動は異なっていることが確認される。圧延した試料は冷間圧延後、格子欠陥の蓄積により自由エネルギーの高い状態にある。これを原子の拡散が十分に起こる高温で熱処理をすると、自由エネルギーを減少させるように転位の消滅や再配列、すなわち、回復が起こる。回復過程における転位の消滅や再配列は保磁力の低下に寄与するが、硬度に対しては影響を及ぼさず、ここでは、保磁力と硬度とは相関を持たない。

参考文献

- 1) H. Krommüller, *Int. J. Nondestruct. Testing*, Vol. 3, p. 315, 1972.
- 2) D. C. Jiles, *Introduction to Magnetism and Magnetic Materials*, Chapman & Hall, London UK, 1991.
- 3) S. Takahashi, J. Echigoya, and Z. Motoki, *J. Appl. Phys.*, Vol. 87, p. 805, 2000.

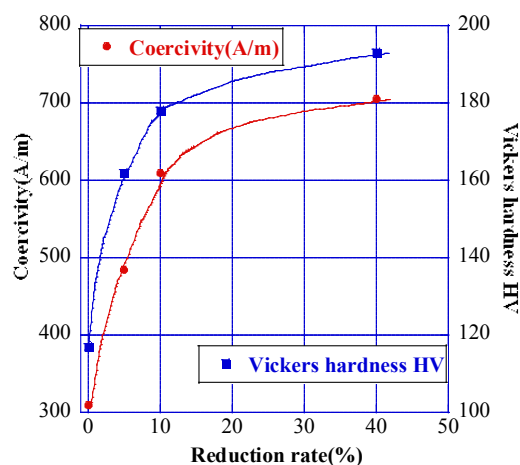


Fig.1 Coercivity and Vickers hardness of each reduction rate on as-rolled specimen.

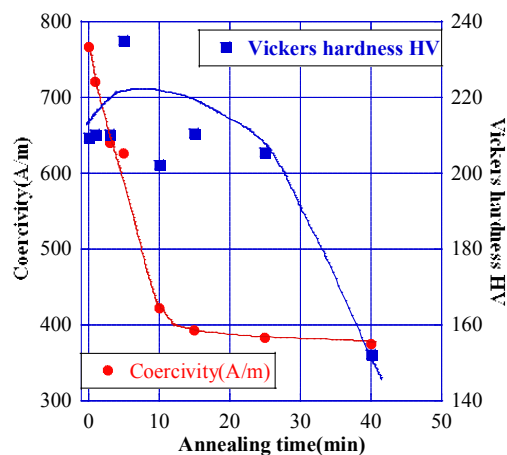


Fig.2 Coercivity and Vickers hardness of each annealing time on 40% rolled specimen.

Nano-Granular In Gap Magnetic Sensor を使用した厚さ測定

小澤哲也、増子英明、渥美紘一、薮上信、戸塚巡*、小山恵史*、早坂淳一**、若生直樹**、荒井賢一**
(東北学院大学、*大同特殊鋼、**電磁材料研究所)

Measurement of Thickness Using Nano-Granular In Gap Magnetic Sensor

T. Ozawa, H. Mashiko, K. Atsumi, S. Yabukami, J. Totsuka*, S. Koyama*, J. Hayasaka**, N. Wako**, K.I. Arai**
(Tohoku Gakuin University, *Daido Steel Co., Ltd, **Research Institute for Electromagnetic Materials)

はじめに

渦電流探傷は渦電流によって生じる磁束を計測する方法を原理としているため、探傷する表面の電気伝導率の影響を受ける。アルミニウムの表面にきれいな塗装膜を形成する方法としてアルマイト処理がある。アルマイト自体は酸化物であり渦電流が流れないため、深部にある電気伝導性がよい部分にて渦電流が生じることになる。そこで渦電流探傷を利用することで、アルマイトの膜厚測定に成功したことを報告する。

実験方法

磁気センサとしては Nano-Granular In Gap Magnetic Sensor (以後、略して GIGS¹⁾)を使用した。GIGS はナノグラニューラ-TMR フィルムをヨーク対で挟み込んだ構造の磁界センサであり、センサ幅が数十 μm 程度で高い空間分解能が得られるものである。GIGS は、磁界を加えると抵抗が減少する特性であり、15 Oe を加えたときの変化率は $70 \Omega/\text{Oe}$ である。装置の構成を Fig. 1 に示す。バイアスコイルは GIGS 磁界センサに 15 Oe の直流バイアス磁界を加えるために使用する。渦電流探傷面に交流磁界を加えるために使用する励磁コイルは直径 2 mm のパーマロイに 30 ターンのコイルを巻きつけたものである。励磁コイルは、アルマイト表面に対して垂直に励磁する。GIGS で検出された磁界強度は、ロックインアンプを用いて直列接続された抵抗における電圧降下の値の変化として計測する。

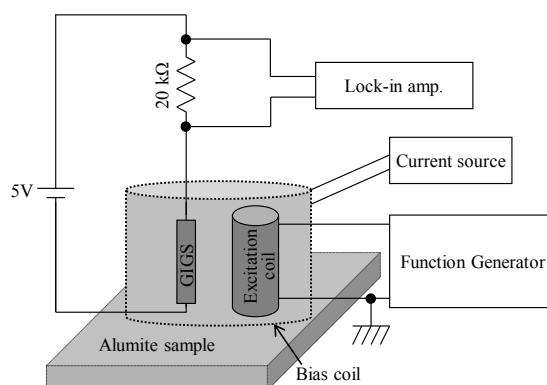


Fig. 1 Measurement configuration

実験結果

Fig. 2 は、サンプルとして用いたアルマイト処理済のアルミニウム板である。電界処理時間によって塗装の濃度が変化することがわかる。Fig. 3 は、周波数 1 kHz の励磁磁界をアルマイト処理済のアルミニウム板に加えたとき、GIGS に直列接続されている抵抗で生じる電圧降下の交流成分の実効値である。膜厚の変化に対して電圧降下が変化していることがわかり、アルマイトの膜厚測定方法として利用できることがわかる。

参考文献

- 1) M. Naoe et al., J. Magn. Soc. Jpn., 35, 11-16 (2011)

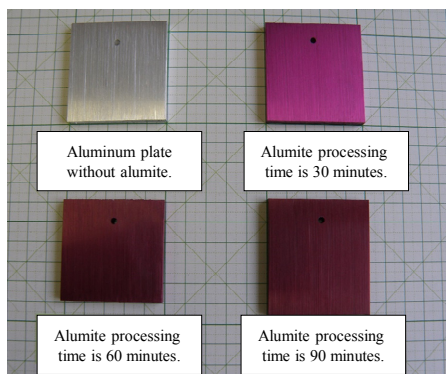


Fig. 2 Photograph of Alumite samples

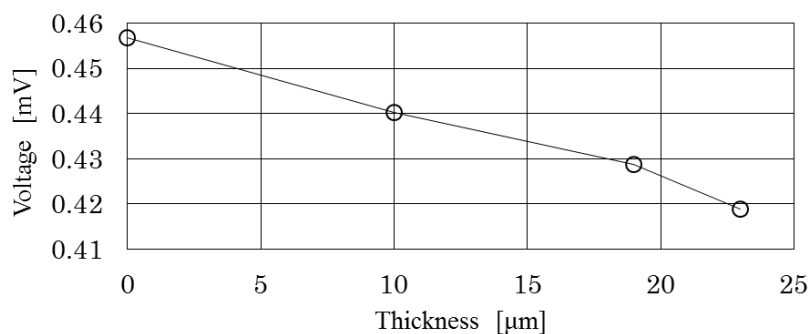


Fig. 3 Relationship between Alumite thickness and detected voltage

保温材下配管外面欠陥の磁氣的検査装置の開発

原 拓也, 春日 基志, 堺 健司, 紀和 利彦, 塚田 啓二
(岡山大学)

Development of a magnetic inspection apparatus for detection of corrosion under insulation.

Takuya Hara, Motoshi Kasuga, Kenji Sakai, Toshihiko Kiwa, and Keiji Tsukada (Okayama University)

はじめに

現在, 日本の石油コンビナートで用いられている保温材被覆配管は, 50 年以上使用されているものが多く, 老朽から漏洩事故が年々増加している. 配管の漏洩は, 工場の運用に深刻な影響を与えるため定期的な検査を行い, 欠陥の早期発見が必要である. 一般的な配管の非破壊検査は超音波や磁気を用いた方法が確立されているが, リフトオフや磁性体である外装板などの影響から, 保温材下配管に対する非破壊検査法はまだ確立されていない. 破壊検査は, 外装板や保温材を剥ぎ取る必要があり, 多くのコストや時間, また破壊による疲労などが懸念されるため, 定期的な検査には不向きである. そこで, 本研究では保温材下配管を対象とした, パルスリモートフィールド探傷法での非破壊検査装置の開発を行った.

実験方法

本研究で設計した実験システムについて説明する. 図 1 はシステムの構成図である. 本システムは, リモートフィールド探傷法とパルス渦電流法を組み合わせたパルスリモートフィールド探傷法を基に設計した. 本システムの構成要素は, MR センサ, 印加コイル, 発振器, データ取得システムである. 本システムは, 非破壊かつ配管使用中の欠陥検出を可能にするため, 印加コイル・検出素子共に配管外部に設置している点が通常のリモートフィールド探傷法とは異なっている. 検出方法は, パルス渦電流法に類似しているが, 印加コイルを用いて試験サンプルに交流磁場を印加し, 伝播して発生する渦電流に伴って変化する磁場の平行成分を計測し欠陥検出を行っている. 試験サンプルは, 欠陥のない正常管, 中心に腐食欠陥を想定した減肉 50%の人工スリット欠陥を有するパイプ A, 減肉 25%を有するパイプ B の三種類である. 今回は, 中央前後 20mm 間隔で 11 点分の測定を行い, 本システムでの欠陥検出が可能であることを検証した.

実験結果

初めに, 保温材下配管の非破壊検査が困難な原因の 1 つである外装板による影響を調べるために, 外装板を取り外し, 保温材のみの状態および外装板をつけた状態での実験を行った. パルス渦電流法では, 検査対象内部の情報が波形の減衰部分に現れた. 図 2 は, 欠陥上での外装板の影響を比較した結果である. 検出信号は, 減衰率の変化を見やすくするため, ピーク値での規格化を行った. 図 2 の検出信号から, 正常管と欠陥パイプとの間に保温材のみ・外装板込みで減衰率に違いがあることが分かる. 以上から外装板がある場合においても, 欠陥検出が可能であることが分かった. また, 正常管と欠陥パイプの検出信号を 3D 等高線にマッピングしたデータも作成し, 欠陥パイプと正常管において違いが出ていることも確認した. 以上から, 設計した本実験システムは, 保温材下配管における欠陥検出が可能であることが分かった.

参考文献

Keiji Tsukada and Toshihiko Kiwa, "Magnetic property mapping system for analyzing three-dimensional magnetic components," Review of Scientific Instrument, vol.77, No.6, pp. 063703-063703-6, Jun 2006

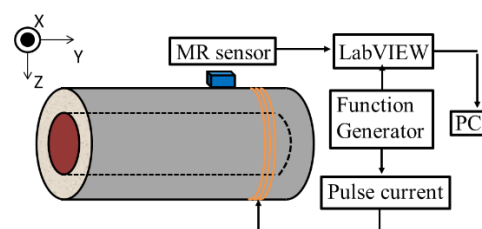
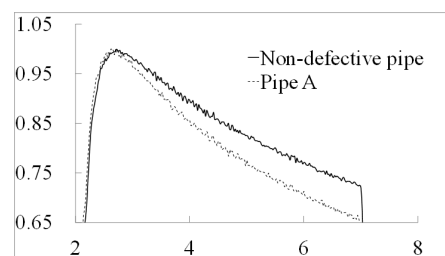
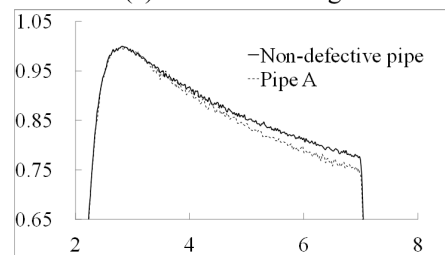


Fig.1 Measuring system



(a) Without cladding



(b) Including cladding

Fig.2 Detection signal at the defective point

TMR センサを用いた裏面欠陥の漏洩磁束探傷検査

志賀 啓秀、塚本 有哉、堺 健司、紀和 利彦、西川 卓男*、塚田 啓二
(岡山大学、*コニカミノルタ(株))

Detection of back-side defect by magnetic flux leakage method using TMR sensor

K.Shiga,Y.Tsukamoto,K.Sakai,T.Kiwa,T.Nishikawa*,K.Tsukada

(Okayama Univ.,*Konica Minolta,Inc.)

研究背景

発電所や各種プラントなどの構造物で使用されている鋼板は内部を液体やガスといった流体が通るため裏面に欠陥が生じやすいため、欠陥を早期に検出する非破壊検査が必要である。放射線透過検査や超音波探傷検査がよく用いられているが、熟練者が必要であったり安全性の確保が難しかったりといった問題がある。そこで本研究では次世代の凡用高感度磁気センサとして期待されているトンネル型磁気抵抗素子¹⁾を用いて漏洩磁束探傷検査法により鋼板の裏面欠陥を正確かつ迅速に検出する非破壊検査装置の開発を行った。

装置構成

開発した非破壊検査装置はFig.1のように構成されており、発振器から発生させた交流信号を交流電流源で増幅させ、励起コイルに流す。コイルに巻かれた鉄心と測定試料である鋼板に磁気回路が形成される。測定試料の内部や裏面に欠陥が存在すると磁束が迂回するため空气中に迂回した磁束をTMRセンサで検出し、ロックインアンプで位相検波することで欠陥を検出する。

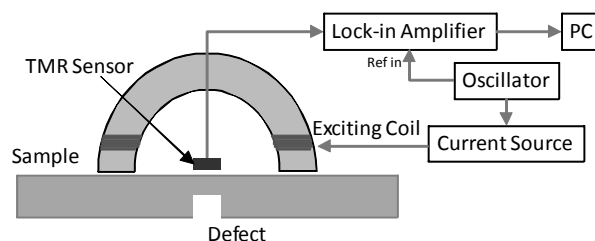


Fig.1 Measurement system of back-side

測定結果

試料には厚さ 8.6 mm の鋼板の裏面の中心に円形の欠陥を入れたものを用いており、欠陥径 Φ と欠陥深さ d が異なる試料を欠陥周辺 $20 \times 20 \text{ mm}^2$ を走査した。解析方法にはロックインアンプによって取得された磁場強度 B と位相 θ を式(1)に代入することで位相成分を考慮した磁場強度 B' が得られ $\lambda=10^\circ, 20^\circ \dots 180^\circ$ と変化させることで欠陥検出に最適な画像化を行った²⁾。

$$B' = B \sin(\theta + \lambda) \quad (1)$$

裏面欠陥形状 $\Phi=6 \text{ mm}$, $d=6 \text{ mm}$ 印加周波数 10 Hz のときの磁場強度 B のみのマッピング図、位相を考慮した磁場強度 $B'(\lambda=130^\circ)$ のマッピング図を Fig.2 に示す。比較すると磁場強度のみのマッピング図より位相を考慮した図の方が欠陥が明瞭になった。次に周波数別による $\Phi=6 \text{ mm}$, $d=4 \text{ mm}$ のときのマッピング図を Fig.3 に示す。印加周波数 5 Hz の方が 50 Hz より欠陥が明瞭的になっていることがわかる。よって最適な周波数と λ を選ぶことで裏面欠陥を検出することができた。

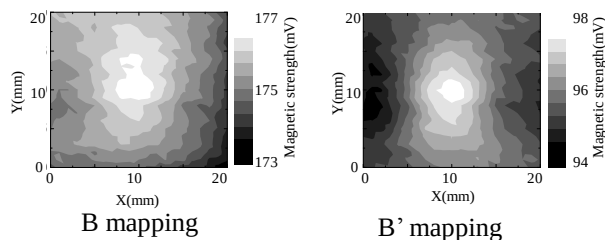


Fig.2 Two dimensional mapping of B and B'

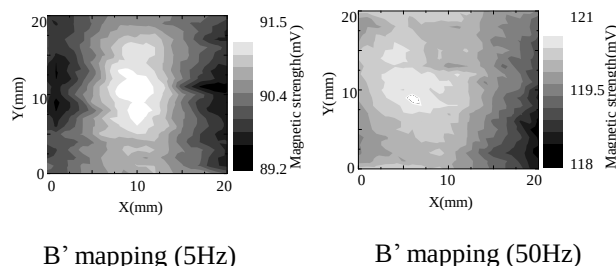


Fig.3 Two dimensional mapping at frequency of 5 Hz and 50 Hz

参考文献

- 1) 西川卓男,他,強磁性トンネル接合を用いた高感度生体磁気センサの開発,平成 25 年 9 月 18 日応用物理学会シンポジウム 18p-C15-5
- 2) Keiji Tsukada, et al.,NDT&E International, Vol. 43,pp.323-328(2010)

渦電流センサによる SUS304 鋼管レーザ溶接継手の内部欠陥検出評価

*矢崎 耕平^{1,2}, 杉村 佳奈子², 曾根原 誠², 佐藤 敏郎², 島津 進¹

(¹高島産業株式会社, ²信州大学)

Evaluation on internal defect detection for laser welding joint on SUS304 pipe using by eddy current sensor

K. Yazaki^{1,2}, K. Sugimura², M. Sonehara², T. Sato², S. Shimadu¹

(¹Takashima Sangyo Co., Ltd., ²Shinshu University)

はじめに

レーザの出力不足により生じる溶接継手の内部未溶接欠陥は、破損の原因となり得るため、医療部品では特に非破壊による全数検査が望まれている。筆者らは、Fig. 1 に示す構造の渦電流センサを用いて SUS304 鋼管溶接継手の内部未溶接欠陥の検出を検討している¹⁾。SUS304 鋼管は、加工履歴によって磁化特性が変化するため、センサの設計、試作に先立ち、その物性値を明確にしたので報告する。

実験方法

SUS304 鋼管(手島精管(株)製)をファイバーレーザ(IPG Photonics 製)を用いて Fig. 2 の条件で溶接し、溶接部の磁化特性と組織を評価した。磁化測定用の試料は Fig. 2 のように研削で切り出し、振動試料型磁力計(VSM, 理研電子(株)製; BHV-55)により静磁化曲線を測定し、そこから最大比磁化率を求めた。切り出す溶接部のサイズは、最も溶接幅が広がるレーザ溶接出力 150 W のサイズに合わせて $410 \mu\text{m} \pm 10 \mu\text{m}$ とし、VSM の印加磁界は Fig. 1 の渦電流センサの励磁方向と同様に SUS304 鋼管の軸方向とした。また、径方向に破断した溶接部をエッチングしてオプトデジタルマイクロスコブ(オリンパス(株)製; DSX500)により組織観察を行った。

実験結果

Fig. 3 に各出力で溶接した溶接部の最大比磁化率を、Fig. 4 に組織観察写真を示す。Fig. 3 より、レーザ溶接出力が 120 ~ 150 [W]において最大比磁化率はほぼ一定であるが、レーザ溶接出力が 105 W になると最大比磁化率が 3 倍ほど高くなった。また、Fig. 4 からレーザ溶接出力 135 W までは内部まで十分に溶接されているのに対し、レーザ溶接出力 105 W では内部が十分に溶接されておらず、溶接された部分の組織はオーステナイト相であるのに対し、未溶接部分には加工誘起マルテンサイト相が認められる。このことから、レーザ溶接出力 105 W では磁化測定サンプル内部に未溶接部、マルテンサイト相が多いため磁化が高くなったと考えられる。

以上の結果から、レーザ出力が低下した際に生じる内部未溶接欠陥は、十分に溶接されたものと比較して比磁化率が高くなり、空隙を有するため、渦電流センサによる欠陥検出が可能であると考えられる。当日は、試作した渦電流センサの欠陥検出性について報告する。

参考文献

1) K. Sugimura, et al.: 2014 Annual Conf. FMS IEEEJ (2014).

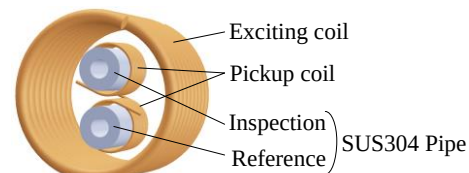


Fig. 1 Eddy current sensor

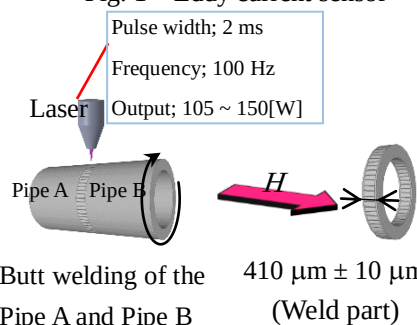


Fig. 2 Manufacture of magnetization measurement sample in laser welding joint of SUS304 pipe

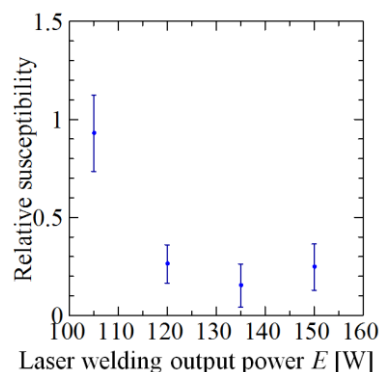


Fig. 3 Relation between laser welding output power and relative susceptibility in laser welding joint of SUS304 pipe

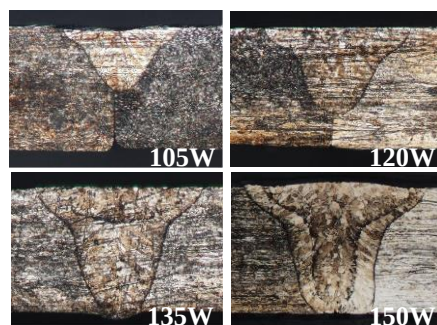


Fig. 4 Micrograph of weld part in laser welding joint of SUS304 pipe

Bi フェライトの磁気応答特性の評価

山口明啓¹、山本敏寛¹、内海裕一¹、中嶋誠二²、藤沢浩訓²

(¹兵庫県立大学 高度研、²兵庫県立大学 工学研究科)

Characterization of magnetic and optical response in a single crystalline Bi-Ferrite

A. Yamaguchi¹, T. Yamamoto¹, Y. Utsumi¹, S. Nakashima², H. Fujisawa²

(¹LASTI, Univ. of Hyogo, ²Grad. Sch. Eng. Univ. of Hyogo)

はじめに

マルチフェロイック材料は、強誘電特性と磁気特性を併せ持つ材料である。強誘電体の有する高誘電率、自発分極反転特性、圧電特性、電気光学効果、音響光学効果など様々な特性と磁氣的応答特性が相関を持って出現することから、基礎物性の研究だけではなく、不揮発性メモリやアクチュエーター等の応用が注目されている。数あるマルチフェロイック材料の中で、本研究ではBi フェライト(BiFeO₃)に注目した。バルク Bi フェライトは、空間群 R3c の結晶構造を有し、ネール温度 370°C、キュリー温度 850°C と室温に比べて十分に高く、室温で強誘電性と反強磁性が共存している系である。薄膜では、スピンキャントによる弱磁性が報告されている物質である。本研究では、Bi フェライト単結晶薄膜の音響・磁気応答特性を評価する。

実験方法

マグネトロンスパッタを用いて Bi フェライト薄膜を作製した。結晶構造の評価は、X 線回折によって行い、単結晶化していることを確認した。マイクロカー磁気光学測定ならびに分光光学透過率と分光反射率スペクトル測定を行った。音響特性を測定するために、微細加工を施し、その応答特性を測定した。

実験結果と考察

結晶面(100)に対する Bi フェライト単結晶の分光透過率 $T(\lambda)$ と分光反射率 $R(\lambda)$ のスペクトルを図 1 に示す。 λ は光の波長である。図 1 から吸収係数 $a(\lambda)$ を求め、光子エネルギー E について $\{\alpha(E)E\}^2$ をプロットした (図 2)。その結果、本研究で用いる Bi フェライトのバンドギャップは、約 2.64 eV であることが分かった。この値は、先行研究とほぼ一致する結果であると考えられる。^{1,2)}

講演では、微細加工技術を用いた電極構造を用いた音響特性評価等についても報告を行う。

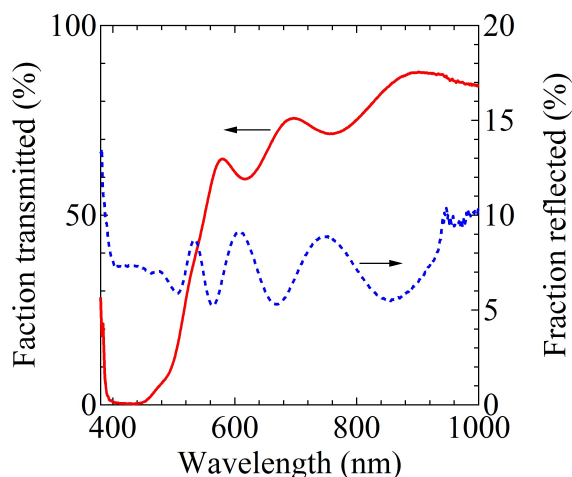


図 1 分光透過率 $T(\lambda)$ と分光反射率 $R(\lambda)$ スペクトル。

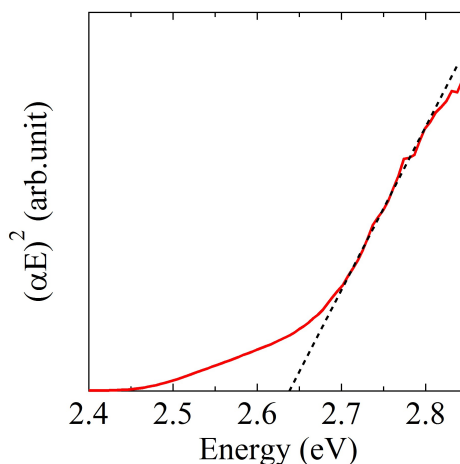


図 2 $\{\alpha(E)E\}^2$ の光エネルギー依存性。

参考文献

- 1) S. R. Basu *et al.*, Appl. Phys. Lett. **92**, 091905 (2008); P. Chen *et al.*, Appl. Phys. Lett. **96**, 131907 (2010).
- 2) J. M. Park, F. Gotoda, T. Kanashima, M. Okuyama and S. Nakashima, J. Kor. Phys. Soc. **59**, 2537 (2011).

Y 型フェライトの作製と特性評価

寺岡 拓人

劉 小晰

(信州大学)

Preparation and characterization of Y-type ferrite

Takuto Teraoka

Xiaoxi Liu

(Shinshu university)

・はじめに

近年、マルチフェロイック物質と呼ばれる強磁性と強誘電性を併せ持つ物質が注目を集めている。本研究では、らせん状のスピンを持つことから、マルチフェロイック物質として期待されている Y 型フェライト 1) について、その薄膜の作製及び特性評価を行った。本研究により Y 型フェライト薄膜を作製し、マルチフェロイック物質として応用することが出来れば、磁界によって電気分極を操作し、電界によって磁化を操作できるというその性質から、大容量かつ低消費電力な新規なメモリデバイスが実現できる可能性がある。

・実験方法

本研究で用いた試料は、まず有機溶媒に金属の有機化合物を溶かした塗布型材料を用いて、Pt 下地 20 nm をスパッタした SiO₂ 基板上に滴下しスピコートにより薄膜を成膜した後、電気炉を用いて熱処理を行い結晶化させるという手法で作製した。スピコートを用いることの利点としては、フェライトの組成変更が容易であること、また膜厚の調整が容易なことが挙げられる。そして、作製したフェライト薄膜について、VSM による磁気特性、X 線回折(XRD)による結晶構造の測定等を行い評価した。

・実験結果

Fig.1 に 800 °C から 1100 °C まで、電気炉を用いてそれぞれの温度で 1 時間ポストアニールを行ったフェライト薄膜の保磁力の変化、Fig.2 に 1000 °C、1050 °C、1075 °C でポストアニールを行った試料の M-H ループを示す。800 °C から 1000 °C までの温度で、保磁力は 4 kOe 前後の値を保っているが、1000 °C から 1050 °C にかけて垂直方向、面内方向ともに保磁力が大きく低下しており、Y 型フェライトが軟磁性体であることから、1050 °C で熱処理を行うことが Y 型フェライトの作製に必要な条件の一つではないかと考えられる。

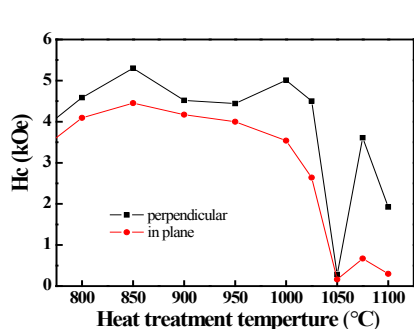


Fig.1 熱処理温度による保磁力の変化

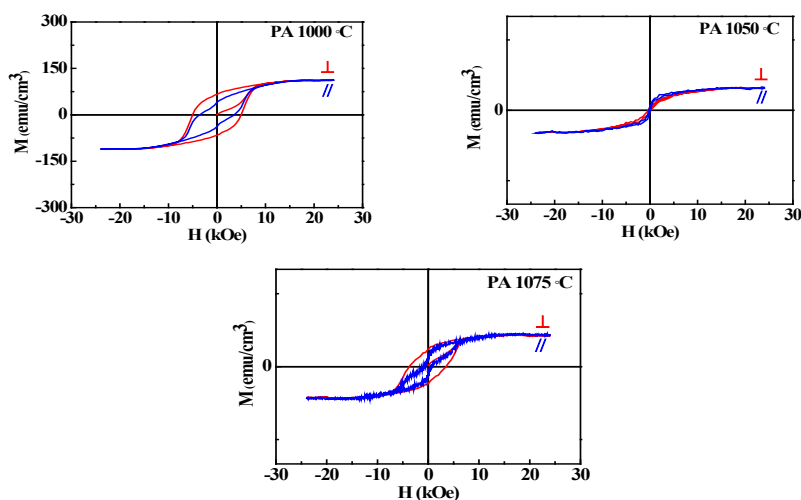


Fig.2 PA 1000 °C, 1050 °C, 1075 °C の M-H ループ

参考文献

- 1) “Low-Magnetic-Field Control of Electric Polarization Vector in a Helimagnet”
Shintaro Ishiwata, Yasujiro Taguchi, Hiroshi Murakawa, Yoshinori Onose, Yoshinori Tokura
SCIENCE Vol.319 21 MARCH 2008 (1643-1646)

(111)配向 BiFeO₃ 系マルチフェロイック薄膜を用いた 局所電界印加による磁化方向制御

吉村 哲、菅原 祐輔、芦 佳、江川 元太、木下 幸則、齊藤 準

(秋田大)

Control of direction of magnetization by local electric field
in BiFeO₃ based multiferroic thin films with (111) orientation

S. Yoshimura, Y. Sugawara, J. Lu, G. Egawa, Y. Kinoshita, and H. Saito

(Akita Univ.)

はじめに 強磁性・強誘電性を併せ持つマルチフェロイック材料は、電場 E による磁化 M の方向制御、磁場 H による電気分極 P の方向制御が可能であるので、革新的な次世代電子材料として現在盛んに研究されている。強誘電体である BiFeO₃ において、Bi を Ba, Fe を Mn や Ti で置換した Bi_{1-x}Ba_xFeO₃¹⁾, BiFe_{1-x}M_xO₃(M=Mn,Ti)²⁾などの薄膜では、強磁性が観測されている。昨年、BiFeO₃系マルチフェロイック薄膜の記録デバイス応用を念頭に、生産性に優れたスパッタリング法を用い、分極方向が膜面垂直となるよう(111)配向制御された BiFeO₃ 薄膜を 400°C程度の低温で非単結晶基板上に形成するプロセスを報告した³⁾。本研究では、BiFeO₃の Bi を Ba で置換した強磁性・強誘電 Bi_{1-x}Ba_xFeO₃ 薄膜への局所電界印加により強磁性ドメインを誘起することで、磁気記録デバイスへの適応性を検証することを目的とした。

方法 Bi_{1-x}Ba_xFeO₃(BBFO)($x=0-0.4$)薄膜(膜厚 100 nm)を、マグネトロンスパッタリング法を用いて、熱酸化膜付き Si 基板上に Ta(5 nm)/Pt(100 nm)の下地層を成膜した後、積層膜として作製した。積層膜は基板温度として、Ta を室温、Pt を 300°C、BBFO を 400~500°Cで成膜した。さらに、BBFO 薄膜のペロブスカイト構造の形成を促進させるために、スパッタリング成膜時の薄膜に弱い高周波(VHF)プラズマを照射した。本条件で成膜することにより、Pt 下地層および BBFO 層は(111)配向することがX線回折装置(XRD)により確認できた。作製した積層膜の磁気測定は試料振動型磁力計(VSM)により、誘電測定は、BBFO 積層膜の最表面に Pt ドット状電極($\phi 200 \mu\text{m}$)を成膜し、強誘電特性評価システムにより行った。薄膜表面の同一箇所の磁区構造および電荷の分域構造は、磁気力顕微鏡および電気力顕微鏡を用いて観察した。

結果 Fig. 1 に、昨年の BFO 積層膜の検討から得られた最適条件で成膜した BBFO 薄膜の飽和磁化(M_s)および飽和分極(P_s)の Ba 置換量(x)依存性を示す。 x の増大に伴い M_s が増加し、 $x=0.4$ において、PLD 法等で単結晶基板上に高温で作製された薄膜の値と同程度の 60 emu/cm^3 が得られ、かつ $P-E$ および $M-H$ 曲線において明瞭なヒステリシスを示すことから、本薄膜は強制的秩序のマルチフェロイック特性を有している。しかしながら、 P_s は最大 $10 \mu\text{C/cm}^2$ 程度であり、PLD 法等で単結晶基板上に高温で作製された薄膜の値の 5 分の 1 以下であった。その原因として BBFO 薄膜組成の化学量論比からのずれや酸素欠損が挙げられる。Fig. 2 に、マルチフェロイック特性を有する Bi_{0.6}Ba_{0.4}FeO₃ 薄膜における、走査型プローブ顕微鏡および導電性探針を用いて観察した表面像を(a)に、同装置および探針を用いて局所電界印加 ($3 \times 3 \mu\text{m}$ 領域に +13 V, $1 \times 1 \mu\text{m}$ 領域に -13 V) を施した後の分域構造を電気力顕微鏡により観察した像を(b)に、磁性探針を用いて磁区構造を磁気力顕微鏡により観察した像を(c)に、それぞれ示す。(b), (c) いずれにおいても、 $1 \times 1 \mu\text{m}$ の中心領域と $3 \times 3 \mu\text{m}$ の外周領域とでコントラストが異なり、極性が異なることが示唆される。各探針の極性およびその振動の位相変化の結果から、中心および外周領域はそれぞれ -, S, および +, N, であった。以上の結果から、本薄膜において、局所電界印加により強磁性ドメインの誘起させることに成功し、電界制御方式の磁気記録デバイスの実現可能性を示した。講演では、本薄膜の微細組織についても述べる予定である。

参考文献 1) D. H. Wang et al., Applied Physics Letter, 84, 212907 (2006), 2) I. O. Troyanchuk et al., Neorganicheskie Materialy, 46-4, 475 (2010), 3) 吉村 哲 他, 第 37 回日本磁気学会学術講演概要集, 3aC-6

謝辞 誘電特性評価にご協力賜りました、名古屋大学 浅野秀文先生・坂本渉先生に感謝申し上げます。

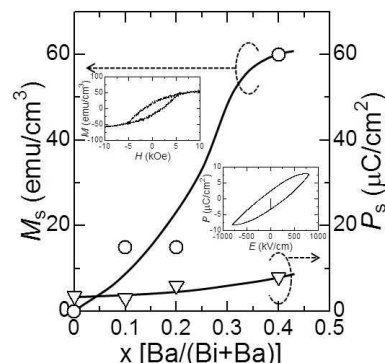


Fig. 1 Dependence of P_s and M_s of Bi_{1-x}Ba_xFeO₃ films onto Ta/Pt underlayer on Ba concentration.

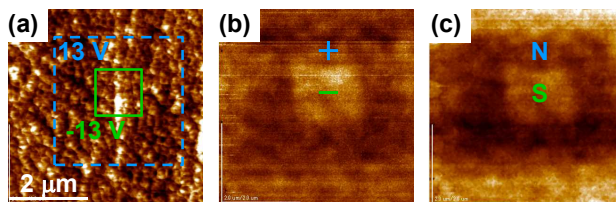


Fig. 2 (a) topographic, (b) EFM, and (c) MFM images of Bi_{0.6}Ba_{0.4}FeO₃ multiferroic film onto Ta/Pt underlayer.

トーラス型磁気クラスターにおける異なる磁化過程

寺島 顕一、鈴木 健司、山口 克彦、内一 哲哉*、高木 敏行*
(福島大、*東北大)

Different magnetization process of torus magnetic cluster
K. Terashima, K. Suzuki, K. Yamaguchi, T. Uchimoto*, T. Takagi*
(Fukushima Univ. *Touhoku Univ.)

はじめに

近年、磁気還流構造をとるトーラス型磁気リングへの関心が高まっており、実験及び理論的な観点から盛んに研究が行われている。これまでに Co トーラスリングの実験などが行われており、磁化反転の途中で一度、安定状態になるという報告がなされている。さらに LLG 方程式を用いたシミュレーションもなされており、安定状態である還流構造か、磁化が概ね同一方向を向いている状態のどちらか一方を含んだ磁気的特性を持つ、と示されている。しかしながら、実験は多数のリングを纏めて測定したものであり、さらにシミュレーションの結果とはそぐわないものであった。よって、シミュレーションで得られたそれぞれの磁気特性を、実験と合うように足し合わせた統計的な解析が行われてきた¹⁾。

そこで本研究は、1つのリングが持つ磁気的性質を解析するために、半径の異なるトーラスリングクラスターを用いてモンテカルロ (MC) シミュレーションを行った。これによりトーラスリングの実際の磁化過程が明らかになると期待できる。

計算手法

クラスターは Fig.1 に示したようなトーラス型で、単純立方格子の格子点上に磁性サイトを配置し、 $r=3, R=8, 10, 15, 20$ の 4 個を用いた。計算はメトロポリスサンプリングによる MC シミュレーションで行い、ハミルトニアンには(1)式を用いた。第一項が交換相互作用、第二項が磁気双極子相互作用、第三項が印加磁場を与え、 S_i は i 番目のスピンベクトルである²⁾。

$$H = -\sum_{near} J_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + D \sum_{all} \left(\frac{\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j}{|\mathbf{r}_{ij}|^3} - \frac{3}{|\mathbf{r}_{ij}|^5} (\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\mathbf{S}_j \cdot \mathbf{r}_{ij}) \right) + B \sum_i S_i \quad (1)$$

結果

Figure 2 には $r=3, R=10$ のクラスターによるシミュレーション結果を示した。同一クラスターにおいて、2つの異なる磁化過程を含んでいることが分かる。1つは途中で還流構造をとるものである。還流構造は磁場の逆向きをとっている部分の内側からスピンが反転し、別の小さな還流構造を作る。磁場が大きくなるにつれ、小さな還流構造は外側へと移動し、最終的に磁化が反転する。もう1つはスピンの向きを維持したまま回転するように磁化反転をする過程である。これら2つの磁化過程を含む磁気特性は他のクラスターにおいても同様に見られた。

参考文献

- 1) F. Q. Zhu, et. al, *Adv. Mater.* Vol.16, Issue 23-24, 2004, pp.2155-2159.
- 2) K. Yamaguchi, et. al, *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 47, 2011, pp. 1118-1121.

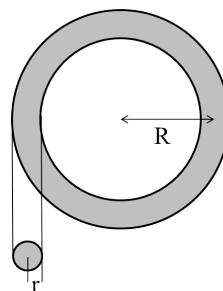


Fig.1 Schematic diagram for torus ring cluster.

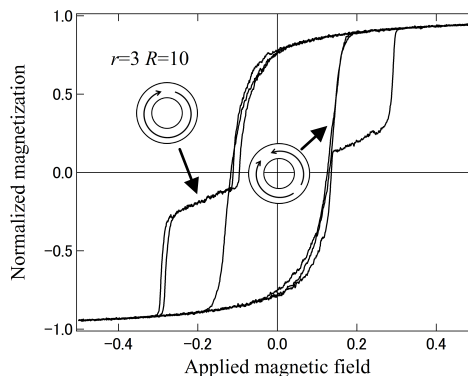


Fig.2 Hysteresis loops of torus ring cluster with $r=3, R=10$ repeat three times.

マイクロマグネティックシミュレーションにおける 中間磁化を用いた高速化の検討

安宅正、古屋篤史、藤崎淳、清水香壺、上原裕二、田中智大、大島弘敬*
(富士通株式会社、*株式会社富士通研究所)

Accelerating method of micromagnetic simulation interpolating magnetization vector

T. Ataka, A. Furuya, J. Fujisaki, K. Shimizu, Y. Uehara, T. Tanaka, H. Oshima*
(Fujitsu Limited, *Fujitsu Laboratories Limited)

はじめに

永久磁石の保磁力は結晶粒径や温度、結晶粒界の物性などに依存して変化することが実験的に知られているが、その詳細なメカニズムは今のところ十分に理解されていない。そこで近年、永久磁石の保磁力発現のメカニズムを解明するためにマイクロマグネティックシミュレーションが注目されている。この手法は磁石材料の磁化過程を理解する上で非常に有用であるが、磁壁の構造や磁壁移動を表現するために非常に細かいメッシュ分割が求められている。例えば、Nd-Fe-B 磁石では磁壁の厚さが 5nm と非常に薄いために 1nm 程度のメッシュ分割が必要である。一方で、結晶粒径は数百 nm～数 μ m とメッシュ幅に比べ非常に大きく、粒界を含む多結晶の計算に必要なメッシュ数は膨大になり計算時間がかかる。計算時間を短くするため、空間刻みが大きくても磁壁の構造や磁壁移動が表現できる数値計算手法が求められており、この点について検討した。

計算手法

交換結合エネルギー、異方性エネルギーにより得られる有効磁界の計算において、(1) 式で与えられる、磁化の長さ条件を満たす中間磁化を仮想的に配置した (Fig.1)。式中の c はメッシュの形状や重心位置により決定される案分比である。

$$\vec{m}'(i, j) = \frac{c\vec{m}(i) + (1-c)\vec{m}(j)}{|c\vec{m}(i) + (1-c)\vec{m}(j)|} \quad \dots (1)$$

中間磁化はメッシュ上の磁化に対する LLG 方程式を計算する際に使用される一時的なものであり、一つのメッシュ上における磁化の計算コストが増えるが、メッシュを粗くすることで全体として計算時間を短縮することが可能となる。この中間磁化を用いたエネルギーの離散化を行い、各磁化の有効磁界を変分計算により求める。

計算結果

中間磁化を用いて 2 次元の離散化を行い、保磁力を計算した (Fig.2)。保磁力の誤差はメッシュサイズが大きい領域において従来の要素中心のみに磁化を配置する方法より改善することがわかる。

参考文献

- 1) A. Sakuma et al; J. Magn. Magn. 84 (1990) pp.52-58

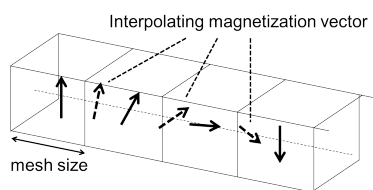


Fig.1 Conceptual diagram of interpolating magnetization vector

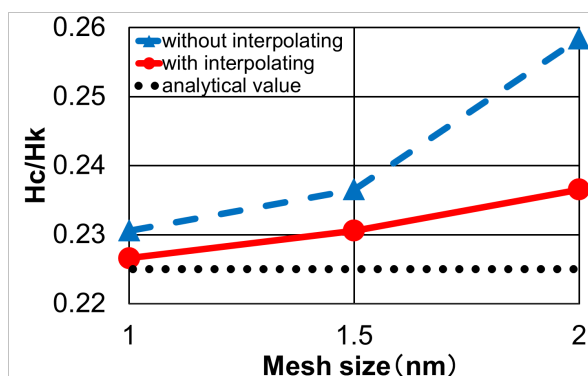


Fig.2 Normalized coercivity of 2D calculation

Au / Zn フェライト薄膜における表面プラズモンの磁気応答性

成嶋和樹, 芦澤好人, K. Brachwitz*, H. Hochmuth*, M. Lorenz*, M. Grundmann*, 中川活二

(日本大学, *Univ. Leipzig)

Surface plasmon responding on magnetic field for Au / ZnFe₂O₄ film

K. Narushima, Y. Ashizawa, K. Brachwitz*, H. Hochmuth*, M. Lorenz*, M. Grundmann*, and K. Nakagawa

(Nihon University, *Univ. Leipzig)

はじめに

近年、表面プラズモンの磁気応答性が報告され、誘電率変化に対する応答感度が高い特徴から、高感度磁気センサへの応用が期待される。これまでに我々は、表面プラズモンを効率的に生成する非磁性金属および磁気応答性を担う磁性金属に機能を分離した薄膜を用いることで、表面プラズモンに磁気応答性を付与した²⁾。磁気応答性増大には磁界に依存した大きな誘電率変化が重要である。本報告では新たに、磁気応答層として非金属磁性体で、室温でフェリ磁性を示す ZnFe₂O₄ 薄膜³⁾を用い、磁界による誘電率変化を期待して、表面プラズモンの磁気応答性を検討した。

実験方法

表面プラズモンの励起には Au を用いた。試料は SrTiO₃ (111) / ZnFe₂O₄ / Au とした。ZnFe₂O₄ 層はパルスレーザー堆積 (PLD) 法、Au 層はスパッタリング法により、それぞれ 50 nm 成膜した。試料の結晶構造解析は X 線回折 (XRD) 法にて行った。表面プラズモンの励起および検出にはクレッチマン配置を利用した全反射減衰 (Attenuated Total Reflection: ATR) 法を用いた。 p 偏光の光をプリズムを通して試料に入射し、反射率の角度依存性を測定した。試料面に対して垂直方向に磁場を印加し、磁場の有無の反射率差から表面プラズモンの磁気応答性を評価した。測定時の入射光の波長は 600 nm とした。

実験結果

SrTiO₃ (111) / ZnFe₂O₄ / Au 薄膜の XRD プロファイルを Fig. 1 に示す。 $2\theta = 36.9^\circ$ 、 38.3° に ZnFe₂O₄ (222) 面および Au (111) 面に起因する回折線が観測され、いずれの結晶相も (111) 面配向していることがわかる。

本試料において ATR 法で表面プラズモンの磁気応答性を評価した結果を Fig. 2 に示す。反射率は、 42.4° 付近の臨界角から急激に減少して 44.7° 付近で最小値 19.8 % を示し、さらに高角側で増加した。磁気応答性は最大で $\Delta R = (R(400) - R(0)) / R(0) = 0.18$ を示した。金属非磁性材料と非金属磁性材料において表面プラズモンに磁気応答性を付与が可能であることを示した。

謝辞

本研究の一部は、科研費若手研究(B) No. 24760324, 文科省私立大学戦略的研究基盤形成支援事業 (平成 25 ~ 29 年) の助成を受けた

参考文献

- 1) J. B. Gonzalez-Diaz *et al.*, *Phys. Rev. B*, **76**, 153402 (2007).
- 2) Toru Tachikawa, Yoshito Ashizawa, and Katsuji Nakagawa, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **38**, 135-138 (2014).
- 3) M. Bohra *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 262506 (2006).

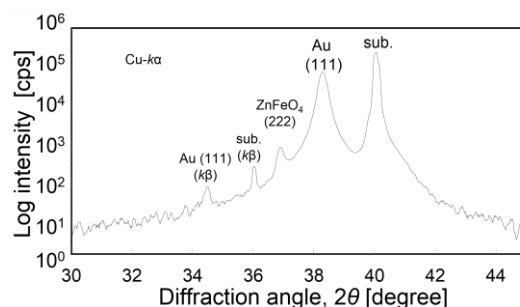


Fig. 1 XRD profile of SrTiO₃(111) / ZnFe₂O₄ / Au film.

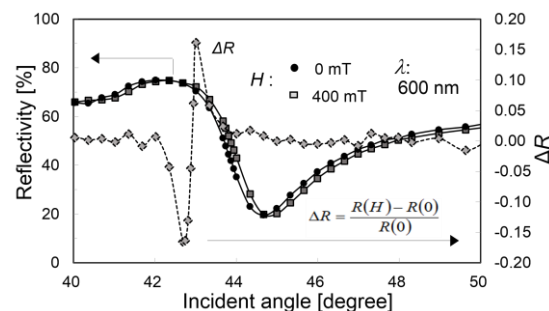


Fig. 2 Reflectivity curve and ΔR of SrTiO₃(111) / ZnFe₂O₄ / Au film as a function of incident angle.

アモルファス基板の上に成膜したビスマス鉄ガーネットの緩衝層依存性

安達信泰、林一成、木場勇作、藤内紗恵子、太田敏孝
(名古屋工業大学・先進セラミックス研究センター)

Buffer Layer Dependence of Bismuth Iron Garnet Prepared on Amorphous Substrates

N. Adachi, K. Hayashi, Y. Kiba, S. Fujiuchi and T. Ota

(Advanced Ceramics Research Laboratory, Nagoya Institute of Technology)

はじめに

可視光領域で磁気光学効果の極めて大きな物質としてビスマス鉄磁性ガーネット $\text{Bi}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (BIG)があるが、我々は、気相法以外に有機金属分解法 (MOD法) により単結晶基板にも合成し、磁界センサーとして活用できることを示してきた¹⁾。最近、バッファ層と導入することでガラス基板上への高濃度ビスマス置換鉄ガーネットが作製できることが示された²⁾。BIG に関しても、様々な基板への成長が可能となれば、その応用性は広がると考えられる。そこで、ガーネット組成の異なるバッファ層上に BIG を成長させ、その磁気光学特性の比較と行った。

実験方法

緩衝層として、有機金属溶媒を用いて $\text{BiY}_2\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (BiYIG)、 $\text{BiNd}_2\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (BiNdIG)、 $\text{NdY}_2\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (NdYIG)をガラス基板上にスピンコーティングし、熱処理結晶化させた後、BIG 層の結晶化を試みた。緩衝層は、600℃から 800℃の範囲で結晶化させ、BIG 層は 480℃で結晶化させた。評価はXRD、SEM、ファラデー回転測定により行った。

実験結果

XRD の結果より、BiYIG および BiNdIG の結晶化最適温度は 650℃、NdYIG の最適温度は 750℃と判断した。緩衝層と BIG 膜の格子定数マッチングに関しては、BiNdIG と NdYIG とが回折ピークの分離ができない結果となった。その上に、BIG を作製したところ、Fig. 1 に示すように大きなファラデー回転を示した。NdY₂IG を緩衝層として用いた BIG 薄膜が、大きな磁気光学特性を示し、単結晶ガーネット基板上に作製した BIG に近い値を示した。Fig. 2 に緩衝層の表面微構造を示す。NdY₂IG の表面がクラックはあるものの、滑らかな構造を示した。また、断面観察を行ったところ Bi が含まれている緩衝層は 40nm 程度の結晶粒が観察できた。これらの結果から、NdY₂IG の場合は、緩衝層が 2 次的に結晶成長し、Bi を含む緩衝層は 3 次的に島状成長していると思われる。これらのことから、表面がなめらかで格子定数が BIG に近い緩衝層を用いることで、単結晶と同等の特性を持つ BIG をガラス基板上へも作製可能であることが示された。

References

- 1) N. Adachi, T. Ota, Journal of the Ceramic Society of Japan 122(1), 40-43 (2014)
- 2) T. Ishibashi, T. Yoshida, T. Kobayashi, S. Ikehara and T. Nishi, J. Appl. Phys 113, 17A926 (2013)

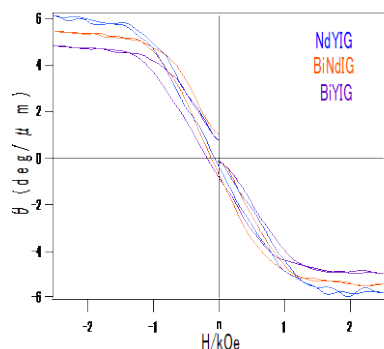
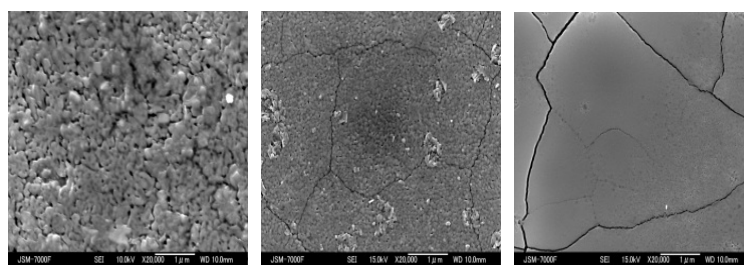


Fig.1. Faraday hysteresis curves at 635 nm of BIG/buffer on glass substrates



(a) (b) (c)

Fig.2. SEM micrograph of buffer layers (a: BiY₂IG, b: BiNd₂IG, c: NdY₂IG)

フェライトと銅カイラル構造を組み合わせた メタ分子による磁気カイラル効果

富田知志、澤田桂*、ポロフニユク・アンドレイ**、上田哲也**

(奈良先端大物質、*理研 SPring-8、**京都工繊大工芸)

Magneto-chiral effects by a meta-molecule consisting of a ferrite rod and copper chiral structure

Satoshi Tomita, Kei Sawada*, Andrey Porokhnyuk**, Tetsuya Ueda**

(GSMS-NAIST, *RIKEN SPring-8 Center, **Kyoto Inst. Tech.)

はじめに

磁性とカイラリティが共存する物質では、偏光には依存せず、光の進行方向に依存する光学異方性としての磁気カイラル効果の存在が理論的に予言されている¹⁾。これまではマルチフェロイックス材料などで、物質が持つ磁性とカイラリティの内因的な相互作用を用いる研究が行われてきた²⁾。それにも関わらず実験的に磁気カイラル効果を直接観測した報告はない。しかし今回我々は、メタマテリアル³⁾の概念を応用し、フェライトと銅カイラル構造を組み合わせたメタ分子を作製して、マイクロ波には磁性とカイラリティがあたかも相互作用しているかのように見える状況を作り出したところ、磁気カイラル効果の直接観測に成功した。

実験方法

磁気カイラルメタ分子は、フェライトロッドと銅のカイラル構造を組み合わせて作製した[図(a)]。メタ分子をマイクロ波導波管(WR-90)に挿入し、電磁石で直流磁場をかけた。 X バンドのベクトルネットワークアナライザを用いて、図(a)の左から、もしくは右から伝搬するマイクロ波の透過率に対応する S パラメータ (S_{21} と S_{12}) の強度と位相を測定した。

結果と考察

図(b)に S_{21} の位相から S_{12} の位相を差し引いた差分スペクトルを示す。無磁場下では S_{21} と S_{12} は等しく、スペクトルに構造は見られない。しかしここに直流磁場を加えると、10GHz 辺りにローレンツ分散形状の構造が現れた。これは銅カイラル構造が示す 10GHz 辺りの共鳴的光学活性によって増強された磁気カイラル効果によるものであると考えられる。直流磁場の方向を反転させると分散形状も反転した。位相の差分から、+200mT の直流磁場での屈折率実部の差は 5.4×10^{-3} 程度であると見積もられた⁴⁾。外部磁場を強くすると、この屈折率差は大きくなった。この磁気カイラルメタ分子は、新しいタイプのマイクロ波一方素子や電磁波にとっての実効的ゲージ場⁵⁾を実現すると期待される。

参考文献

- 1) L. D. Barron and J. Vrbancich, *Molecular Physics* **51**, 715 (1984).
- 2) M. Mochizuki and S. Seki, *Phys. Rev. B* **87**, 0134403 (2013).
- 3) D. R. Smith, J. B. Pendry, and M. C. K. Wiltshire, *Science* **305**, 788 (2004).
- 4) S. Tomita, K. Sawada, A. Porokhnyuk, and T. Ueda, submitted.
- 5) K. Sawada and N. Nagaosa, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 237402 (2005).

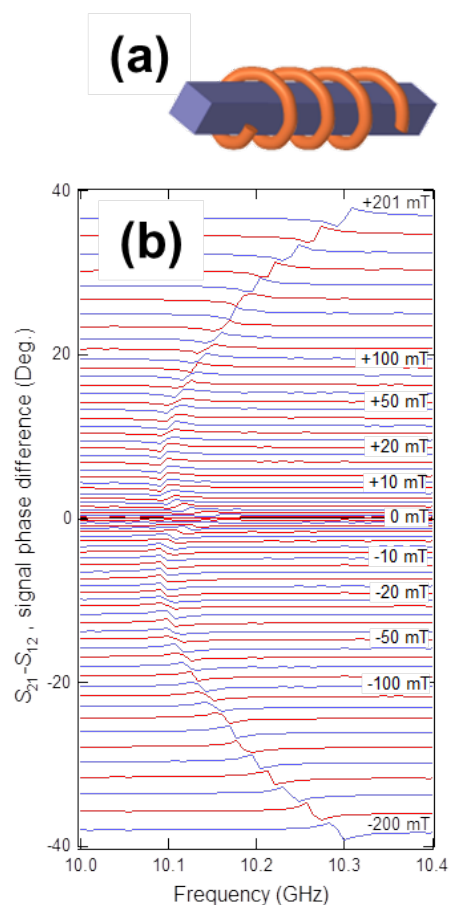


図 (a)磁気カイラルメタ分子と(b) X バンドでの磁気カイラル効果

有機金属分解法による $\text{Nd}_{0.5}\text{Bi}_{2.5}\text{Fe}_{5-y}\text{Ga}_y\text{O}_{12}$ ($y = 0, 0.5, 1$) 薄膜の ガラス基板上への作製と評価

婁 庚健、佐々木 教真、箸中 貴大、目黒 燎、二宮 南、石橋 隆幸
(長岡技科大)

Characterization of $\text{Nd}_{0.5}\text{Bi}_{2.5}\text{Fe}_{5-y}\text{Ga}_y\text{O}_{12}$ ($y = 0, 0.5, 1$) films on glass substrates
prepared by Metal Organic Decomposition (MOD) method

G. Lou, M. Sasaki, T. Hashinaka, A. Meguro, M. Ninomiya, T. Ishibashi
(Nagaoka Univ. of Tech.)

はじめに

我々は、これまでに Bi とイオン半径の近い Nd を用いた $\text{Nd}_{0.5}\text{Bi}_{2.5}\text{Fe}_4\text{GaO}_{12}$ をガラス基板上に作製することに成功し、大きな磁気光学効果と垂直磁気異方性を同時に得ることに成功したことを報告した[1]。しかし、Bi 置換量の大きな Bi 置換希土鉄ガーネットにおける磁気異方性の制御に関する報告はこれまでほとんどない。今回は、Nd 系ガーネットの磁気異方性の制御のため、Fe サイトを置換する Ga の量を変化させた $\text{Nd}_{0.5}\text{Bi}_{2.5}\text{Fe}_{5-y}\text{Ga}_y\text{O}_{12}$ ($y = 0, 0.5, 1$) 薄膜をガラス基板上に作製し評価を行った結果について報告する。

実験方法

ガラス基板上に、MOD 法によりバッファー層として厚さ $d = 0.12 \mu\text{m}$ の $\text{Nd}_2\text{BiFe}_4\text{GaO}_{12}$ (Bi1:NIGG) を作製し、その上に厚さ $d = 0.2 \mu\text{m}$ の Ga の置換量を変えた $\text{Nd}_{0.5}\text{Bi}_{2.5}\text{Fe}_{5-y}\text{Ga}_y\text{O}_{12}$ ($y = 0, 0.5, 1$) 薄膜を作製した。バッファー層は、MOD 溶液（高純度化学研究所製）の塗布 (3000rpm, 60 秒), 乾燥 (100°C , 10 分), 仮焼成 (450°C , 10 分) を 3 回繰り返した後、本焼成 (700°C , 3 時間) により結晶化を行った。 $\text{Nd}_{0.5}\text{Bi}_{2.5}\text{Fe}_{5-y}\text{Ga}_y\text{O}_{12}$ ($y = 0, 0.5, 1$) 薄膜はバッファー層上に塗布から仮焼成の行程を 5 回繰り返した後、本焼成 (700°C , 3 時間) によって結晶化を行った。

結果及び考察

Fig.1 に波長 550 nm における $\text{Nd}_{0.5}\text{Bi}_{2.5}\text{Fe}_{5-y}\text{Ga}_y\text{O}_{12}$ ($y = 0, 0.5, 1$) 薄膜のファラデーヒステリシスを示す。Ga 置換量の増加に伴ってヒステリシスの形状が変化し、磁気異方性が面内から垂直に変化していることがわかる。Mr/Ms の値は、 $y = 0, 0.5, 1$ についてそれぞれ、0.11、0.23、0.83 であった。以上のことから、我々が開発した $\text{Nd}_{0.5}\text{Bi}_{2.5}\text{Fe}_{5-y}\text{Ga}_y\text{O}_{12}$ ($y = 0, 0.5, 1$) 薄膜は、大きなファラデー効果を維持したまま、磁気異方性を制御することが可能であることがわかった。詳細については、当日報告する。

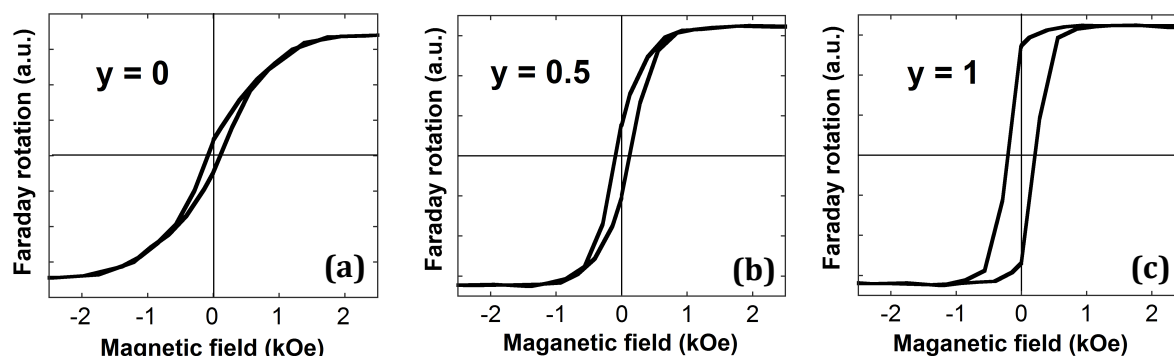


Fig.1 Faraday hysteresis of $\text{Nd}_{0.5}\text{Bi}_{2.5}\text{Fe}_{5-y}\text{Ga}_y\text{O}_{12}$ films; (a) $y = 0$, (b) 0.5 and (c) 1.

謝辞

本研究の一部は、独立行政法人情報通信研究機構の委託研究「革新的な三次元映像技術による超臨場感コミュニケーション技術の開発」により行った。

参考文献

[1] T. Yoshida, et al., European Phys. J. Web of Conf. (in press)

Co/Ru 多層膜の光学応答に現れるスピン依存散乱の効果

○斉藤伸¹, 水野翔太², 赤羽浩一¹, 佐藤春彦², 内田裕久² (¹ 東北大学, ² 東北工業大学)

Effect of Spin-dependent Scattering on Optical Properties for Co/Ru Multilayer Film

S. Saito¹, S. Mizuno², K. Akahane¹, H. Sato², and H. Uchida² (¹ Tohoku Univ., ² Tohoku Inst. Tech.)

1. はじめに 磁気センサは、空間の「磁界の大きさや方向」を検出するデバイスである。所望の周波数帯において高い検出感度や必要なダイナミックレンジを達成するために、様々な磁界効果を測定原理とするデバイスが提案され、実用化される。中でも光をプローブとしたセンサは、検出部を小型にでき、真空中、液中、あるいは狭空間中での磁界のセンシングが可能となるため注目されている。偏光子を用いない簡素な光学系でこれを実現するためには、材料の反射率や透過率が磁界によって変化する現象の活用が有効であり、材料開発が待望されている。著者らは、強磁性材料では磁化状態を印加磁界に対応させて変化させられることを鑑み、伝導電子のスピン依存散乱現象の光学特性に表れる効果に注目した。特に巨大磁気抵抗 (GMR) 効果、すなわち、強磁性/非磁性金属多層膜において、隣接する強磁性層のスピンの向きが平行/反平行配列した際に現れる直流抵抗変化は非常に大きく¹⁾、この現象が近赤外から可視光領域の周波数でどの程度光学特性に現れるか興味を持たれる。このような観点での先行研究は、理論報告は 1999 年以降²⁾、実験報告は 2002 年以降³⁾ にみられ始めている。しかしながら、実験報告に注目すると、GMR 効果が確認された Co/Cu 多層膜⁴⁾ を基本として磁性層材料を CoFe 合金とした論文²⁾ が散見される程度で、材料検討は十分とはいえない。そこで著者らは、まず、非磁性層材料として Ru を選択し、強い反強磁性的層間結合を有する Co/Ru 多層膜を作製した。続いて透過率の磁化状態に対する変化を評価したので報告する。

2. 実験結果 Fig. 1 に今回構築した光学系の模式図を示す。ハロゲンランプ光源から出射した白色光を集光して試料に照射し、試料を透過した光を分光検出した。検出光の波長範囲は 900 nm~1650 nm である。磁界は試料面内方向に印加した。Fig. 2 に 一例として反強磁性的層間結合を有する [Co(4 nm)/ Ru(0.7 nm)]₁₀ 多層膜の (a) 磁化 M および (b) 波長 1550 nm での透過率の印加磁界に対する変化を示す。透過率は最大印加磁界 14 kOe 時の値で規格化した。(a)によると、最大印加磁界では磁界方向に飽和していた M は印加磁界を減少させると 10 kOe 付近から減少し始め、零磁界状態では、ほぼ零となり反平行配列することがわかる。これに対応して透過率 (b) は、10 kOe から減少し始め、零磁界状態では飽和時から 1%強度が低くなる。このことより透過率変化は、光ファイバが使用できる近赤外領域でも十分検出可能であることがわかった。Fig. 3 には規格化透過率の磁界ヒステリシスを波長毎に分光測定した結果をカラーマップとして示す。図中の白線が Fig. 2 (b) に対応する。この図によると、長波長ほどスピン依存散乱による透過光量変化が大きくなることが見てとれる。

参考文献 1) M. N. Baibich et al., *PRL*, **61**, 2472 (1988). 2) A. B. Granovskii et al., *JETP*, **89**, 955 (1999). 3) V. G. Kravets et al., *PRB*, **65**, 054415 (2002). 4) M. Vopsaroiu et al., *Rev. Sci. Instrum.*, **75**, 3127 (2004).

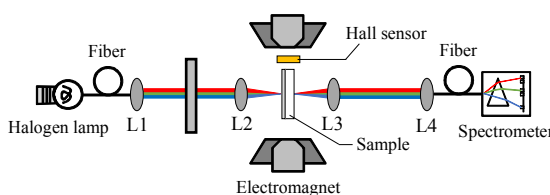


Fig. 1 Sketch of the spectroscopic magneto-refractive measurement system. L1-L4 are condensing and collimation lens

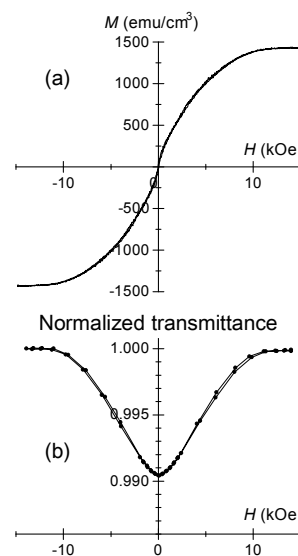


Fig. 2 (a) Hysteresis loop and (b) normalized transmittance at $\lambda = 1550$ nm for a [Co(4)/Ru(0.7)]₁₀/SiN(10) film.

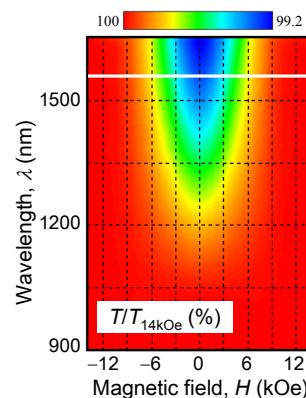


Fig. 3 Normalized transmittance plotted against wavelength and magnetic field. The white line corresponds to Fig. 2 (b).

磁気光学 3 次元ディスプレイのカラー化に関する基礎研究

高木宏幸, 工藤慧, 中村和樹, 後藤太一, Lim Pang Boey, 井上光輝
(豊橋技科大)

Fundamental study on colorization of magneto-optical three dimensional display

H. Takagi, K. Kudo, K. Nakamura, T. Goto, P. B. Lim, M. Inoue
(Toyohashi Univ. Tech.)

はじめに 自然な 3 次元像を再生できる表示技術としてホログラフィが注目されている¹⁾. 我々は, ホログラムの表示に磁気光学効果を使用した磁気光学 3 次元ディスプレイの開発を行ってきた. 磁性膜に可視光領域で優れた磁気光学特性を示す希土類置換型イットリウム鉄ガーネット(BiDyYFeAlGarnet)を使用することで, 広視野角の緑色単色像が再生できている. しかしながら, これらは緑単色の参照光で, 緑用に設計された磁性体での単色光の再生像であった. 本研究では, 磁気光学 3 次元ディスプレイのカラー化の基礎研究として, 光の 3 原色の加法混合による中間色の再生を目的とした. 赤 (R) 緑 (G) 青 (B) 各波長に対し磁性体膜厚を設計し, 空間分割方式の再生系を用いた中間色の表示を行った. 表示した像についてガモット図を用いて中間色の評価を行った. 今回はこれらの結果をもとに, 最終的に RG のカラーの 3 次元像を再生した.

実験方法 マトリックスアプローチ法を用いて, 磁性膜への入射光に対する 1 次回折光の比である光利用効率が最大となる膜厚を求め, 各色のホログラムを再生するための磁性体膜厚を設計した. 照明光源の波長は, R : 633 nm, G : 532 nm である. RG の中間色の表示を行うため, Fig. 1 に示す RG 合成用空間分割方式の再生系を構築した. 各色の像を磁性膜から再生し, 光学的に合成することで中間色を表示した. 磁性膜には RG それぞれの像を再生できるホログラムを記録した. 再生像の中間色を評価するために, 赤色と緑色の合成像について照明光源の強度を変化させて sRGB の色域を持つカメラで撮影を行った. 撮影像から抽出した RGB256 階調値をもとに, デバイスで表示可能な色域を示す Yxy 表色系ガモット図を作成した. 以上の結果をもとに 3D-RG 合成像の表示を試みた.

実験結果 磁性膜の膜厚が, R : 2.0 μm , G : 1.9 μm のとき, それぞれの光利用効率は R : $1.83 \times 10^{-2} \%$, G : $3.58 \times 10^{-2} \%$ となった. RG 合成像について, 作成したガモット図を Fig. 2 に示す. RG 合成による中間色が sRGB における緑色・赤色の間の直線上に現れた. これは赤色と緑色のみを合成したためであり, 本方式で中間色が再生できた. この結果をもとに RG 合成で 3 次元像を表示させた(Fig.3). 表示像は, RG 単色および中間色である黄色を持つ球が再生できている. 今回の結果から, 磁性膜に記録されたホログラムを用いて RG カラー像の再生ができた. 本結果に青色による再生像を加えることで, 表示可能な色域は現在一般的に用いられている sRGB の規格を満たすことができると考えられる.

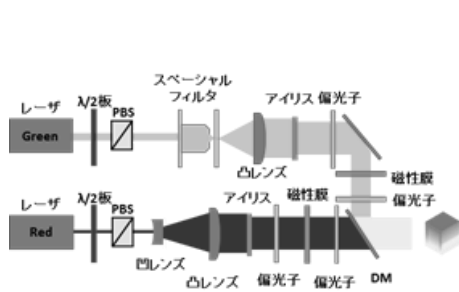


Fig.1 空間分割方式再生系

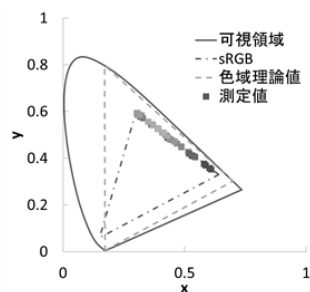


Fig.2 ガモット図(Yxy 表色系)

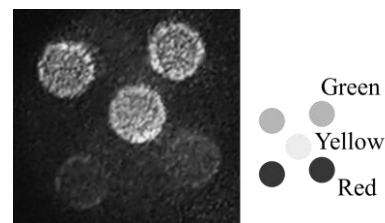


Fig.3 カラー3次元像

参考文献

- 1) D. Gabor, Nature, 161, 777 (1948).

Ce 置換イットリウム鉄ガーネットを用いた 磁性フォトニック結晶の形成

後藤太一, 吉本拓矢, 金澤直輝, 磯谷亮介, 高木宏幸, Caroline A. Ross*, 井上光輝
(豊橋技科大, *マサチューセッツ工科大)

Formation of magnetophotonic crystals with cerium substituted yttrium iron garnets

Taichi Goto, Takuya Yoshimoto, Naoki Kanazawa, Ryosuke Isogai,

HiroYuki Takagi, Caroline A. Ross*, Mitsuteru Inoue

(Toyohashi Univ. Tech., *MIT)

はじめに

磁性フォトニック結晶は, Bi 置換イットリウム鉄ガーネット (Bi:YIG) などの透明磁性材料を誘電体ミラー中に挿入することで, ファブリーペロー共鳴を利用し, 薄膜で厚膜と同程度の磁気光学効果を発現可能な光学媒体である. 薄膜の特徴を活かし, アイソレータ¹⁾や, 光変調器²⁾等の応用が提案され, 一部は実現されている. これまで応用先の要求から磁性フォトニック結晶に挿入される磁気光学材料は Bi, Dy, Gd などの希土類で Y サイトを置換した磁性ガーネットが多く, 可視光波長域の磁気光学効果を増大することを目的に研究が進められてきた. 一方で, 磁性ガーネットの光吸収が抑えられる近赤外波長域で動作する磁性フォトニック結晶の形成例は少なかった. これは, 近赤外波長域で大きな磁気光学効果をもつ Ce:YIG が誘電体ミラー基板上で形成することが困難であったことによる. しかし, 最近, 真空熱処理法を用いることで単結晶に匹敵する大きな磁気光学効果と低い光吸収係数をもった Ce:YIG が多結晶基板上に形成可能であることが報告された³⁾. そこで, 本研究では Ce:YIG を用いた磁性フォトニック結晶を形成し, 光学特性, 及び磁気光学特性を調べた.

実験方法

イオンビーム蒸着法を用いてガーネット基板上に 8 ペアの Ta₂O₅ と SiO₂ から構成される誘電体ミラーを形成した. 各層の厚さは, 波長 1550 nm において Bragg の回折条件を満足させた. この誘電体ミラー上に, 高周波マグネトロンスパッタ法と真空中熱処理を用いて Ce:YIG を形成した. 成膜は, 到達真空度 1.0×10^{-7} Torr, 10 mTorr の Ar ガス雰囲気中で行われた. 成膜直後の膜は, 非晶質であった. 同試料に 800 度の真空中熱処理を施した結果, 多結晶の Ce₁Y₂Fe₅O₁₂ が得られた. この Ce:YIG 層の上に, 誘電体ミラーを下部と同数形成した. 試料の透過率を分光光度計, 磁気光学効果を磁気光学効果測定装置を用いて測定した.

実験結果

Fig. 1 のように, 共振波長において磁気光学効果が増大され, 磁性フォトニック結晶が形成できたことを確認した. ただし, 透過率が 2.3 %程度と低かった. これは, 誘電体ミラー中の Ta₂O₅ が結晶化し, 光散乱を生じたため, 損失が増加したことが原因と考えられる. 講演会では, 詳細な試料形成方法と, X 線回折法, 及び X 線光電子分光を用いた試料の解析結果について報告する.

謝辞

本研究の一部は, 日本学術振興会 科研費 若手研究 (A) No. 26706009, 挑戦的萌芽研究 No. 26600043 の助成を受けて行われた.

参考文献

- 1) Y. Haga, et al., J. Magn. Soc. Jpn., **36**, 54 (2012).
- 2) T. Goto, et al., Opt. Express, **21**, 19648 (2013).
- 3) T. Goto, et al., J. Appl. Phys., **113**, 17A939 (2013).

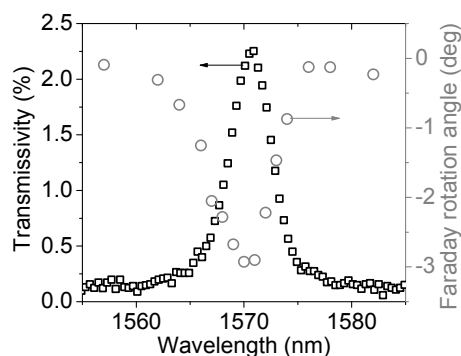


Fig. 1 Faraday rotation angle and transmission spectra in the vicinity of the resonant wavelength of the sample comprising garnet substrate/SiO₂/(Ta₂O₅/SiO₂)⁸/CeYIG/(SiO₂/Ta₂O₅)⁸.

磁性フォトニック結晶を用いた体積磁気ホログラムの回折効率

磯谷 亮介, 小林 完, 鈴木 章太, 後藤 太一, 高木 宏幸, 中村 雄一, 林 攀梅, 井上 光輝
(豊橋技術科学大学)

Study on Diffraction Efficiency of Volumetric Magnetic Holograms with Magnetophotonic Crystal

R. Isogai, K. Kobayashi, S. Suzuki, T. Goto, H. Takagi, Y. Nakamura, P. B. Lim, and M. Inoue

(Toyohashi University of Technology)

はじめに

ホログラムメモリは高転送レート・高記録密度が実現できることから、次世代のストレージデバイスとして期待されている。我々は、書き換えが可能な磁気ホログラムを提案し、ビスマス置換型イットリウム鉄ガーネット (Bi:YIG) 膜を用いて磁気ホログラムの記録・再生に成功している。しかし磁気メディアの回折効率は低く、データストレージとして用いるためにはさらなる回折効率の向上が必要である。体積磁気ホログラムの回折効率は、ファラデー回転角 θ_F とホログラムの書き込み深さ d_w に依存する。我々は、誘電体多層膜ミラー (BM) で磁性膜を挟んだ人工磁気格子である磁性フォトニック結晶 (MPC) が、 θ_F と d_w を増加させ、高い回折効率を示すことを報告した¹⁾。本研究では、より高い回折効率を得るため、MPC 構造を用いたホログラム媒体における BM の層数が回折効率に及ぼす影響について数値計算により評価した。

実験方法

MPC の構造は、SGGG 基板 / $(\text{Ta}_2\text{O}_5 / \text{SiO}_2)^r$ / Bi:YIG / $(\text{SiO}_2 / \text{Ta}_2\text{O}_5)^r$ とした。ここで r は誘電体多層膜のペア数で、 SiO_2 および Ta_2O_5 の膜厚は $\lambda/4n$ ($\lambda = 532 \text{ nm}$ は局在波長, n は各膜の屈折率) とした。計算モデルは二光束干渉方式とし、Bi:YIG 膜の膜厚 t_{YIG} , 誘電体多層膜のペア数 r および書き込みエネルギー密度を変化させ、各構造における回折効率を有限要素法 (COMSOL Multiphysics) により評価した。具体的にはまず信号光と参照光を照射し、キュリー温度以上に加熱された部分を磁化反転領域とした。その後、参照光のみを照射し、得られた 1 次回折光の強度, I_1 , と透過光強度, I_0 , より回折効率 $\eta = I_1/(I_0 + I_1) \times 100$ (%) を評価した。

実験結果及び考察

Fig. 1 に回折効率のガーネット膜厚依存性を示す。評価した範囲の膜厚では、単層膜の回折効率は飽和しており膜厚依存性は見られないが、MPC 構造では、共鳴膜厚 d_{res} においてファラデー回転角が増大するため、この膜厚近傍において回折効率が最大となった。Fig. 2 に単層膜と MPC メディアの磁気フリンジ形状を示す。Fig. 2 (a) に示すように単層膜では表面付近の磁気フリンジがつながったが、MPC では BM 間で光が多重反射して定在波が立つとともに、膜厚方向に熱分布を均一化させる効果もあるため、Fig. 2 (b) に示すように、それに対応した島状の磁気フリンジが膜深くにまで形成され、表面の磁気フリンジの潰れも抑制されることがわかる。これらの効果は BM の層数を増やすことで増大し、その結果、8 ペアの MPC は単層膜 (0.09%) の約 15 倍の 1.4% の回折効率を示した。しかしながら BM の層数を増すと、一般に MPC の Q 値は増大し、光学特性の光の入射角度依存性が大きくなる。発表では、MPC 構造における光の入射角度依存性について調査した結果についても報告する。

謝辞 本研究は日本学術振興会 基盤研究 (S) 26220902 および特別研究員奨励費 25-8942 の助成を受けたものである。

参考文献

- 1) R. Isogai, N. Sagara, T. Goto, Y. Nakamura, P. B. Lim, et al., *J. Magn. Soc. Jpn.*, **38**, pp.119-122 (2014).

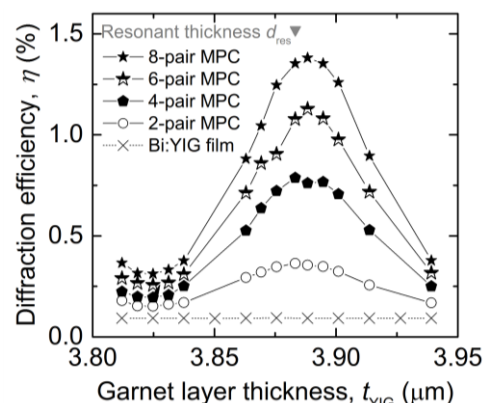


Fig. 1 Garnet thickness dependence of diffraction efficiency

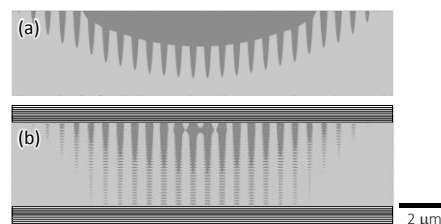


Fig. 2 Typical magnetic fringes. (a) Bi:YIG film. (b) 8-pair MPC.

磁性ガーネット/アルミナ多層膜構造の磁気ホログラム回折効率

小林完、磯谷亮介、鈴木章太、後藤太一、高木宏幸、林攀梅、中村雄一、井上光輝
(豊橋技科大)

The Diffraction Efficiency of Magnetic Volumetric Hologram in Magnetic-Garnet/Alumina Multilayer Film

K. Kobayashi, R. Isogai, S. Suzuki, T. Goto, H. Takagi, P. B. Lim, Y. Nakamura and M. Inoue
(Toyohashi Univ. Tech.)

はじめに

我々は、書き換え可能なホログラムメモリの実現を目指し、ファラデー回転角が大きく透光性に優れた、磁性ガーネット膜を用いて磁気ホログラムの記録・再生が可能であることを示してきた¹⁾。しかしながら、その回折効率は十分ではなく、明瞭な再生像を得るには回折効率の向上が必要である。磁気ホログラムの再生には磁気光学効果を用いるため、回折効率の向上には、回転角を上げるため深い干渉縞を記録する必要がある。磁気ホログラムは熱磁気書き込みで記録するので、書き込み光のエネルギー密度を高くすることで、深くまで書き込みできる。しかし従来の単層膜では、エネルギー密度を上げていくと、膜表面付近の温度が高くなり過ぎ、明瞭なフリンジ形状を維持することができず、回折効率はある値で飽和してしまう。そこで本研究では、膜厚方向に深くまで明瞭な磁気フリンジを形成することを目的とし、アルミナ膜をヒートシンク層として導入した多層膜構造に着目し、シミュレーションを用いてその設計および回折効率の評価を行った。

実験方法

多層膜の設計および体積磁気ホログラムの記録状態、回折効率の評価には有限要素法 (COMSOL Multiphysics v4.3a) を用いた。まず種々の膜厚のアルミナ膜とガーネット膜の組み合わせに対し、ガーネット層に周期的に熱源を与え、種々の熱源温度に対して、形成される磁気フリンジ幅の変化を評価した。その結果を踏まえ、ガーネット単層膜への記録時の温度プロファイルを元に、磁性ガーネット/アルミナ多層膜の設計を行い、2光束干渉法により回折光と透過光の比率から回折効率を評価した。

実験結果

磁気フリンジ幅の変化の評価結果から、任意の熱源温度に対し磁気フリンジ形状の乱れが小さくできるアルミナとガーネットの膜厚の関係を見いだした。この結果と多層膜表面における光の反射が小さくなる条件に基づき、多層膜構造を決定した。書き込みエネルギー密度 80 mJ/cm^2 の条件で設計した多層膜構造とそこに形成された磁気フリンジの形状を、単層膜のそれと合わせて Fig. 1 に示す。図のように単層膜では膜表面付近で隣接するフリンジ同士が熱の拡散により結合し、実効的な磁気フリンジの深さが短くなっている。それに対し、設計した多層膜では磁気フリンジの結合が無く、磁気フリンジが膜厚いっぱいまで形成できることがわかった。Fig. 2 に種々の書き込みエネルギー密度で評価した単層膜と多層膜の回折効率を示す。参考までにレーザ照射直後のフリンジ形状を用いた回折効率を破線で示している。図のように単層膜では約 50 mJ/cm^2 以上で回折効率が飽和しているが、多層膜を用いることで 80 mJ/cm^2 において 0.28%、 100 mJ/cm^2 では 0.35% の回折効率が得られ、レーザ照射直後の単層膜とほぼ同等の値を示した。これより更に膜厚を厚くした多層膜構造を用いることで、高い回折効率が期待できることがわかった。発表では設計方法の詳細等についても報告する。

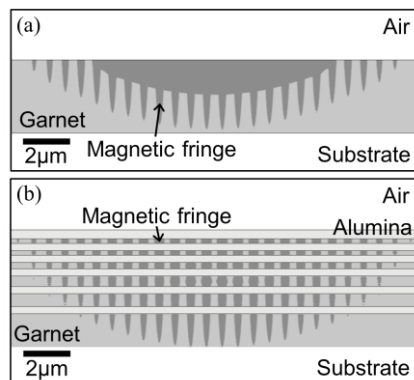


Fig. 1 Shapes of magnetic fringe formed by 80 mJ/cm^2 in (a) garnet single layer and (b) garnet/alumina multilayer films.

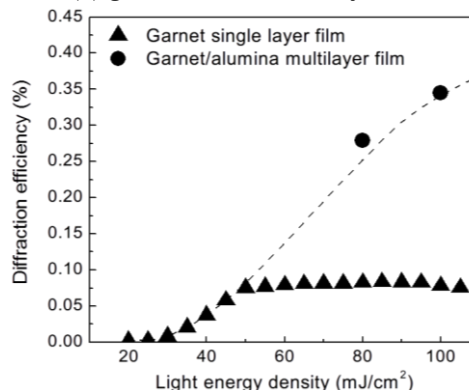


Fig. 2 Diffraction efficiency of the multilayer film and single-layer film.

参考文献 S. Baek, H. Sakurai, P. B. Lim, A. V. Baryshev, et al, IEICE Technical Report, vol. 111, pp. 21-25 (2011)

磁気光学 3 次元ディスプレイによる グレーレベルホログラム表示の基礎研究

中村和樹, 高木宏幸, 後藤太一, Lim Pang Boey, 井上光輝
(豊橋技科大)

Fundamental study on magneto-optic three dimensional displays for gray-level holograms

K. Nakamura, H. Takagi, T. Goto, P. B. Lim, M. Inoue
(Toyohashi Univ. Tech.)

はじめに 自然な立体像を表示することができる 3 次元表示技術として電子ホログラフィがある。我々は、希土類置換型イットリウム鉄ガーネット(BiDyYFeAlGarnet)を用いた広視野角の磁気光学 3 次元ディスプレイについて研究を行ってきた。ピクセル制御は光アドレス方式および熱磁気書き込みを用いている。レーザー光によってキュリー温度以上に加熱された部分は、周りの磁化からの磁界で逆方向に磁化反転し磁気ピクセルを形成する。この時、磁気ピクセルを透過する光のファラデー回転角は、垂直磁化膜のため 2 値のみであり、表示するホログラムはバイナリーホログラムであった。ファラデー回転角を 2 値から多値化することで、より実物に近い再生像を得ることができるグレーレベルのホログラムを表示出来ると考えた。本研究は、ファラデー回転角に影響する磁気ピクセルの形成深さが記録時の照射光エネルギーに依存することに着目し、光エネルギーを制御することで磁気ピクセルの多階調化を行った。

実験方法 磁気ピクセルは、光が照射された磁性体表面から加熱され磁化反転が生じる。今回は、照射光エネルギーを制御することで、表面から磁化反転する深さを制御できると考えた。ファラデー回転角は磁化に依存することから、磁気ピクセルの形成深さを制御することで多階調化を行った。磁性ガーネット膜上に、照射光エネルギーを $58 \text{ mJ/cm}^2 \sim 83 \text{ mJ/cm}^2$ まで変化させて熱磁気記録を行い、磁化反転の生じた領域のファラデー回転角の変化を測定した。熱磁気記録には、低解像度空間光変調器上に表示したパターンを縮小転写することで微小な磁気ピクセルを形成するタイリング光学系を用いた。使用した光源は、波長 532 nm 、パルス幅 10 ns 、発振周波数 10 Hz のパルスレーザーである。また、磁気ピクセルの階調に対する回折光強度の変化を調査するため、タイリング光学系を用いて線幅 $1.36 \mu\text{m}$ の格子を磁性ガーネット膜上に書き込み、入射光強度に対する 1 次回折光の強度を光利用効率として測定した。

結果と考察 照射光エネルギー強度に対するファラデー回転角の変化を調査した。光照射前のファラデー回転角を 1 として規格化した結果を Fig.1 に示す。照射光エネルギーの増加にしたがって、ファラデー回転角が変化していることがわかる。これは照射光エネルギーの強度で磁化反転領域およびファラデー回転角を制御できたためと考えられる。Fig.2 に格子状の磁気ピクセルパターンを形成した時の光利用効率を示す。光利用効率はファラデー回転角に依存していることから、照射光エネルギーによって光利用効率を変調できた。現状では、1 階調あたり 0.1 mJ/cm^2 の照射光エネルギーの制御により、256 階調を得ることができる。これらの結果から、ピクセルの形成条件を任意に制御できる光アドレス型の磁気光学 3 次元ディスプレイにおいて、照射光エネルギーの制御により磁気ピクセルの階調を多値化できることが示された。

参考文献

- 1) D. Gabor, *Nature*, 161, 777 (1948).

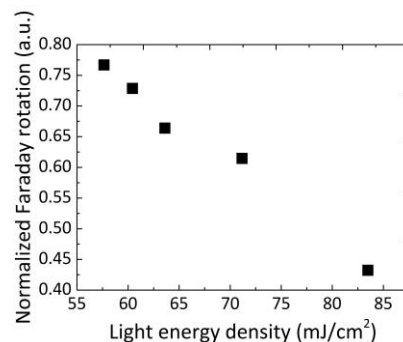


Fig. 1 ファラデー回転角の
照射光エネルギー依存性

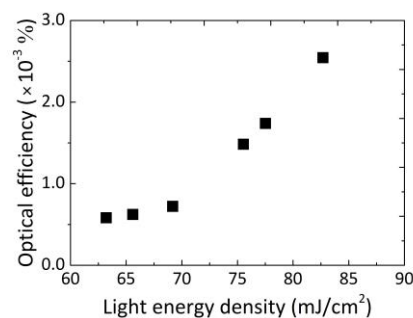


Fig. 2 光利用効率の
照射光エネルギー依存性

グラフェン/コバルト接合の電子状態と磁気抵抗効果

圓谷 志郎, 檜本 洋, 境 誠司

(日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター)

Electronic structure and magnetotransport properties of graphene/cobalt junctions

Shiro Entani, Hiroshi Naramoto, Seiji Sakai

(Advanced Science Research Center, Japan Atomic Energy Agency)

近年, グラフェンなどのナノ炭素や有機分子を用いた分子スピントロニクスが注目されている。これらの材料ではスピン-軌道相互作用が小さいこと等により長いスピン拡散長など優れたスピン輸送特性の発現が期待されている。我々はスピン注入過程などに関与する分子やナノ炭素質と磁性金属との界面に注目し, 物性・分光的アプローチにより分子スピントロニクス素子の動作機構を探索している¹⁾。グラフェンと磁性金属の界面では, グラフェン/Ni(111)やグラフェン/Co(0001) 界面においてスピンフィルター効果が発現することが理論的に指摘されているが²⁾, グラフェン/磁性金属ヘテロ接合を用いた垂直通電 (CPP) スピンバルブ素子では大きな磁気抵抗効果は実験的には観測されていない³⁾。

本研究では, Co/グラフェン/Co 接合を用いた CPP スピンバルブ素子においてグラフェンの層数による磁気伝導特性の変化を調べた。層数制御したグラフェンは化学気相蒸着法で作製⁴⁾し, Co 電極間に挿入することで素子を作製した。グラフェン層数の異なる一連の素子において, オーミック接触が形成されるとともに, 室温において正の磁気抵抗が観測された。磁気抵抗比は単層と3層グラフェンを用いた素子でそれぞれ 0.1 - 0.2% および 0.7 - 0.8% であることが分かった。

グラフェン層数によるグラフェン/Co 界面の電子状態の変化を顕微ラマン分光で調べたところ (図), 単層と2層以上のグラフェンでは, 界面における Co との相互作用の様相が異なることが分かった。2層以上のピークシフトは Co からの電荷 (電子) のドーピングにより説明することができる。一方, 単層グラフェンで観察された低波数側への大きなシフトは電荷移動のみでは説明できない強い界面相互作用に由来する⁵⁾。このことから, 単層グラフェンを用いた素子では, Co 界面における強い相互作用によりグラフェンの電子状態が変調しスピン注入効率が低下したことが考えられる。

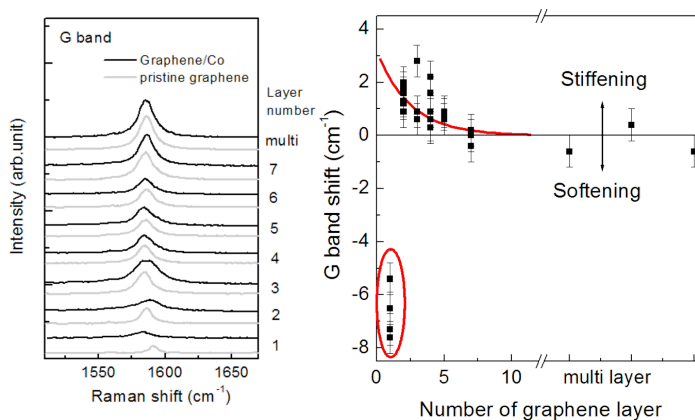


Figure: A pair of G band Raman spectra obtained from the graphene/Co heterostructure and pristine graphene with different graphene layers number (left). Graphene layers number dependences of the Raman G band shifts by Co depositions (right).

参考文献

- 1) S. Sakai et al., Appl. Phys. Lett. 91 (2007) 242104. Y. Matsumoto et al., Chem. Phys. Lett. 470 (2009) 244.
- 2) Karpan et al., Phys. Rev. Lett. 99 (2007) 176602.
- 3) T. M. G. Mohiuddin et al., IEEE Trans. Magn. 33 (2008) 2624. M. Z. Iqbal et al., Nano Res. 6 (2013) 373.
- 4) S. Entani et al., J. Appl. Phys. 111 (2012) 064324.
- 5) S. Entani et al., J. Phys. Chem. C 114 (2010) 20042.

グラフェンナノリボンにおけるエッジ状態を介した伝導の水素付加による影響

犬塚恒平, 本多周太, 佐野伸行
(筑波大・電物)

Effect of Hydrogenation on Spin Transports via the Edge States in Graphene Nano-Ribbon

Kouhei Inuzuka, Syuta Honda, and Nobuyuki Sano
(Univ. Tsukuba)

はじめに

グラフェンは数 μm 以上の非常に長いスピン緩和長を持つことが実験的に確認されており、スピン伝導素子への利用が提案されている。また、グラフェンのエッジにはスピン分極したエッジ状態に起因する磁性が現れるという結果が計算により報告されている¹⁾。伝導方向にジグザグエッジを持つ幅の狭いグラフェンナノリボン(GNR)ではスピン分極した σ 軌道の少数スピンのエッジ状態($\text{ES}\sigma$)がフェルミエネルギー近傍に形成される。片方のエッジのみ水素化された GNR においては、 $\text{ES}\sigma$ を介した伝導を利用することで大きくスピン偏極した伝導を得られた。しかし、ジグザグエッジが水素化されることにより $\text{ES}\sigma$ は消滅する。部分的に水素化された場合、 $\text{ES}\sigma$ が存在する領域と消滅した領域が混在する。ただし一部でも水素が付加されていない領域があれば、 $\text{ES}\sigma$ を介した電気伝導は起こりうる。そこで、本研究では、微視的理論を用いた伝導計算により、水素付加が $\text{ES}\sigma$ を介した伝導にどのように影響を与えるかを調べる。

計算方法

グラフェンと正方格子の金属リード接合を用いる。グラフェンの幅は8 chains, 伝導方向の長さ(L)は50.5 chainsであり、金属リードは半無限平面である。グラフェンは伝導方向にジグザグエッジを持っており、アームチェアエッジで金属リードと接合する。また、向かい合ったジグザグエッジのうち片側を完全に水素化し、もう片方をランダムに水素化した場合、部分的に水素化した場合(Fig1)を考慮する。電子状態、電気伝導の計算にはタイトバインディングモデル、線形応答理論に基づく久保公式を用いる²⁾。

計算結果

ランダムに水素化した構造においては、 $\text{ES}\sigma$ のコンダクタンス $\Gamma\sigma$ のサンプル平均は水素付加の量に対し指数関数的に減衰した。また、水素が Fig.1(a)のように中心から連続で N_H 個付加された場合(I)は、水素付加に対して $\Gamma\sigma$ は急峻に減衰した(Fig.2 実線)。Fig.2(b)のように N_H 個の水素付加と一つ空きが連続的になっている構造(II)における $\Gamma\sigma$ は $\Gamma\sigma$ と近い値となった(Fig.2 破線)。つまり、水素が多く付加した場合においても σ 軌道のエッジ状態を介した伝導が起こることが明らかとなった。

参考文献

- 1) N. Ota: J. Mag. Soc. Jpn., **37**, 3 (2013).
- 2) Yamamura, et., al.: J. Mag. Soc. Jpn., **34**, 34 (2010).

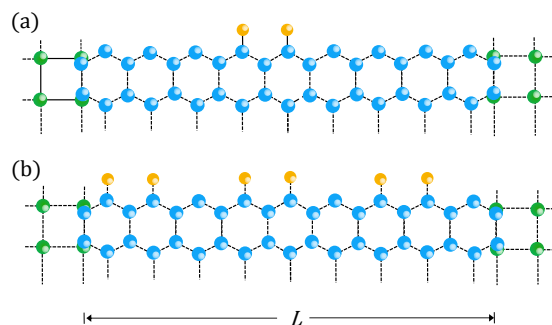


Fig. 1 Structure of one-edge-side of the metal/ GNR/metal junction for (a) hydrogenated type I and (b) type II with $N_H=2$ and $L=9.5$ chains.

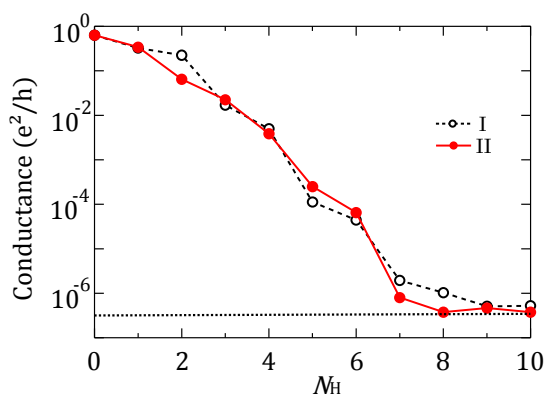


Fig. 2 conductance via $\text{ES}\sigma$ of the junction with $L=50.5$ chain. Dotted line is the conductance of the junction with all-hydrogenated GNR.

MBE による ZnTe/ZnMnTe エピタキシャル膜の発光条件の検討

今村正明、藤村優貴
(福岡工大)

Luminescence conditions for ZnTe/ZnMnTe films grown on sapphire substrates by MBE

Masaaki Imamura, Yuuki Fujimura
(Fukuoka Institute of Technology)

はじめに

直接遷移型の II-VI 化合物半導体は発光を示すことが知られている。図 1 に II-VI 化合物半導体 CdTe、ZnTe、ZnSe、ZnS の室温での禁制帯エネルギーの II 族置換磁性元素 Mn 濃度依存性を示す。ZnTe のバンドエネルギーは 2.28 eV ($\lambda = 544$ nm) であり、緑色 LD の発光波長 532 nm (2.33 eV) に非常に近い。われわれは ZnTe/ZnMnTe をサファイア基板 C 面で MBE により作成した単結晶膜の発光を調べることにした。最終的な目標はその超格子膜の発光と磁性半導体膜の発光が磁界 (Zeeman 効果) と関係するかを実験的に調べることであるが、まず ZnTe および ZnMnTe 単層膜の発光条件を把握する必要がある、基礎的実験を積み上げていくことにした。

実験方法

ZnTe/ZnMnTe 膜は MBE 装置により基板温度 300°C、ZnTe セル温度 470°C、MnTe セル温度 670-690°C で、8 時間蒸発させて約 2 μ m の膜を作成した。蒸着速度は約 1 Å/s である。発光スペクトル測定装置は Vortran の 405nm、100mW LD 光源、波長駆動可能な Jobin Yvon H-20 モノクロメータと浜松ホトニクス の PMT により構成した。モノクロメータ入射側に 450nm のロングパス・フィルタを使って 405nm LD 光を遮光している。

実験結果

図 2(a) に参照試料 ZnTe バルク単結晶板の XRD による回折スペクトルを示す。試料厚は 0.3mm である。2 $\theta = 25.2$ 度に強い (111) 回折スペクトルを観測した。図 (b) はサファイア基板 C 面に成長させた ZnTe 膜であるが同じように (111) 面の強いスペクトルを観測した。発光は図 3(a) と (b) に示すように、バルクでは室温でも強い発光が観測できるが、薄膜試料では明確なスペクトルは観測できていない。膜の RHEED パターンは図 4 に示すようにハローに近いものであったことから、XRD パターンと併せて、膜は柱状結晶の多結晶と推察される。今後、サファイア面の仕上げ研磨をさらにに行い、熱リン酸による基板表面研磨ひずみ除去を行うなど、表面処理を充分に行って、バルク単結晶試料と同程度の結晶性を有する ZnTe/ZnMnTe 膜を得たい。

発光スペクトル測定について及び ZnTe 単結晶板の提供を頂いた石川高専の瀬戸悟教授に感謝します。

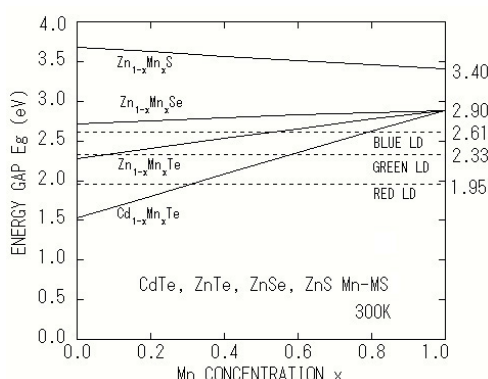


Fig. 1. Mn concentration dependence of E_g

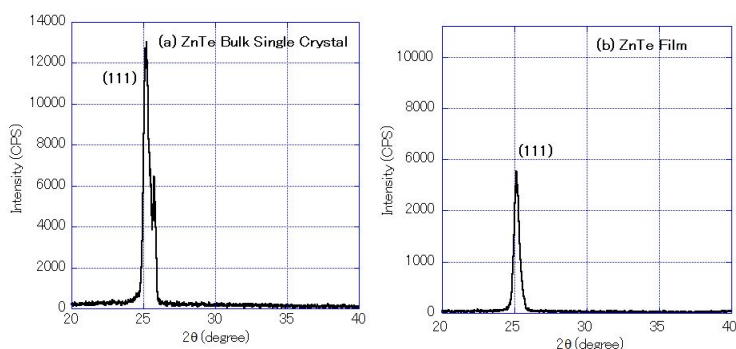


Fig. 2. X-ray diffraction spectra

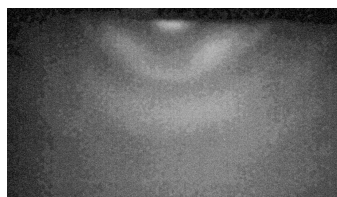
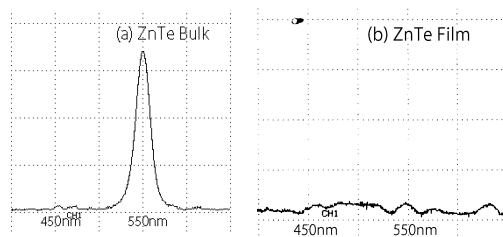


Fig. 4. RHEED pattern.

Fig. 5. Photo-luminescence.



反応性スパッタ法で作製した Mn_4N 薄膜の磁気特性 ~窒素量依存性~

鹿原 和樹, 角田 匡清
(東北大学)

Magnetic properties of Mn_4N films fabricated by reactive sputtering method ~dependence of N content~

Kazuki Kabara and Masakiyo Tsunoda
(Tohoku Univ.)

はじめに

垂直磁気異方性(PMA)を有する磁性薄膜の用途は数多く挙げられる。その中で低飽和磁化を有する材料は、低反転磁界分布を有する HDD 用垂直磁気記録媒体材料[1]、低磁化反転電流密度のスピントランジスタ型ランダムアクセスメモリ素子材料として期待されている。フェリ磁性で低飽和磁化を有する Mn_4N 薄膜が PMA を示すことが知られ [2][3]、分子線エピタキシー法により作製した試料では $2.2 \times 10^6 \text{ erg/cc}$ の PMA が近年報告されている[4]。 Mn_4N は fcc Mn の体心位置に窒素が侵入した構造を持つことから、窒素が Mn_4N 薄膜の磁気特性に果たす影響を明らかにすることを目的に、 Mn_4N 薄膜の作製時窒素流量比依存性について検討を行った。

実験方法

MgO 単結晶基板上に 100 nm の Mn-N を作製した。Mn-N 薄膜は、Mn ターゲットを用いて Ar+0-14% N_2 の混合ガスによる反応性マグネトロンスパッタ法で形成し、堆積直後に成膜装置内で赤外線加熱処理を施した。また、試料冷却後、酸化防止層として Ta 薄膜を 2 nm 堆積させた。作製した薄膜の結晶構造を X 線回折法(XRD)で、磁気特性を振動試料型磁力計および磁気トルク計を用いて測定した。

実験結果

Fig.1 に窒素流量比を変化させた Mn_4N 薄膜の in-plane XRD プロファイルを示す。全ての窒素流量比において Mn_4N の(200),(220)の回折線が観測された。また、MgO 基板と Mn_4N 薄膜の間に Mg O[200](002) $\parallel$ Mn_4N [200](002)のエピタキシャル関係があることが確認できる。さらに Mn_4N の規則線である(100),(110)回折線が確認できることから良質な Mn_4N 薄膜ができている。しかしながら、窒素流量比 2%において $\alpha, \beta\text{-Mn}$ 、14%において Mn_3N_2 の回折線が観測されたことから、 Mn_4N 単相を得るためには窒素流量比の制御が重要であることが分かった。

Fig.2 に磁気特性の窒素流量比依存性を示す。上部には構造解析から得られた薄膜中の結晶相に関する情報を付記している。窒素流量比 8%において飽和磁化(110 emu/cc)、垂直磁気異方性エネルギー($9 \times 10^5 \text{ erg/cc}$)共に最大値を示している。窒素流量比を 8%→5%へと小さくすると、 Mn_4N 単相に関わらず飽和磁化、垂直磁気異方性エネルギーどちらも急激に減少している。XRD による構造解析の結果からは、窒素流量比の低下に伴って体心位置の窒素が欠損していることが示唆された。すなわち窒素が欠損した単位胞近傍では、フェリ磁性配列した Mn の磁気モーメントが反強磁性配列に変化したために飽和磁化および PMA が減少したものと考えられる。

参考文献

- 1) H.Nemoto, *et al.*, J. Magn. Mag. Mater. **320** (2008) 3144-3150.
- 2) K. Ching *et al.*, Appl. Surf. Sci. **92** (1996) 471.
- 3) S. Nakagawa *et al.*, J. Magn. Mag. Mater. **140-144** (1995) 715-716.
- 4) Y. Yasutomi *et al.*, J. Appl. Phys. **115** (2014) 17A935

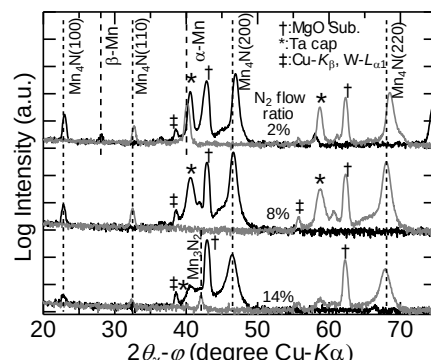


Fig.1. In-plane XRD profile of Mn_4N films. The scattering factor (Q) was set along MgO[200](black line) and MgO[220](gray line).

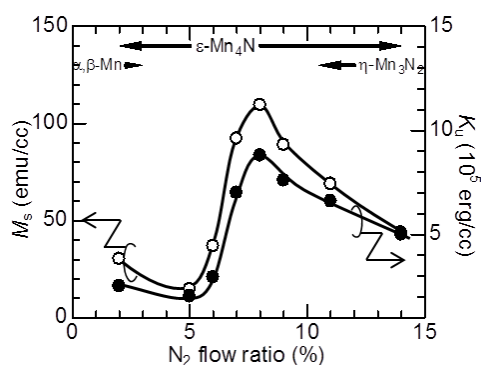


Fig.2. Magnetic property of Mn_4N films as a function of N_2 flow ratio.

対向ターゲット式スパッタ法を用いた垂直磁気異方性を有する

Co₂FeSi/MgO 及び MgO/Co₂FeSi 構造の作製と評価

鈴木 隆寛, 篠原 光貴, 高村 陽太, 中川 茂樹

(東京工業大学 理工学研究科 電子物理工学専攻)

Co₂FeSi/MgO and MgO/Co₂FeSi structures with perpendicular magnetic anisotropy formed by facing targets sputtering method

T. Suzuki, K. Shinohara, Y. Takamura, and S. Nakagawa

(Dept. of Physical Electronics, Tokyo Institute of Technology)

はじめに

垂直磁気異方性を有するハーフメタル強磁性体(HMF)は, 垂直磁化型磁気トンネル接合(MTJ)に適用可能な高スピン分極材料として重要である. Co₂FeSi(CFS)や Co₂FeSi_{1-x}Al_xなどの Co₂Fe 系フルホイスラー合金は MTJ のトンネル磁気抵抗(TMR)比の温度依存性が小さな HMF 材料として期待されている. また, CoFe 系合金は MgO との界面において界面磁気異方性が誘起され, 垂直磁気異方性を持つことが報告されている.¹⁾これまで我々は, 対向ターゲット式スパッタ法により CFS と MgO 薄膜の積層構造を作製し, HMF として期待される CFS においても垂直磁気異方性が発現することを示してきた.²⁾本研究では, CFS の MTJ 構造への適用可能性について検討を行った.

試料作製と評価方法

試料は対向ターゲット式スパッタ法を用いて作製した. 試料の構造は, MTJ の下部電極を想定した MgO(001)単結晶基板/Pd バッファ(20 nm)/CFS(1 nm)/MgO(2 or 0 nm)/Ta と, 上部電極を想定した MgO 基板/Pd(20 nm)/MgO(2 nm)/CFS(1 nm)/Ta とした. 全ての層は基板温度 300°C で成膜した. CFS 層の成膜条件は, Ar 雰囲気(分圧 0.13 Pa), 成膜レート:0.05 nm/s とした. MgO 層は Mg ターゲットと酸素による反応性スパッタにより作製した. 結晶構造評価には X 線回折(XRD)を, 磁気特性評価には試料振動型磁力計(VSM)を用いた.

実験結果

Fig. 1 に CFS 層が MgO 層の下部に位置する下部電極型構造試料の面直磁場に対する磁化曲線を示す. 明瞭な角型比を持ったループが得られ, 作製した試料が垂直磁気異方性を有していることが分かった. 一方, MgO 層を堆積しない試料では困難軸の様なループを確認した. これは, 垂直磁気異方性の起源が CFS 層と MgO 層の界面によるものであることを示している. Fig. 2 に CFS 層が MgO 層の上部に位置する上部電極型構造試料の磁化曲線を示す. MgO 上に CFS を形成した場合, 垂直磁気異方性は確認できなかった. これは CFS の膜質の違いによるものと考えられる. 講演では, バッファ層や CFS 層, MgO 層の作製条件を調節し, MgO と CFS の積層構造において垂直磁気異方性が得られる条件について議論したい.

参考文献

- 1) Z. C. Wen, H. Sukegawa, S. Mitani, and K. Inomata, J. Appl. Phys. **98**, 242507 (2011).
- 2) Y. Takamura, T. Suzuki, Y. Fujino, and S. Nakagawa, J. Appl. Phys. **115**, 17C732 (2014).

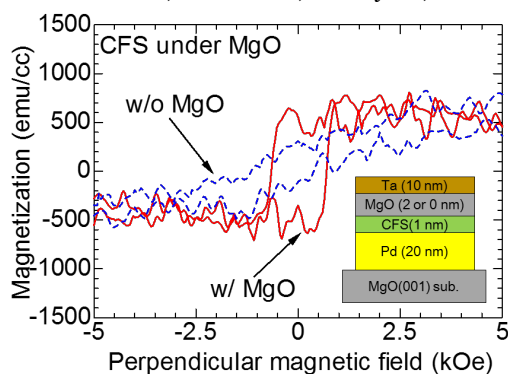


Fig. 1. M-H loops of CFS films under an MgO film and w/o an MgO film

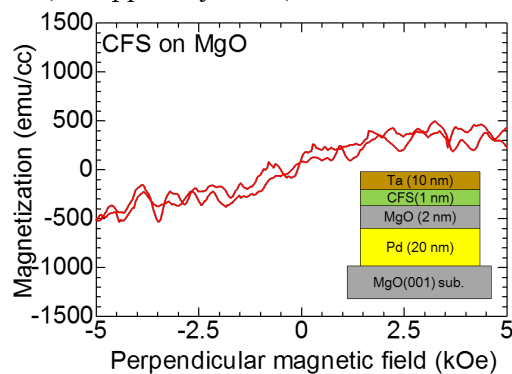


Fig. 2. An M-H loop of a CFS film on an MgO film

遠赤外円偏光を用いたホイスラー合金薄膜のバンドギャップ測定

タリク・アルフウェイメル¹、ランジダー・アブドラ¹、オリバー・ウィアー¹、テオ・ヒュミニウク¹、
ロバート・カーペンター¹、モハメッド・エル・ゴマティ¹、廣畑貴文^{1,2}
(¹ヨーク大、²JST さきがけ)

Band-gap measurements of Heusler alloy films using circularly-polarised infrared light
T. F. Alhuwaymel¹, R. M. Abdullah¹, O. Whear¹, T. Huminiuc¹, R. Carpenter¹, M. El-Gomati¹
and A. Hirohata^{1,2}
(¹ Univ. of York and ² JST-PRESTO)

はじめに

スピントロニクス素子の効率を向上させるために、スピン分極率が 100%となるハーフメタル強磁性体薄膜の開発が急務である。特に室温ハーフメタルとして期待されているホイスラー合金薄膜においては、その規則度とスピン分極率の実験的な関連づけが望まれる。そこで、本研究では遠赤外線を用いたバンドギャップ測定手法を提案し、室温ハーフメタルの実現に向けたフィードバックを確立する。

実験方法

図 1 に示すように遠赤外円偏光を用いて、ホイスラー合金薄膜中の電子スピンを励起し測定した¹⁾。まず円偏光をチョッパーにより 17 Hz のパルスとして、薄膜表面に 45°の角度で入射した。薄膜底面に永久磁石を固定し、その磁場の向きを N 極(S 極)上向きに反転させることで、マジョリティーもしくはマイノリティー電子スピンのみを励起した。この際マイノリティースピンのみがフェルミ面近傍にバンドギャップを有するため、バンドギャップの大きさに応じた遠赤外線吸収が起きると期待される。従って磁場の向きに依存した反射光強度の差を測定することで、バンドギャップの大きさを見積もることが可能となる。なお反射光は遠赤外光用に設計した検出器を用いて、ロックイン増幅器を介して測定した。

実験結果

2 nm 厚 Ru 層で保護された 23 nm 厚の多結晶 Co₂FeSi 薄膜を室温測定した結果を図 2 に示す。成膜直後の試料及び 400°C で 3~6 時間熱処理した試料共に、13.2 μm の波長で約 200 mV の反射強度の低減(遠赤外光の吸収)が測定された。これは約 0.094 eV のバンドギャップに対応する。このように室温でもバンドギャップを測定することが可能であることがわかり、今後のハーフメタル合金評価に非常に有用であると期待される。

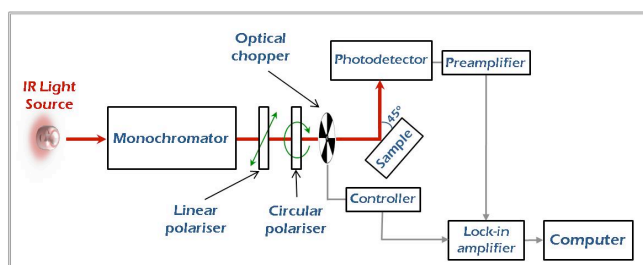


Fig. 1 Schematic diagram of the experimental setup.

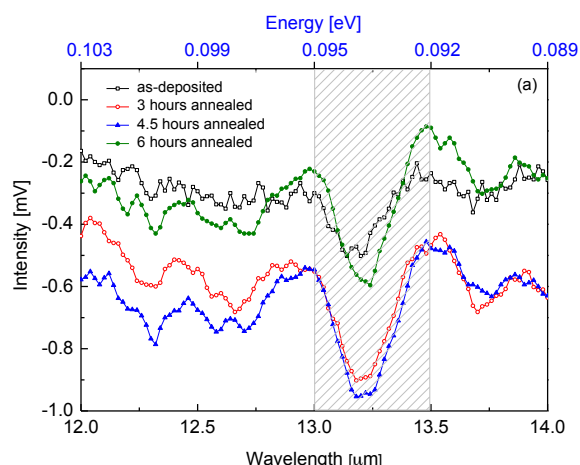


Fig. 2 Difference in intensity between the fields with the N-/S-pole upwards for Co₂FeSi/MgO as-deposited and after annealing at 400°C for < 6 h.

参考文献

- 1) A. Hirohata *et al.*, *Curr. Opin. Solid State Mater. Sci.* **10**, 93 (2006).
- 2) T. F. Alhuwaymel *et al.*, *IEEE Trans. Magn.* (in press).

ホイスラー合金 Mn-Co-V-Ga 薄膜の磁気特性

土屋朋生, 杉山知子, 窪田崇秀, 成田一生, 水口将輝, 上野哲朗*, 井波暢人**, 小野寛太**, 高梨弘毅
(東北大金研, *NIMS, **KEK)

Magnetic properties of Mn-Co-V-Ga Heusler alloy thin film

T. Tsuchiya, T. Sugiyama, T. Kubota, I. Narita, M. Mizuguchi, T. Ueno*, N. Inami**,
K. Ono**, and K. Takanashi
(IMR, Tohoku Univ., *NIMS, **KEK)

はじめに

Mn 基のフルホイスラー合金は、一部の組成がフェリ磁性であり、また、伝導電子スピンの完全に偏極したハーフメタル材料であるとされている。¹⁾ Mn_2VAl , Mn_2VGa はその代表的な組成であり、バルク試料、薄膜試料それぞれの分野でこれまでに数多くの研究結果が報告されている。²⁻⁵⁾

フェリ磁性ハーフメタルホイスラー合金は強磁性ホイスラー合金と比較して磁化が小さいため、スピントルクを利用した磁化反転における電流密度の低減に有効であると考えられる。更に、Galanakis らの理論計算に依れば、 Mn_2VZ ($Z = \text{Al}$ 等) ホイスラー合金の Mn サイトを Co で置換することで、Mn の磁気モーメントが Co のモーメントによって補償され、ある組成で磁化ゼロのハーフメタル材料となるとされており⁶⁾、自在に磁化の大きさを制御できるハーフメタル材料として興味深い組成である。

本研究では、 $(\text{Mn-Co})_2\text{VGa}$ 薄膜の Co 組成を系統的に変化させたエピタキシャル薄膜を作製し、その磁気特性を明らかにすることを目的とした。

実験方法

試料は超高真空マグネトロンスパッタ装置を用いて作製した。基板は MgO (100) 単結晶基板を用いた。成膜前に Ar イオンで基板表面をミリングし基板表面の不純物を除去したのちに薄膜試料を下地層を用いずに成膜した。成膜時には基板温度を室温から 700°C の間で変化させた。試料の成膜は Mn, Co, V-Ga の 3 種の金属ターゲットを用いた同時スパッタにより行い、薄膜組成は各々のターゲットへの投入電力を変化させることで調整した。薄膜の組成分析は電子プローブマイクロアナライザー (EPMA) を用い、結晶構造、磁気特性をそれぞれ、X 線回折装置 (XRD)、振動型磁力計 (VSM) を用いて評価した。

実験結果

XRD による結晶構造解析の結果、基板温度を 700°C とすることで Co 組成 0–35at.% の範囲で $L2_1$ 規則構造を有するエピタキシャル薄膜が得られた。Fig. 1 に室温で測定した飽和磁化の Co 組成依存性を示す。Co 組成の増大に伴い磁化は線型的に減少を示し、Co 25at.% 以上の組成ではほぼゼロとなる。磁化がゼロとなる組成は文献 6) の計算結果と一致するものの、磁化が理論予測通り補償しているかどうかについてはさらなる調査が必要である。講演では、低温での磁化測定、磁気円二色性による磁気モーメントの測定結果についても議論する予定である。

謝辞：本研究の一部は JST 国際科学技術共同研究推進事業 (SICORP-EU, HARFIR) の助成により行われた。

参考文献

- 1) I. Galanakis, *et al.*: Phys. Rev. B **66**, 174429 (2002).
- 2) Y. Yoshida, *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **50**, 2003 (1981).
- 3) K. Ramesh, *et al.*: J. Mag. Mag. Mater. **320**, 2737 (2008).
- 4) T. Kubota, *et al.*: Appl. Phys. Lett. **95**, 22503 (2009).
- 5) C. Klewe, *et al.*: J. Phys. Cond. Matt. **25**, 076001 (2013).
- 6) I. Galanakis, *et al.*, Phys. Rev. B **75**, 092407 (2007).

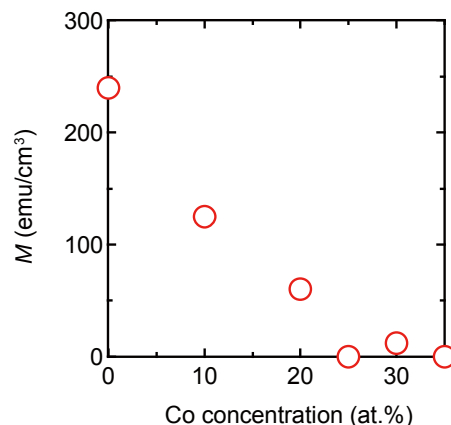


Fig. 1 Co-concentration dependence of saturation magnetization (M_s) for the Mn-Co-V-Ga films

MnCoGa 合金薄膜における異常ネルンスト効果

水口将輝、井上政己、杉山知子、窪田崇秀、高梨弘毅
(東北大金研)

Anomalous Nernst effect in MnCoGa alloy thin films
M. Mizuguchi, M. Inoue, T. Sugiyama, T. Kubota, K. Takanashi
(IMR, Tohoku Univ.)

はじめに

MnGa 合金には、組成の異なるいくつかの規則合金が存在する。L1₀ 型 MnGa および D0₂₂ 型 Mn₃Ga 規則合金は、比較的大きな結晶磁気異方性を示す一方、そのギルバート緩和定数が他の垂直磁化材料と比較して小さいため、様々なスピントロニクスデバイスへの応用が期待されている。特に、D0₂₂ 型 Mn₃Ga 規則合金は、Co 原子を添加することにより、磁気異方性の大きさを容易に変化させられることが知られており、この系の様々な磁気効果を調べることは興味深い^[1]。我々は、これまでに L1₀ 型 FePt 合金薄膜を中心として、その異常ネルンスト効果の測定を行い、磁気異方性との関連などを明らかにしてきた^[2]。そこで、本研究では MnCoGa 合金薄膜の熱磁気効果を明らかにすることを目的として、その異常ネルンスト効果を調べた。Co の添加量を調整することにより磁気異方性を変化させた試料について、異常ネルンスト効果の温度依存性などを詳細に調べた。

実験方法

超高真空マグネトロンスパッタリングにより試料を成膜した。MnGa ターゲットおよび Co ターゲットを用いて、MgO(001)基板上に基板温度 500°C で MnCoGa 薄膜を同時蒸着した。試料の膜厚は 30 nm とした。作製した薄膜の磁気特性の評価を超伝導量子干渉計 (SQUID) を用いて行った。異常ネルンスト効果の測定は、薄膜面内方向に温度勾配を付与した状態で、物理特性測定装置 (PPMS) により試料面直方向の磁場を掃引し、薄膜面内で温度勾配と垂直方向に発生する異常ネルンスト電圧を測定することにより行った。

実験結果

XRD による結晶構造解析の結果、Co 原子の添加にともない、Mn₃Ga ピーク強度は減少し、Mn₂CoGa ピーク強度が増加することが分かった。これは、添加された Co 原子が Mn 原子を置換していることを示す結果である。これらの試料について、異常ネルンスト効果の測定を行った。図 1 に Co を添加していない Mn₃Ga 薄膜および Co を 18% 添加した MnCoGa 薄膜について、異常ネルンスト電圧の外部磁場依存性を室温で測定した結果を示す。双方の試料ともに明確な電圧のヒステリシスが観測されたが、その形状は異なるものであった。それぞれについて磁化曲線と良く一致する形状が観測されており、これらが異常ネルンスト効果を反映したヒステリシスであることが示唆された。発表では、磁気異方性と異常ネルンスト効果の関係や、温度依存性についても詳細に議論する。

本研究の一部は、科学研究費補助金・基盤(S) (25220910)の支援を受けた。

[1] T. Kubota *et al.*, J. Appl. Phys., **113**, 17C723 (2013).

[2] M. Mizuguchi *et al.*, Appl. Phys. Express, **5**, 093002 (2012).

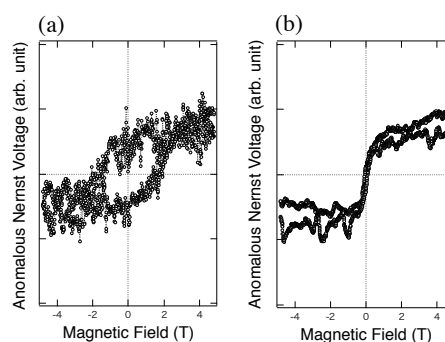


Fig. 1 Anomalous Nernst voltage measured at room temperature for (a) Mn₃Ga thin film and (b) MnCoGa (Co = 18%) thin film.

微細加工素子を用いた非磁性物質へのスピンプンピング効果の評価

山本 竜也、関 剛斎、小野 新平*、三輪 一元*、高梨 弘毅

(東北大金研、*電力中央研究所)

Characterization of spin pumping effect in microfabricated devices with nonmagnetic materials

T. Yamamoto, T. Seki, *S. Ono, *K. Miwa, and K. Takanashi

(IMR, Tohoku Univ., *Central Research Institute of Electric Power Industry)

緒言

電子の電荷とスピンを同時に利用する「スピントロニクス」がさらなる発展を遂げるためには、様々な物質に対して効率良くスピン注入を行う手法の確立が不可欠である。特に半導体におけるスピンの制御は、スピントロニクスデバイスの多機能化に向けた重要な課題の一つであり、近年では無機半導体だけでなく有機半導体におけるスピン注入・スピン輸送も注目を集めている。有機半導体は、軽元素で構成されていることから長距離スピン輸送が期待され、高性能かつ柔軟という高い付加価値を持ったデバイスが実現できると考えられる^[1]。既に有機半導体においてスピン注入を試みたという報告はいくつか存在するが、有機半導体-強磁性金属間におけるインピーダンス不整合に起因したスピン注入効率の低下が原因で、スピン注入およびスピン輸送に関して統一的な見解は未だ得られていない。

インピーダンス不整合の問題を回避し、有機半導体へ高効率にスピン注入を行う手法の候補としてスピンプンピング効果が挙げられる。スピンプンピング効果とは、強磁性体/非磁性体接合において磁化の歳差運動を励起することによりスピン角運動量が非磁性体の伝導電子へと移行される現象である^[2]。スピンプンピングにより生成されたスピン流は界面における電荷の移動を伴わないため、インピーダンス不整合の影響を受けないとされる^[3]。そこで本研究では、スピンプンピングを用いて、現在有機半導体において最も高い移動度が報告されているルブレン単結晶、および非磁性金属 Cu へのスピン注入を試みた。

実験方法

Fig. 1 に作製した素子の模式図を示す。コプレーナ導波路(CPW)上にスピン注入源となるパーマロイ(Py)矩形電極、および Pt 細線を配置し、Py-Pt 間をルブレン単結晶もしくは非磁性 Cu 細線で架橋した。ルブレン単結晶についてはイオン液体フィルム(ILF)でカバーし、ゲート電圧(V_G)を変化させながら Py の強磁性共鳴(FMR)スペクトルを測定することでルブレン中におけるスピンプンピング効果の評価を行った。

実験結果

Fig. 2a に Cu 細線を有するデバイスの FMR スペクトルを示す。ここでは Pt 細線有り と Pt 細線無しの素子を作製し、Pt 細線有りの素子においては Py-Pt 間を 200 nm とした。2つの素子において共鳴周波数に変化は見られなかったが、スペクトル線幅に若干の増大が見られた。この線幅の増大は、Pt 細線を接続したことによって、Cu 細線中のスピンプンピング由来のスピン蓄積が変化したことと起因すると考えられる。Fig. 2b はルブレン単結晶を有する素子において V_G を変えて測定したスペクトルである。 $V_G = 0$ V の場合に比べて $V_G = \pm 1$ V において共鳴線幅の若干の増大が観察され、 V_G の印可によりルブレン中のキャリア濃度が変化し、スピンプンピングの効率が変化したことを示唆する結果が得られた。

参考文献

- [1] V. A. Dediu *et al.*, Nat. Mater. **8**, 707 (2009).
- [2] K. Ando *et al.*, Nat. Mater. **10**, 655 (2011).
- [3] Y. Tserkovnyak *et al.*, Phys. Rev. Lett. **43**, 117601 (2002).

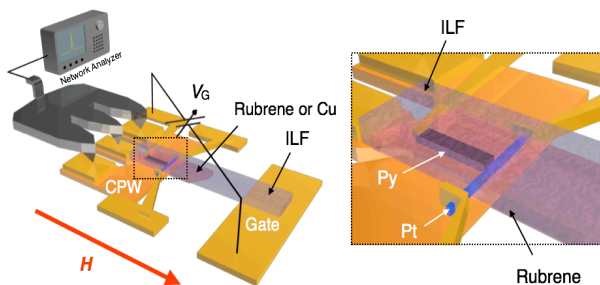


Fig. 1: Schematic illustration of the experimental setup. A Rubrene crystal or a nonmagnetic Cu wire was placed as a bridge between the Py element and the Pt wire. An ILF was put on the rubrene crystal to apply V_G to the device during the FMR measurements.

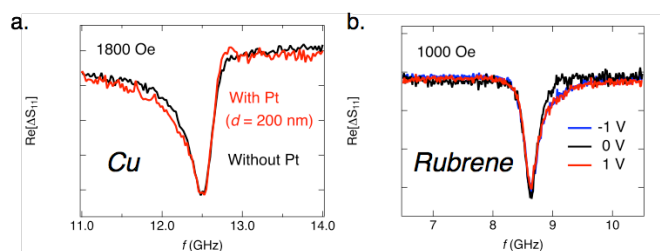


Fig. 2: a. FMR spectra measured for the device with Cu. **b.** FMR spectra measured for device with rubrene under various V_G . The measurements for **a.** and **b.** were performed with applying $H = 1800$ Oe and 1000 Oe, respectively.

非磁性ナノ細線の形状効果を用いた純スピンの増幅

ランジダー・アブドラ¹、アンディー・ヴィック¹、ベン・マーフィー¹、廣畑貴文^{1,2}
(¹ヨーク大、²JST さきがけ)

Spin-current amplification by geometrical effects in a lateral spin-valve

R. M. Abdullah¹, A. J. Vick¹, B. A. Murphy¹ and A. Hirohata^{1,2}

(¹ Univ. of York and ² JST-PRESTO)

はじめに

将来のスピン트로ニクス素子の一翼を担うと期待されている面内スピバルブにおいては、非局所手法を用いると、非磁性体中にスピン偏極電流が注入され、電子の流れとしての電流は生じない。このためジュール熱などを低減できるという利点がある。ところが、スピン注入子からの距離に応じてスピン偏極電流の大きさが指数関数的に減衰することが問題となっている。そこで本研究では、非磁性体の形状をラチェット状に変更することで、検出子・注入子側に流れるスピン偏極電流の抵抗率に差をつけて、検出子側への電流のみを増幅することを目指す¹⁾。

実験方法

図1に示すような強磁性 NiFe ナノ細線(線幅: 200 nm)と非磁性 Cu ナノ細線(線幅: 100 nm)からなる面内スピバルブ素子を、電子線描画と電子ビーム蒸着を組み合わせで作製した。NiFe 細線間距離は 200 nm とし、その中央に底辺 100 nm・高さ h nm ($0 \leq h \leq 60$ nm) 直角三角形ラチェット構造を有する Cu 細線を配置した。なお、NiFe 細線の長さは 6 μ m とし、一方のみ両端を鋭角に加工することで磁化反転磁場に差をつけている。測定は室温で 45 μ A の電流を印加して、非局所 DC reversal 法を用いて行った²⁾。

実験結果

図2の通り、面内スピバルブに起因する非局所磁気抵抗(V/I)が得られた。通常の Cu ナノ細線($h = 0$ nm)では、NiFe 細線の磁化が平行と反平行配置をとる場合の V/I の差($\Delta V/I$)が (2.81 ± 0.04) m Ω であった。それに対し、 $h = 60$ nm の Cu ラチェット細線では、 $\Delta V/I = (21.5 \pm 0.85)$ m Ω となり、7 倍以上の信号増幅を達成した。このような非磁性体の形状制御によるスピン偏極電流増幅は全く新たな概念であり、スピン트로ニクス素子設計及び応用上で非常に大きな可能性を秘めている。

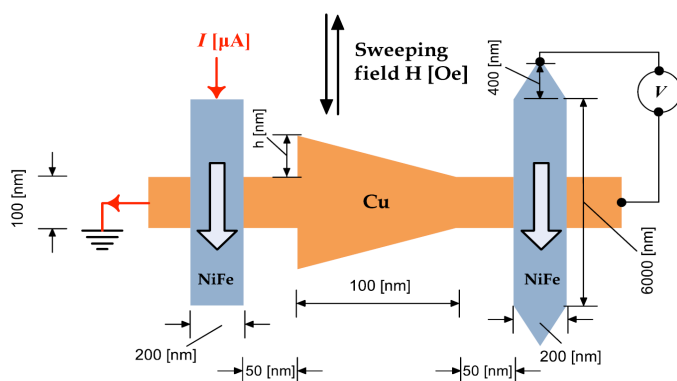


Fig. 1 Schematic diagram of the lateral spin-valve (LSV) with a triangular ratchet.

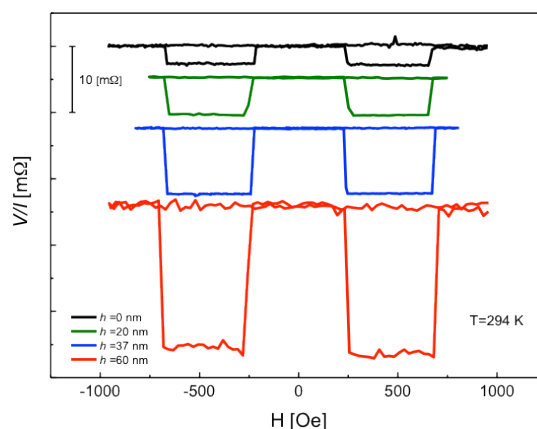


Fig. 2 Non-local signals for the LSV with triangular ratchets with heights (0 ~ 60 nm).

参考文献

- 1) 廣畑貴文、スピンバルブ素子 (特願 2012-246581、PCT/JP2013/079599).
- 2) R. M. Abdullah *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* (submitted).

単層グラフェンを用いたスピン流－電流変換の観測とその評価

大島 諒¹、酒井 敦¹、安藤 裕一郎^{1,2}、新庄 輝也^{1,2}、浜屋 宏平¹、
河原 憲治³、吾郷 浩樹³、白石 誠司^{1,2}
(¹阪大院基礎工、²京大院工、³九大先導研)

Observation and evaluation of spin-charge conversion in single-layer graphene

R. Ohshima¹, A. Sakai¹, Y. Ando^{1,2}, T. Shinjo^{1,2}, K. Hamaya¹, K. Kawahara³, H. Ago³, and M. Shiraishi^{1,2}
(¹Osaka Univ., ²Kyoto Univ., ³Kyushu Univ.)

はじめに

その高い移動度と長いスピン拡散長から、単層グラフェン (SLG) を用いたスピンデバイスへの期待が高まっている[1]。そこで、最近軽元素で構成された高分子材料でのスピン流－電流変換現象の観測が報告された[2]ことを踏まえて、同様にスピン軌道相互作用の小さい物質でありスピン物性の明らかな単層グラフェンにおける逆スピンホール効果を利用したスピン流－電流変換現象の観測とその評価を行ったので報告する。

実験方法

強磁性絶縁体である $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (YIG) 基板に CVD 法を用いて合成した大面積単層グラフェンを転写プロセスにより形成した。その後、検出用電極として金電極を真空蒸着法により形成した。試料サイズは YIG 基板が $1.5 \times 3 \text{ mm}^2$ 、電極幅が 1 mm となっている。測定には電子スピン共鳴 (ESR) 装置を用いて強磁性共鳴を誘起し、ナノボルトメータを用いてそのときの電圧の変化を観察した。

実験結果

Fig. 1 に強磁性共鳴下の電圧の変化を示す。共鳴磁場周りでの明瞭な電圧の変化が観測された。これは逆スピンホール効果による起電圧を示唆する信号である。また、Fig. 2(a), (b) に電圧値のマイクロ波のパワー依存性および磁場の印加角度依存性をそれぞれ示す。磁場の印加角度依存性は逆スピンホール効果によって得られる起電圧 E_{ISHE} は

$$E_{\text{ISHE}} \propto \mathbf{J}_s \times \boldsymbol{\sigma} \quad (1)$$

の関係と一致する。ここで、 $\mathbf{J}_s$ は注入されるスピン流、 $\boldsymbol{\sigma}$ はスピン偏極ベクトルである。さらにスピン流の大きさはマイクロ波のパワーに比例することから Fig. 2 の結果は理論とよい一致を示しており、得られた信号が単層グラフェンの逆スピンホール効果による信号であることを支持するものとなっている。また、以上の結果から単層グラフェンにおけるスピン流－電流変換効率を示すスピンホール角の値が 6.1×10^{-7} と見積もることができた[3]。

参考文献

- 1) M. Shiraishi and T. Ikoma, *Physica E* **43**, 1295 (2011).
- 2) K. Ando *et al.*, *Nature Mater.* **12**, 622 (2013).
- 3) R. Ohshima, M. Shiraishi *et al.*, *Phys. Rev. B*(R), submitted

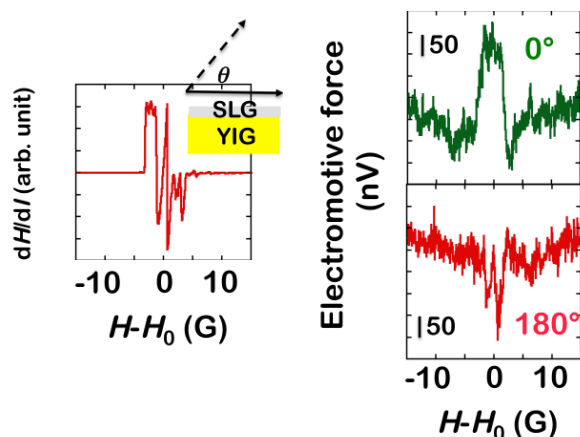


Figure 1: The FMR spectrum of the YIG at $\theta=0^\circ$ (the left panel) and the electromotive force in SLG/YIG at $\theta=0^\circ$ and $\theta=180^\circ$ (the right panel).

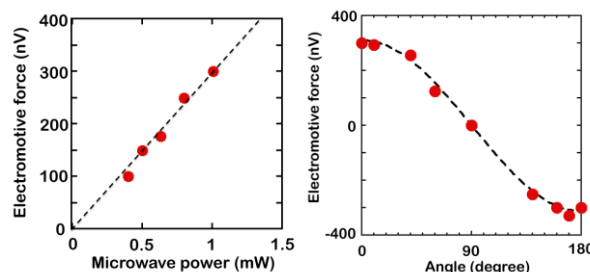


Figure 2: (a) The microwave power dependence of the electromotive force. (b) Angular dependence of the electromotive forces under 1 mW. The filled circles are experimental data.

微小強磁性スピントジョセフソン接合の純スピンの流分布

米田守重、小畑修二*、丹羽雅昭**

(日本電子専門学校、*電機大理工、**電機大工)

Distribution of pure spin current in the small ferromagnetic spin Josephson junction

M.Yoneda, S.Obata, M.Niwa

(Japan Electronics College, *Tokyo Denki University.& School of Science & Engineering, **Tokyo Denki University.& School of Engineering)

はじめに

最近のスピンエレクトロニクス分野で、電荷の流れを伴わない、スピン自由度のみの流れである純スピン流に関する研究が注目されている。我々は、純スピン流による強磁性トンネル接合として、超伝導に於けるジョセフソン接合のアナログとして、微小強磁性スピントジョセフソン接合のモデルを導入し、これを解析するための理論的を構築した。本講演では、微小強磁性スピントジョセフソン接合に於いて、純スピン流の分布について、理論解析した結果を報告する。

モデルと結果

我々は Fig.1 に示すような、厚さ d の非磁性体薄膜の両脇を微小強磁性体でサンドイッチ状に、FM(強磁性)/NM(非磁性)/FM 接合ように挟んだ微小強磁性スピントジョセフソン接合モデルを考案した。

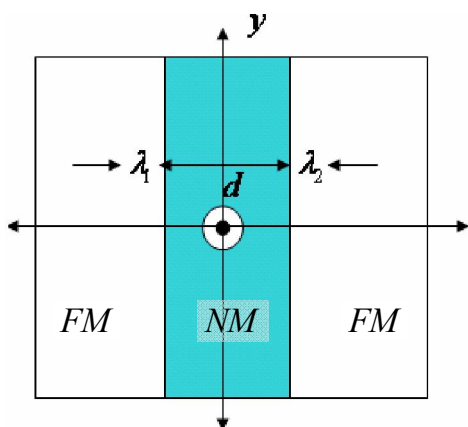


Fig. 1. Schematic of FM / NM / FM junction

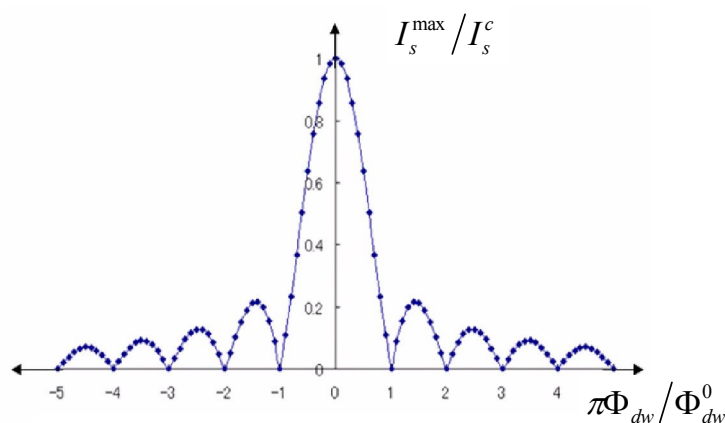


Fig. 2. Dependence of the critical spin current intensity by the number of quantum domain wall

ここで、 λ_1 は左側の強磁性 1 の spin 磁場(電位の次元)の侵入長、 λ_2 は右側の強磁性 2 の spin 磁場の侵入長である。我々の定義した微小強磁性スピントジョセフソン接合とは、接合の最大長 L が、これらの侵入長より小さい場合、 $L > \lambda_1, \lambda_2$ である。このような系について研究するため、我々はスピン磁気モーメントを粒子的に取り扱う理論を提案し、強磁性スピントジョセフソン接合に適した形式に理論を再構築した。我々の理論を用いて計算した結果の一つとして、Fig.2 に、量子磁壁の数による臨界スピン流強度の依存性を示した。

参考文献

- 1) F. S. Nogueira and K.-H. Bennemann: Europhys. Lett. 67 (2004) 620-626

磁性合金薄膜におけるスピン波伝搬の全光学的検出

○水上成美¹, 飯浜賢志², 窪田崇秀¹, レザ・ランジバル^{1,2}, 杉原敦¹, 安藤康夫², 宮崎照宣¹

(¹ 東北大学・原子分子材料科学高等研究機構, ² 東北大学院・工学研究科)

All-optical detection of spin wave propagation in magnetic alloys films

S. Mizukami¹, S. Iihama², T. Kubota¹, R. Ranjibar^{1,2}, A. Sugihara¹, Y. Ando², T. Miyazaki¹

(¹WPI-AIMR, Tohoku Univ., ²Dept. Appl. Physics, Tohoku Univ.)

はじめに スピン波を用いた情報処理デバイスが最近いくつか提案され、いわゆるマグノニクスという分野を形成している¹⁾。スピン波デバイスではスピン波を情報のキャリアとして用いるため、スピン波モードに固有の位相速度、群速度、寿命、導波路端での反射・散乱等の研究などが主に面内膜を中心に精力的に進められてきた。その際のスピン波の評価の手段として、マイクロ波導波路を局所アンテナとして用いたマイクロ波検出法²⁾、更にそれにブリルアン散乱を併用した検出法³⁾、パルスレーザを用いたポンプ・プローブ全光学検出法⁴⁾などが報告されている。他方、垂直磁化薄膜のスピン波伝搬の評価はあまり報告例がない。垂直磁化膜の場合には、異方性磁場が大きいことスピン波の才差が最大で 100 GHz - 1 THz に及び、また十分な振幅のスピン波を発生させるのも難しい。これまで我々は、パルスレーザを用いた全光学的ポンプ・プローブ時間分解磁気光学カー効果を用い、様々な垂直磁化膜の磁化才差と緩和のダイナミクスを報告してきた⁵⁾。本研究ではこれを発展させ、レーザ励起したスピン波の伝搬⁴⁾を顕微磁気光学カー効果で評価することを試みた。

実験方法 Ti: Sapphire レーザーを光源とした標準的なポンプ・プローブ光学系を構築した。対物レンズ (N/A=0.65) を用いてレーザ光を試料上に集光し、プローブとポンプ光のスポット径を各々 ~ 1 および $\sim 3 \mu\text{m}$ とした。また、ポンプならびにプローブ光スポット距離 L を可変とした (Fig. 1)。反射したプローブ光のカー回転角を検光子とバランスストダイオードでロックイン検出し、磁場は電磁石を用いて膜面直方向に印加した。試料には、FeNi 薄膜、ならびに垂直磁化と面内磁化を積層した MnGa(30 nm)/Co(20 nm)膜を用いた。

実験結果 距離 L を変えた際の積層薄膜における時間分解磁気光学カー効果を Fig. 2 に示す。 $L=0 \mu\text{m}$ の場合、遅延時間がゼロのところで超高速減磁による鋭いカー回転角の変化が見られ、その後 MnGa と Co 層の才差運動に対応した非常に速い才差ならびに遅い才差運動が観測されている。距離 L が大きくなると、波形は指数関数的な時間変化から、波束的な時間変化に連続的に移行する。これは局所的に励起された磁化才差運動がスピン波として伝搬していると解釈される。MnGa に起因する周波数の早いスピン波は $L=4 \mu\text{m}$ では既に観測できず、伝搬距離が小さい可能性がある。

謝辞 本研究は NEDO 若手研究 Grant(11B07010d)ならびに科研費補助金若手(A)(24686001)の支援により行われた。

参考文献

- 1) V. V. Kruglyak *et al.*, J. Phys. D **43**, 264001 (2010).
- 2) K. Sekiguchi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **108**, 017203 (2012).
- 3) T. Sebastian *et al.*, Phys. Rev. Lett. **110**, 067201 (2013).
- 4) T. Satoh *et al.*, Nature Photonics **6**, 662 (2012).
- 5) S. Mizukami *et al.*, Phys. Rev. Lett. **106**, 117201 (2011)等.

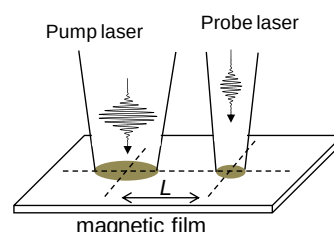


Fig. 1 全光学ポンプ・プローブ磁気光学顕微鏡を用いた非局所的測定の模式図。

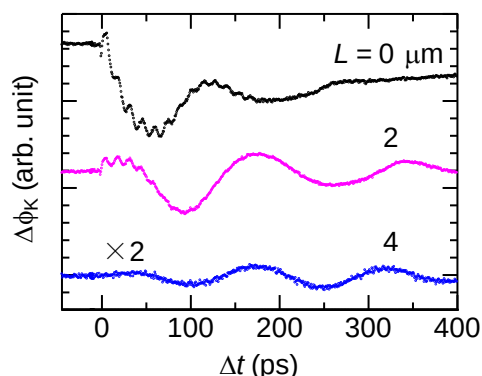


Fig. 2 MnGa/Co 積層膜のスピン波伝搬のポンプ・プローブ光スポット間距離依存性。

エピタキシャル Fe 薄膜を伝搬するスピン波の実時間観測

石田尚子*, 関口康爾**, 介川裕章***

(* 慶大理工, ** JST さきがけ, *** 物質・材料研究機構)

Time-domain measurement of propagating spin waves in an epitaxial Fe film

N. Ishida*, K. Sekiguchi**, and H. Sukegawa***

(*Keio Univ., **JST PRESTO, ***NIMS)

1. はじめに

強磁性薄膜に交流磁場を印加するとスピン波が励起され伝搬する。結晶磁気異方性を有する強磁性薄膜ではダンピング定数 α が結晶方位に依存すると計算されており [1]、スピン波減衰長と結晶軸の関係は興味深い。本研究では、エピタキシャル成長させた Fe 単結晶薄膜の容易軸方向を伝搬するスピン波の電氣的検出を試みた。

2. 実験方法

Fe 単結晶薄膜 (100) 面を MgO(100) 基板上に成膜した。Fe 薄膜は Cr をバッファ層として膜厚 25 nm エピタキシャル成長させた [2]。この Fe 薄膜を電子線描画及び Ar イオンミリング法により $120 \times 200 \mu\text{m}^2$ に加工した。SiO₂(80 nm) を成膜し Fe 薄膜を絶縁した後、SiO₂ 上に Fig. 1 に示すシグナル線 (S) とグランド線 (G) からなるアンテナ 2 組を Ti(5 nm)/Au(200 nm) で作製した。左と右のアンテナはスピン波励起用、検出用のアンテナであり、両アンテナ間の距離 (Gap, g) はスピン波の伝搬距離に対応する [3]。外部磁場 500 Oe を y 方向に印加した状態で、励起用アンテナ (左側) にパルス電圧 V_{in} を印加しスピン波を励起した。スピン波が Fe 薄膜を伝搬して検出アンテナ直下を通過すると、磁化振動による磁束変化が生じ、検出アンテナに誘導起電力が生じる。この誘導起電力をスピン波信号としてオシロスコープで検出した。

3. 実験結果および考察

伝搬距離を変化させたときのスピン波信号の時間変化を Fig. 2 に示す。図に示すようにパケット状のスピン波信号が観測され、パケット中心から到達時間 (t_s) がわかる。スピン波の群速度は $v_g = g/t_s$ から 10 km/s とわかった。外部磁場強度を 10 Oe に低減させ v_g を測定すると、13 km/s となり 30 % 増加した。これは、スピン波の分散関係から計算される v_g の傾向と定性的に一致する。Fe 単結晶薄膜において Py に匹敵する高速スピン波伝搬が実現することがわかった。

参考文献

- [1] K. Gilmore *et al.*, Phys. Rev. B **81**, 174414 (2010).
- [2] H. Sukegawa *et al.*, Phys. Rev. B **86**, 184401 (2012).
- [3] K. Sekiguchi *et al.*, Appl. Phys. Lett. **97**, 022508 (2010).

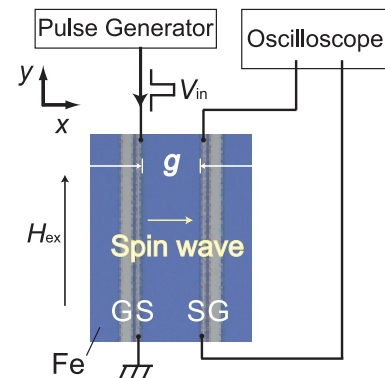


Fig. 1 Schematic illustration of a measurement setup. The widths of the signal line and the ground line are 1 μm and 3 μm , respectively.

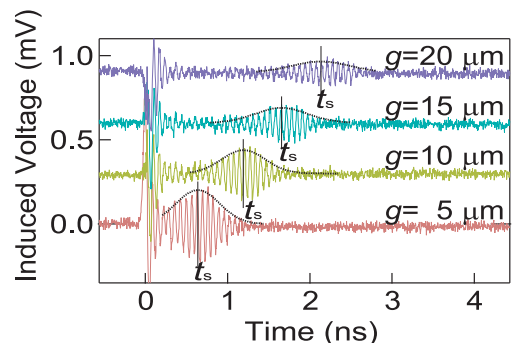


Fig. 2 Spin wave signals with different gap distances (g). Spin wave packets are fitted by the Gaussian function (broken lines).

NiFe 細線におけるスピン波干渉の Brillouin 散乱分光測定

佐藤奈々*, 関口康爾*,**

(* 慶大理工, **JST さきがけ)

Brillouin light scattering spectroscopy of spin wave interference in a NiFe wire

N. Sato* and K. Sekiguchi*,**

(*Keio Univ., **JST-PRESTO)

1. はじめに

近年、スピン波を利用した論理演算回路が提案され¹⁾、スピン波干渉が注目を集めている²⁾。集積回路への応用を考慮すると試料を微小化する必要があるが、試料線幅とスピン波波長が同程度になると、線幅方向の波数量子化に代表されるエッジ効果が大きな寄与を示すと考えられる。そこで本研究では、細線試料におけるスピン波干渉を詳細に調べた。

2. 実験方法

Fig. 1(a) に試料の原子間力顕微鏡像を示す。Si 基板上に膜厚 35 nm、線幅 $w = 2.5 \mu\text{m}$ の $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ 細線を電子線描画およびリフトオフ法によって加工した。膜厚 40 nm の SiO_2 によって絶縁層を成膜した後、Ti (5 nm)/Au (125 nm) でアンテナ EX1 と EX2 を作製した。 x 方向に 300 Oe の外部磁場を印加した状態で、EX1 と EX2 に周波数 7.13 GHz のマイクロ波を入射し、EX1 と EX2 から互いに逆向きに伝搬するスピン波を励起した。対向するスピン波が干渉したときのスピン波強度分布を micro-Brillouin 散乱 (BLS) 分光法によって測定した³⁾。

3. 実験結果および考察

Fig. 1(b) は BLS 強度の測定結果を示し、白色部分はスピン波強度が強く、黒色部分はスピン波強度が弱いことを表す。図に示すように y 方向に沿って定在波が励起され、BLS 強度の明暗パターンが $1.0 \mu\text{m}$ 間隔で周期的に現れた。分散関係から計算するとスピン波の波数は $3.0 \mu\text{m}^{-1}$ となり、波長は $2.0 \mu\text{m}$ と導出される。定在波の腹と腹の間隔は波長の 2 分の 1 ($= 1.0 \mu\text{m}$) になるので、BLS 強度の明暗パターンが波の強め合い、弱め合いのスピン波干渉に対応することが分かった。 x 方向の BLS 強度は細線の中央部において最大となり、細線エッジ近傍においては BLS 強度が中央部の 25 % に低下した。一方、micro magnetics 計算を行なうと、細線エッジでは反磁場が大きいこと磁化が飽和しないことが示された。従って細線試料におけるスピン波干渉では試料内の反磁場による有効幅を考慮する必要があり、線幅 $2.5 \mu\text{m}$ の細線においては有効幅は $w_{\text{eff}} = 2.2 \mu\text{m}$ であることが分かった。

参考文献

- 1) T. Schneider *et al.*, Appl. Phys. Lett. **92**, 022505 (2008).
- 2) N. Sato *et al.*, Appl. Phys. Express **6**, 063001 (2013).
- 3) P. Pirro *et al.*, Phys. Status Solidi B **248**, 2404 (2011).

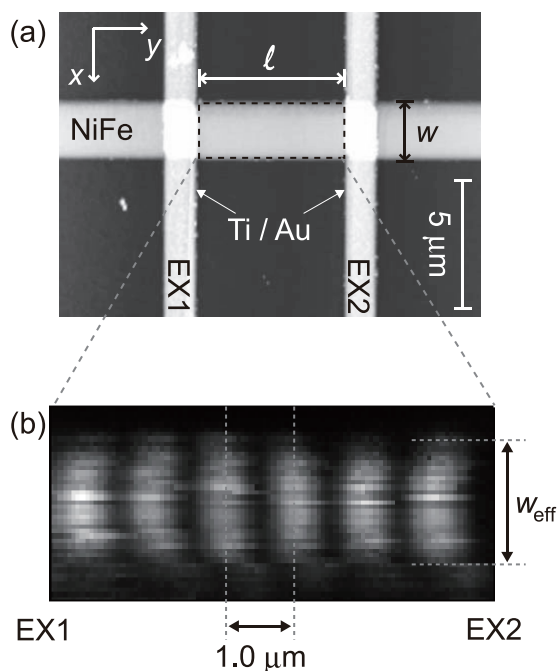


Fig. 1 (a) Atomic force microscope image of the sample. The distance between the antennas (EX1 and EX2) was set to be $l = 5.8 \mu\text{m}$. (b) BLS intensity mapping between the antennas.

高周波電圧アシスト磁化反転

野崎隆行^{1,2}, 荒井礼子¹, 薬師寺啓^{1,2}, 田丸慎吾¹, 久保田均^{1,2}, 今村裕志¹, 福島章雄^{1,2}, 湯浅新治^{1,2}

1. 産総研 ナノスピントロニクス研究センター 2. CREST-JST

High-frequency voltage-assisted magnetization reversal

T. Nozaki^{1,2}, H. Arai¹, K. Yakushiji^{1,2}, S. Tamaru¹, H. Kubota^{1,2}, H. Imamura¹, A. Fukushima^{1,2}, and S. Yuasa^{1,2}

1. AIST, Spintronics Research Center, 2. CREST-JST

はじめに

高周波磁界やスピントルクにより誘起される強磁性共鳴ダイナミクスを利用した反転磁界の低減は、磁気記録や固体磁気メモリの書き込みアシスト技術として注目されている。通常これらの共鳴ダイナミクス励起には大きな電流印加が必要となり、抵抗損失による不要な電力消費が懸念される。

本発表では超薄膜金属磁性層における電圧誘起磁気異方性変化[1]を利用した共鳴ダイナミクス励起[2]による電圧駆動型アシスト磁化反転の実証について紹介する。

実験方法および結果

分子線エピタキシー、およびスパッタリングを組み合わせた成膜プロセスにより、MgO(001)基板上にCr/Fe (0.7 nm) / MgO (2.5 nm) / Fe(*t* nm) / FeB (1.5 nm) / Ta/Ru からなる多層構造を作製し、断面積 $2 \times 6 \mu\text{m}^2$ のトンネル磁気抵抗素子に微細加工を施した。FeB(1.5 nm)層が電圧印加により垂直磁気異方性制御を行うフリー層であり、2cm 角基板上で垂直磁気異方性を系統的に制御するためにFe ウェッジ層 ($t = 0 \sim 0.7$ nm) との2層構造とした。トンネル磁気抵抗曲線のバイアス電圧依存性、およびホモダイン検波測定[2]により、電圧誘起磁気異方性変化による強磁性共鳴ダイナミクス励起が支配的であることを確認した。

図 1(a)に Fe(0.26 nm) / FeB (1.5 nm) の垂直磁化フリー層を有するトンネル磁気抵抗素子に対して、さまざまな周波数の高周波電圧($V_{\text{rms}} = 316 \text{ mV}$)を印加しながら測定した規格化 MR 曲線(マイナーループ)の例を示す。外部磁界は面内からの仰角 50 度方向に印加している。特定の周波数において、反転磁界(H_{sw})が明瞭に減少していることが分かる。より詳細に周波数依存性を調べた結果を図 1(b)に示す。約 1GHz にピーク構造を有する反転磁界の低減効果が確認された。高周波電圧を印加していない場合($H_{\text{sw},0}$: 黒点線)と比較して、最大で 80%以上の低減率が得られた。講演では印加電圧強度、および磁界印加仰角依存性についても議論する。

参考文献

- 1) T. Maruyama *et al.* Nature Nanotech. **4**, 158 (2009)
- 2) T. Nozaki *et al.* Nature Phys. **8**, 491 (2012)

謝辞

本研究の一部は産総研 STAR 事業「高電力効率大規模データ処理イニシアチブ」の支援の下行われた。

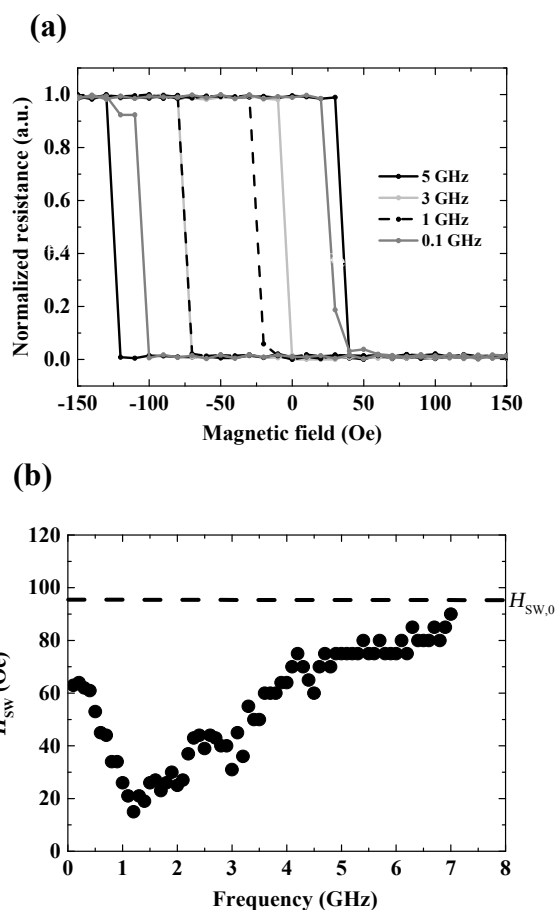


図 1 (a) さまざまな周波数の高周波電圧 ($V_{\text{rms}} = 316 \text{ mV}$) 印加下における規格化トンネル磁気抵抗曲線の例。(b) 反転磁界 (H_{sw}) の高周波電圧周波数依存性。 $H_{\text{sw},0}$ (黒点線) は静磁界のみの反転磁界を示す。

$L1_0$ -FePt 薄膜のレーザー誘起超高速減磁過程

佐々木悠太, 水上成美*, 飯浜賢志, 永沼博, 大兼幹彦, 宮崎照宣*, 安藤康夫
(東北大院工, *東北大 WPI-AIMR)

Laser-induced ultrafast demagnetization in $L1_0$ -FePt films

Y. Sasaki, S. Mizukami*, S. Iihama, H. Naganuma, M. Oogane, T. Miyazaki*, and Y. Ando
(Dept. of Appl. Phys., Tohoku Univ., *WPI-AIMR, Tohoku Univ.)

はじめに

超短パルスレーザー照射の際に見られる磁性体の超高速減磁現象は、基礎的観点から興味深いと同時に、レーザーアシスト磁化反転に代表されるような応用上もその物理的な理解が重要である。幾つかの理論によれば、超高速減磁における磁化の減少は、スピン・軌道相互作用によるスピントリプル散乱に起因すると考えられ、その減磁時間はダンピング定数に反比例する¹⁾。しかしながら、応用上重要な垂直磁化薄膜に対しての磁化ダイナミクスに関する研究はあまり行われておらず、詳細な研究が望まれる。これまで我々は、 $L1_0$ -FePt 合金薄膜の磁化歳差ダイナミクスとギルバートダンピング定数について報告した²⁾が、ここでは $L1_0$ 規則度の異なる FePt 薄膜における超高速減磁過程を調べ、ダンピング定数との比較を行った。

実験方法

試料は超高真空マグネトロンスパッタ法を用いて作製し、MgO 単結晶基板上に Cr/Pt バッファを介して様々な基板加熱温度で厚み 20 nm の FePt 薄膜を製膜した。光学測定には、中心波長 800 nm, パルス幅 210 fs, のチタンサファイアレーザーを用いて、ポンプ・プローブ法で測定した。パルス周波数は 1 kHz であり、ポンプ光は 365 Hz に変調した。プローブ光のカー回転角はウォラストンプリズムを用いた差動方式により測定した。

実験結果

Fig. 1 に、300 度で製膜した $L1_0$ -FePt 薄膜において様々なポンプ光強度で計測した超高速減磁過程の測定結果を示す。ポンプ光強度が弱い場合には、遅延時間が 500 fs 付近で急峻に磁化が減少した後、10 ps までには磁化の回復が見られる。ポンプ光強度が高くなるにつれて、減磁量が増大する。しかし高強度のポンプ光では、減磁量の増加が鈍くなっている。これらのデータを三温度モデルによって解析し、超高速減磁時間 τ_M を評価した。Fig. 2 に、 τ_M のポンプ光強度依存性を示す。参照のため Ni 薄膜の同様の結果を併せて示した。いずれの試料の τ_M もポンプ光強度に対し類似の依存性を示している。FePt 薄膜のダンピング定数は Ni よりも大きいものの、減磁時間は FePt 薄膜の方が二倍程度大きく、理論の示すダンピング定数と減磁時間の反比例関係は見られない事が分かった。

参考文献

- 1) B. Koopmans *et al.*, Phys. Rev. Lett. 95, 267207 (2005).
- 2) S. Mizukami *et al.*, Appl. Phys. Lett. 98, 052501 (2011). S. Iihama *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. Jpn. 52, 073002 (2013).

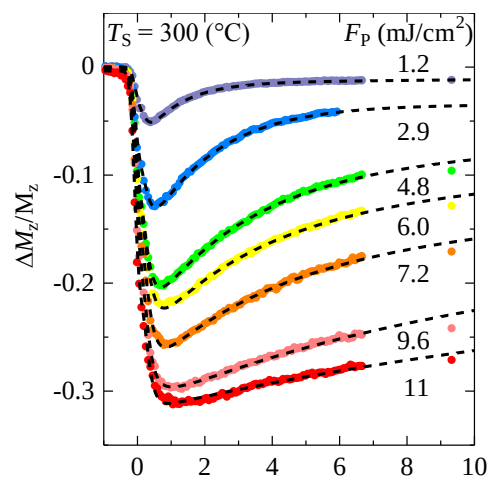


Fig.1 $L1_0$ -FePt のポンプ光強度に対する超高速減磁シグナルの変化。

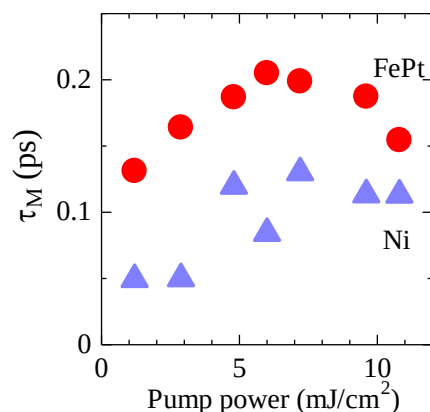


Fig.2 FePt ならびに参照用 Ni 試料の減磁時間のポンプ光強度依存性。

TbFeCo 細線中に生成したバブル磁区の電流下での挙動

田中雅章, 金沢大樹, 住友翔, 本多周太*, 壬生攻, 栗野博之**

(名古屋工業大学, *筑波大学, **豊田工業大学)

Study on current-induced dynamics of bubble domains in TbFeCo wires

M. A. Tanaka, H. Kanazawa, S. Sumitomo, S. Honda*, K. Mibu, H. Awano**

(Nagoya Institute of Technology, *University of Tsukuba, **Toyota Technological Institute)

はじめに

垂直磁気異方性を有する強磁性細線中の磁区を電流で移動させることで新たな強磁性デバイスへ応用する試みが行われている[1]. 細線の幅いっぱいに磁壁が形成されている場合, 細線上を磁区が移動する際に細線端部の凹凸が磁壁の動きをさまたげる場合がある. 垂直磁気異方性を有する強磁性体薄膜ではバブル磁区が形成でき, バブル磁区を用いることで細線の端の影響を受けない安定した電流駆動が期待できる. バブル磁区に電流を印加した際の挙動についての研究はこれまであまりない. 本研究では飽和磁化が異なる TbFeCo 細線上にバブル磁区を形成して飽和磁化の大きさと電流下での挙動を調べた.

実験方法

酸化膜付き Si 基板上に電子線描画装置を用いたリフトオフ法とスパッタリング法を用いて線幅 6~7 μm 程度の TbFeCo/ Pt 構造の細線を作製した. TbFeCo として飽和磁化 90 emu/cc, 150 emu/cc となる組成を 2 つ選んだ. 細線全体の磁化を上向きに飽和させた後, 下向き磁場中で細線の中心をレーザーで加熱して細線上にバブル磁区を生成した. その様子を図 1(a)に示す. 無磁場中で細線に直流電流を流し, バブル磁区の様子をカー光学顕微鏡で観察した. また, 得られた結果を Landau-Lifshitz 方程式を用いたマイクロマグネティクス(MM)シミュレーションと比較した.

実験結果

図 1(b)に飽和磁化が 90 emu/cc と小さい試料に電流密度 $9.8 \times 10^{10} \text{ A/m}^2$ の電流を流したときのバブル磁区の様子を示す. バブル磁区はピン止めされてほとんど動かないまま電流方向に流れるように消失する. 飽和磁化が 150 emu/cc と大きい TbFeCo 細線に電流密度 $1.2 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$ の電流を流した場合, 図 1(c)のように左端がピン止めされたまま右端が電流方向に成長している. 図 2 に MM シミュレーションによる結果を示す. 図 2(a)の初期状態から $M_s=350 \text{ emu/cc}$ の場合には図 2(b)のように電流によりバブルが縮小しながら電流と逆方向に動く. $M_s=450 \text{ emu/cc}$ の場合には図 2(c)のようにバブルは拡大しながら電流と逆方向に動く. 実験結果とシミュレーションでの移動方向の違いは, 上部の Pt 層によるスピンホール効果の影響によると考えられる[2]. 一方, 両者での飽和磁化の大きさとバブル磁区の形状変化の傾向は定性的に一致している. 飽和磁化が小さな試料では相対的に交換エネルギーが強く働きバブルを小さくする方に変化するが, 飽和磁化が大きな試料では相対的に静磁エネルギーが強く働きバブル磁区の周囲からの回り込み磁場がバブルの成長を助けられていると考えられる.

[1] D. Chiba *et al.*, Appl. Phys. Express, **3**, 073004 (2010). [2] D. Bang *et al.*, Appl. Phys. Express, **5**, 125201 (2012).

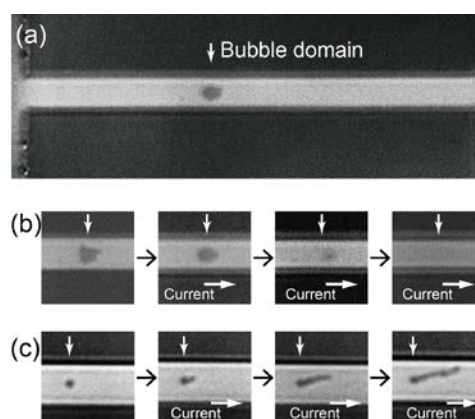


Fig. 1 (a) A Kerr image of a bubble domain in a TbFeCo wire. Current-induced dynamics of bubble domains in TbFeCo wires; (b) $M_s = 90 \text{ emu/cc}$. (c) $M_s = 150 \text{ emu/cc}$.

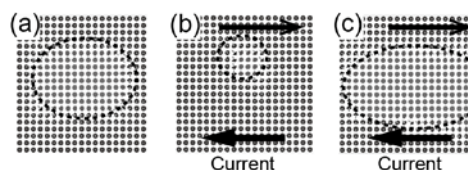


Fig. 2 Micromagnetic simulation of current-induced dynamics of bubble domains. (a) an initial state. (b) $M_s = 350 \text{ emu/cc}$ in a current. (c) $M_s = 450 \text{ emu/cc}$ in a current.

マクロスピンモデルによる スピン注入磁化反転における反転電流の損失定数依存性

中村 慧、佐藤 知徳、山田 啓介、仲谷 栄伸
(電気通信大学 情報理工学研究科)

Effect of the Gilbert Damping Constant on the Spin-Transfer Switching: a Macrospin Model Study

S. Nakamura, T. Sato, K. Yamada, and Y. Nakatani

(Graduate School of Informatics and Engineering, University of Electro-Communications)

はじめに

スピン注入磁化反転を利用した不揮発性メモリ (SpinRAM) の実用化にあたり、現在、反転電流(I_{sw})の低減が求められている¹。反転電流の低減には、損失定数(α)の低減が有効であると考えられている²。しかしながら、パルス幅(t_p)と α それぞれの変化に対して、反転電流の変化を調べた報告はない。本研究では、スピントルク磁化反転シミュレーションを行い、初めに α とパルス幅(t_p)に対する反転電流の変化について調べた。次に、パルス切断後の磁化の挙動による反転電流の変化を調べるため、パルス切断後の時間を放置時間(t_e)と定義し、各放置時間における反転電流について調べた。

実験方法

本シミュレーションでは、マクロスピンモデルを用いた。SpinRAMの記録層は、直径 30 nm、膜厚 2 nm を想定し、体積 $V=11.22^3 \text{ nm}^3$ の垂直磁気異方性を持つ材料として計算した。材料定数は、飽和磁化 $M_s=600 \text{ emu/cm}^3$ 、垂直磁気異方性定数 $K_u=1.76 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ を用いた。ここで K_u は、熱安定性指数 $\Delta=E/k_B T$ ($T=300 \text{ K}$) $=60$ より求めた。また今回のシミュレーションでは、スピン分極率 $P=1.0$ 、外部磁界 $H_{ext}=0 \text{ Oe}$ 、初期角度 $\theta_0=0.182 \text{ rad}$ 、磁化反転基準角度 $\theta'=\pi-0.43 \text{ rad}$ を用いた。

実験結果

Fig.1 に、 $t_e=0$, $t_p=1 \sim 1000 \text{ ns}$ における α に対する反転電流のシミュレーション結果を示す。長いパルス幅の場合は、 α の減少に伴い反転電流が減少する。一方、短いパルス幅の場合は、ある α から反転電流は変化しなくなる。この変化しなくなる反転電流は、パルス幅に反比例することがわかった。このパルス幅に反比例する項を今までに報告されている反転電流の式³に加えたものが式(1)である。

$$I_{sw} = e \cdot 2S / (g \cdot \hbar) [\alpha(-\gamma)(H_{ext} + H_c) + C1 / t_p] \quad (1)$$

S : 記録層のスピン角運動量総和
 γ : 磁気回転比 $\hbar$: ディラック定数
 g : spin transfer efficiency
 e : 電気素量 H_c : 保磁力

Fig.1 に示すように、各パルス幅に対する式(1)の曲線は、実験値とよく一致した。

Fig.2 に、 $t_p=1 \text{ ns}$, $t_e=0, 5, 100 \text{ ns}$ における α に対する反転電流のシミュレーション結果を示す。反転電流は、 t_e を導入することで減少した。これは、パルス切断後では θ' を満たしていない磁化が、 t_e 内で変化することで θ' を満たすため、 $t_e=0$ の反転電流よりも小さい電流で磁化反転が起こるからである。Fig.2 に示した曲線は、 t_e 依存の項を反転電流の式に加えた式で、実験値とよく一致した。

参考文献

- 1) S. Mangin, *et al.*, Nature Mater., **5**, 210 (2006).
- 2) X. Zhu and J. -G. Zhu, IEEE. Trans. Magn., **43**, 6, 2349(2007).
- 3) H. Tomita, *et al.*, IEEE. Trans. Magn., **47**, 6, 1599-1602 (2011).

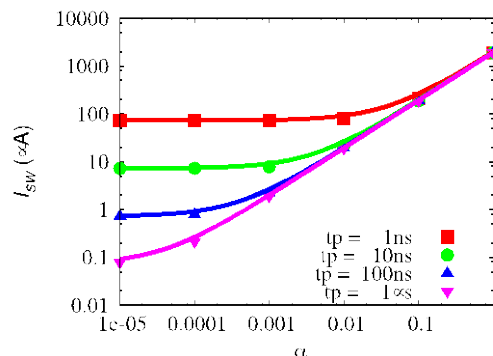


Fig.1 Effects of α and t_p on I_{sw} .

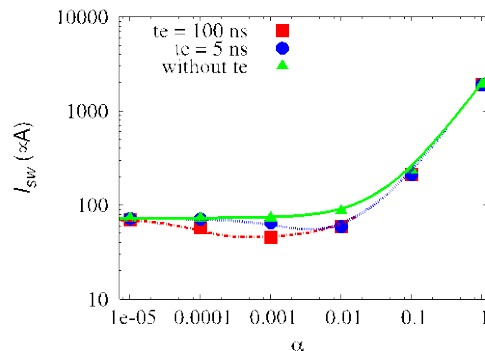


Fig.2 Effects of α and t_e on I_{sw} at $t_p=1 \text{ ns}$.

マイクロマグネティックモデルによる スピン注入磁化反転における反転電流の損失定数依存性

中村 慧、佐藤 知徳、山田 啓介、仲谷 栄伸
(電気通信大学 情報理工学研究科)

Effect of the Gilbert Damping Constant on the Spin-Transfer Switching: a Micromagnetic Model Study

S. Nakamura, T. Sato, K. Yamada, and Y. Nakatani

(Graduate School of Informatics and Engineering, University of Electro-Communications)

はじめに

前の報告¹では、マクロスピン(MS)モデルを用いて各パルス幅(t_p)の損失定数(α)に対する反転電流(I_{sw})の変化を調べた。しかしながら、この結果が現実的なモデルであるマイクロマグネティック(MM)モデルにより成り立つかは明らかではない。本研究では、MMモデルを用いてスピン注入磁化反転シミュレーションを行い、初めにMMモデルにおいても各パルス幅(t_p)の α に対する反転電流の変化は同様に成り立つかを調べた。次に、磁化構造の変化による反転電流の変化を調べるため、計算対象である SpinRAM の記録層の直径(D)を変えて、反転電流について調べた。

実験方法

本シミュレーションでは、MMモデルを用いた。SpinRAMの記録層は、直径30~480 nm、膜厚2 nmの垂直磁気異方性を持つ材料として計算した。材料定数は、飽和磁化 $M_s = 600 \text{ emu/cm}^3$ 、交換スティーフネス定数 $A = 1.0 \times 10^{-6} \text{ erg/cm}^3$ を用いた。ここで K_u は、熱安定性指数 $\Delta = E/k_B T$ ($T = 300 \text{ K}$) = 60 より求めた。また今回のシミュレーションでは、スピン分極率 $P = 1.0$ 、外部磁界 $H_{ext} = 0 \text{ Oe}$ 、初期角度 $\theta_0 = 0.182 \text{ rad}$ 、磁化反転基準角度 $\theta' = \pi - 0.43 \text{ rad}$ を用いた。

実験結果

Fig.1 に、 $D = 30 \text{ nm}$, $t_p = 1 \sim 5 \text{ ns}$ における α に対する反転電流のシミュレーション結果を示す。MMモデルを用いた場合でも、各パルス幅の α に対する反転電流は、MSモデルと同様の振る舞いを示した。前の報告で示した式(1)における保磁力(H_c)を反転磁界(H_{sw})に変更した式を Fig.1 に曲線で示す。この曲線は、各パルス幅の実験値とよく一致した。ただし、 H_{sw} は $t_p = 2.5 \text{ ns}$ の外部磁界磁化反転シミュレーションより得られた実験値 5741 Oe を用いている。

Fig.2 に、 $t_p = 1 \text{ ns}$, $\alpha = 1 \times 10^{-5}$ における直径に対する反転電流のシミュレーション結果を示す。 $D = 30 \text{ nm}$ と $D = 480 \text{ nm}$ では、 I_{sw} が最大で約 30 % 上がることがわかった。また、 $D \leq 60 \text{ nm}$ では磁化構造がほぼ一様に反転し、 $D > 60 \text{ nm}$ では磁化構造が非一様な状態で反転することをシミュレーションより確認した。直径を大きくすると、磁化構造の変化を伴って反転が起こるため、反転電流が増加することがわかった。この効果を表すために、磁化構造のばらつきの度合いを示すものとして、初期角度(θ_0)から反転基準角度(θ')に向くまでの平均の磁化の大きさを $\langle m \rangle$ と定義した。シミュレーションより得られた $\langle m \rangle$ の項を加えた I_{sw} の式(1)'を下に示す。なお、 $C2 = 5.5$ である。

$$I_{sw} = e \cdot 2S / (g \cdot \hbar) [\alpha (-\gamma) (H_{ext} + H_{sw}) + (C1 + C2(1 - \langle m \rangle)) / t_p]$$

$$C1 = \ln | \tan(\theta' / 2) / \tan(\theta_0 / 2) | \cdots (1)'$$

Fig.2 の実線に示すように、式(1)'は実験値とよく一致した。

参考文献

- 1) 中村慧、佐藤知徳、山田啓介、仲谷栄伸：第38回日本磁気学会学術講演 (2014)。

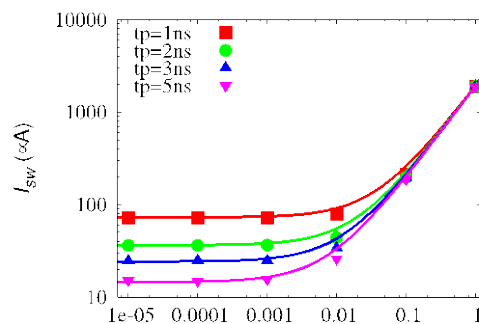


Fig.1 Effects of α and t_p on I_{sw} at $D = 30$

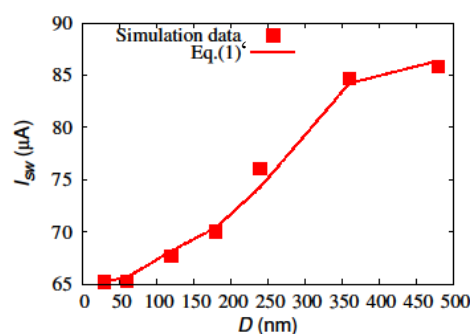


Fig.2 Effect of D on I_{sw}
at $t_p = 1 \text{ ns}$ and $\alpha = 1 \times 10^{-5}$.

シンセティックフェリ MRAM 自由層における スピン注入磁化反転の計算機シミュレーション

沈杰*, 施敏捷*, 田中輝光*, 松山公秀*

(*九州大学大学院 システム情報科学府)

Numerical simulation on magnetization reversal in synthetic-ferrimagnetic MRAM free layer

J. Shen, M. Shi, T. Tanaka, K. Matsuyama

(Graduate School of Information Science and Electrical Engineering, Kyushu University)

はじめに

微細加工したシンセティックフェリ膜(Sy-Ferri 膜)は、面直方向への磁性体堆積効果による記録磁化状態の熱安定性向上により、MRAM 自由層への応用に期待が持たれる¹⁾。また、漏洩磁界の少ない反平行磁化状態は、隣接記録セル間のクロストークの低減にも有効である。本研究では、Gbit 級スピントランスファートルク方式 MRAM(STT-MRAM)の記録ビットを想定した数 10nm サイズの Sy-Ferri 自由層のモデリングを行い、計算機シミュレーションにより磁化反転過程の詳細と、材料及び構造パラメータへの依存性について解析した。

シミュレーションモデル

Fig. 1(a)にシミュレーションで仮定した MRAM 記憶セルの構造を示す。記憶セルのパターン形状は長方形とし、各層の対角線方向を磁化容易軸とした($K_u=4.3 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3$)。薄膜パターンを 2 次元配列計算格子により要素分割し、スピントルク項、および有限温度計算のためランダム磁界項を導入した LLG 方程式の数値計算により、固定層(M)からのスピン注入による Sy-Ferri 自由層(M1, M2)の磁化反転過程についてシミュレーションを行った。

結果と考察

Fig. 1(b) に示すように、M1 層と M2 層間の静磁気結合により磁化反転は反平行磁化状態を保持しつつ行われることが分かる。磁化反転に係わるスピントランスファートルクは、1) M1 層が受ける直接トルク、2) M2 層への透過トルク、M1 層への反射トルクである。透過トルクと反射トルクの効果は、相乗して磁化反転電流を 20%程度増大することが分かった。

種々の材料パラメータ、及び構造パラメータについてシミュレーションを行った結果、M2 層の磁化を M1 層より小さくすることにより効率的な磁化反転が実現できることが分かった。Fig.2 は、セル形状の面内アスペクト比を構造パラメータとして、20 回の試行に対する磁化反転確率の注入電流密度依存性を求めた結果である。自由層全体の磁気モーメントが補償するよう各層の磁化と膜厚を $M_{s,1}=1710 \text{ emu/sm}^3$, $d_1=1.25 \text{ nm}$, $M_{s,2}=855 \text{ emu/sm}^3$, $d_2=2.5 \text{ nm}$ としている。Fig.3 に示されるように、磁化反転閾値電流 J_{th} は、温度上昇に伴い顕著に減少することから、スピン注入電流の昇温度を積極的に活用した書き込み電流低減の可能性が示唆される。

参考文献

1) K. Inomata et al., Appl. Phys. Lett., **81**, 312 (2002).

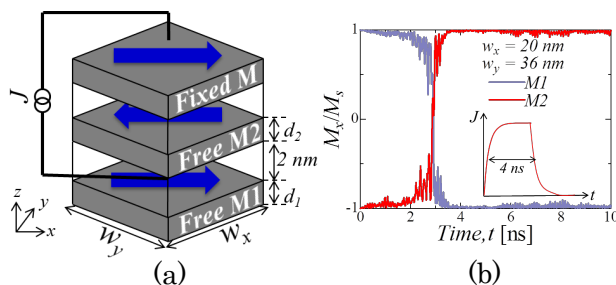


Fig.1. (a) Simulation model of synthetic-ferrimagnetic free layer, (b) Time transient of magnetization reversal process.

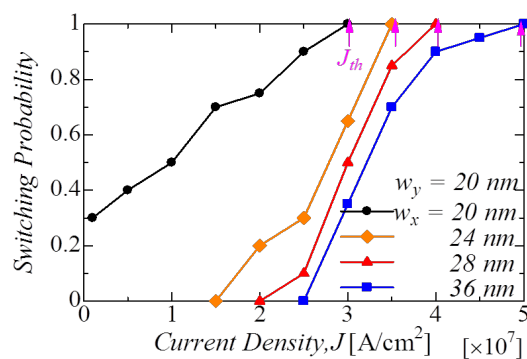


Fig. 2. Magnetization switching probability as a function of spin injection current density, taking the lateral aspect ratio as a parameter.

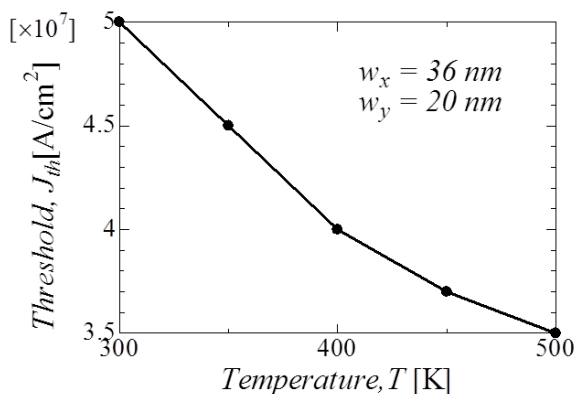


Fig. 3. Temperature dependence of the threshold current density for steady magnetization reversal.

二流体ノズルを用いた噴霧熱分解法による Y 型フェライトの作製

宮島浩喜、柿崎浩一、神島謙二

(埼玉大学)

Preparation of Y-type ferrite particles by the Spray-Pyrolysis method using a two-fluid nozzle

K. Miyajima, K. Kakizaki, K. Kamishima

(Saitama Univ.)

諸言

噴霧熱分解法は均一なナノサイズ粒子の作製、連続的に作製することが期待できる方法である。しかし、この方法のみを用いた M 型を除く六方晶フェライトの作製の報告は非常に少ない¹⁾。本研究ではこの方法のみを用い、六方晶 Y 型フェライト $\text{Ba}_2\text{Co}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$ の作製を行った。従来は噴霧する液滴の粒形を最も小さくできる超音波スプレーノズル¹⁾を利用し、噴霧化を行っていた。超音波スプレーノズルに内蔵されている圧電セラミックスの耐久温度は約 120°C である。しかし、電気炉内を 1300°C にすると、電気炉上部とノズルの結合部分の温度が $65\sim 280^\circ\text{C}$ まで上昇する。このような高温域では超音波スプレーノズルの噴霧化は停止し、使用を続けることはできない。そこで本研究では、より単純な機構で高温下でも連続的に噴霧化をする事ができる二流体ノズルを利用した。

実験方法

$\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ 、 $\text{Co}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ を六方晶 Y 型フェライト $\text{Ba}_2\text{Co}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$ の組成になるように秤量し、純水に溶かした。この溶液を攪拌しながら 70°C まで加熱し、クエン酸を金属イオンと等モル加えた。室温まで下げた後、アンモニア水溶液で pH7.0 に調整し、12 時間攪拌した。これを原料溶液とした。二流体ノズルに原料溶液を流量 1.0 mL/s で供給し、電気炉中の石英管内に噴霧した。この時の空気量を $10\sim 15\text{ L/min}$ にし、電気炉内を $1150\sim 1300^\circ\text{C}$ にすることで熱分解を行った。得た試料を X 線回折装置 (XRD)、振動試料型磁力計 (VSM) により測定した。

実験結果

図 1 は熱分解温度 $1150\sim 1300^\circ\text{C}$ で作製した試料の X 線回折図である。熱分解温度 1250°C で六方晶 Y 型フェライト $\text{Ba}_2\text{Co}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$ が最も生成している。図 2 と六方晶 Y 型フェライト $\text{Ba}_2\text{Co}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$ のキュリー点が 340°C であることからこの試料の主相が Co_2Y フェライトであることが確認できた。以上から、二流体ノズルを利用した噴霧熱分解法による六方晶フェライトの作製に成功した。

参考文献

- 1) REN Ping et al, J WUHAN UNIV TECHNOL, Vol.22 No.1 (2006) 168-170

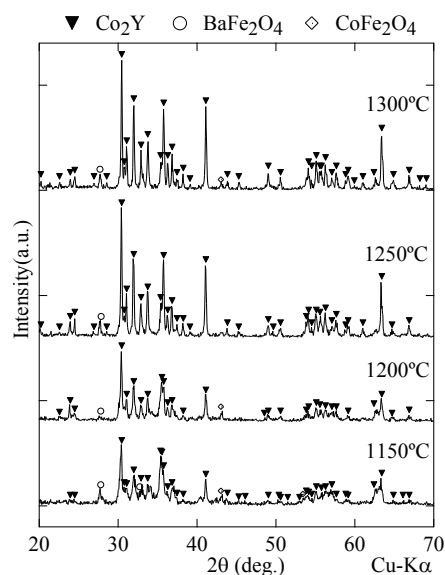


図 1 : 焼成温度 $1150\sim 1300^\circ\text{C}$ で

熱分解した試料の X 線回折図

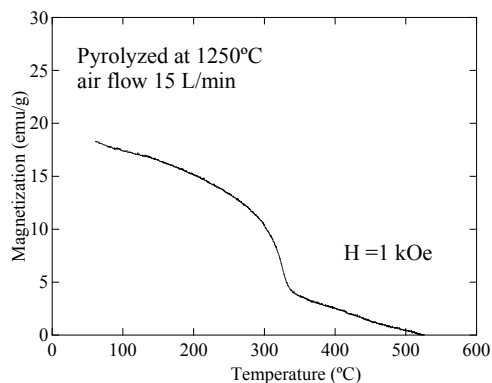


図 2 : 1250°C で焼成した試料の磁化の温度依存性

Characterization of Nanocrystalline Fine MgFe_2O_4 Soft Ferrite Powder Synthesized by Ultrasonic Spray Pyrolysis Method

Harinarayan Das^{1,2}, Kazuo Shinozaki³, Hisao Suzuki^{1,4}, Naoki Wakiya^{1,4}

¹Graduate School of Science and Technology, Shizuoka University, 3-5-1 Johoku Naka-ku, Hamamatsu 432-8561, Shizuoka Japan

²Materials Science Division, Atomic Energy Centre, Dhaka-1000, Bangladesh Atomic Energy Commission

³Department of Metallurgy and Ceramics Science, Tokyo Institute of Technology, 2-12-1 O-okayama Meguro-ku, Tokyo 152-8550

⁴Research Institute of Electronics, Shizuoka University, 3-5-1 Johoku Naka-ku, Hamamatsu 432-8561, Shizuoka Japan

Ultrasonic spray pyrolysis (USP) has been successfully used to synthesize fine ceramic particles with several advantage such as convenient, controllable and continuous process⁽¹⁾. In the present work, nano-magnetic unsintered magnesium ferrite as dried powder has been synthesized using ultrasonic spray pyrolysis technique without any additives and post-annealing processes. Magnesium ferrite is a very useful soft magnetic ceramic material and it expected to be suitable for local hyperthermia when compared with other ferrites⁽²⁾. Spherical nano-sized magnesium ferrite powders were obtained using ultrasonically atomized aqueous solutions of iron (III) nitrate and magnesium nitrate mixture followed by thermal decomposition of dried mist in nitrogen atmosphere. Different pyrolysis temperature applied to the reactor furnace was found to have a significant impact on the crystallinity and morphology of the magnesium ferrite powders. Structural characterization was carried out using x-ray powder diffraction (XRD) method to evaluate crystallographic analysis and crystallite size. Figure 1 shows that all the samples are single phase cubic ferrites particles with the space group $Fd\bar{3}m$ and lattice constant vary from 0.829 nm to 0.838 nm with increasing pyrolysis temperature from 600 °C to 800 °C. Crystallite size of the nanoparticles increased from 5.24 ± 51 to 15.97 ± 45 nm when pyrolysis temperature increased from 600 °C to 800 °C. Formation of ferrites was examined using Fourier transform infrared spectroscopy (FT-IR). The nanocrystallite nature and morphology of the as dried powder was evidenced by transmission electron microscopy (TEM) (Fig. 2). The effects of the pyrolysis temperature on the particle size distribution were investigated using laser particle size analyzer. Results showed that particle sizes were decreased from 253 nm to 67 nm by increasing pyrolysis temperature from 600 °C to 800 °C and also narrower size distribution was obtained using higher pyrolysis temperature. The agglomerates observed by field-emission scanning electron microscopy (FE-SEM) proved that MgFe_2O_4 nanocrystallites shows high dispersibility. Also, particles prepared at 800 °C had less aggregated structure than those prepared from 600 °C to 700 °C. The composition examined using energy-dispersive spectroscopy (EDS) was stoichiometric. Magnetic properties of synthesized MgFe_2O_4 powder were examined using VSM.

Reference:

- 1) Kang et al. *Mat. Sci. Eng. B*, **127** (2006) 99.
- 2) Franco et al., *J. Appl. Phys.*, **109** (2011) 07B505.

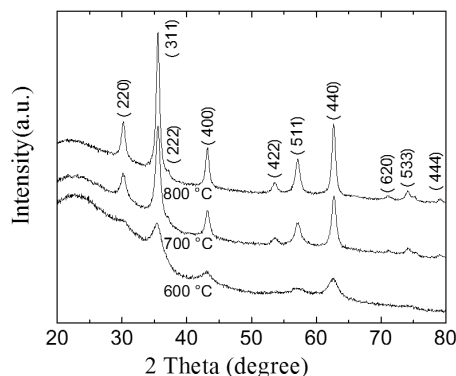


Fig. 1. XRD patterns of Mg-ferrite nanoparticles synthesized at various pyrolysis temperature.

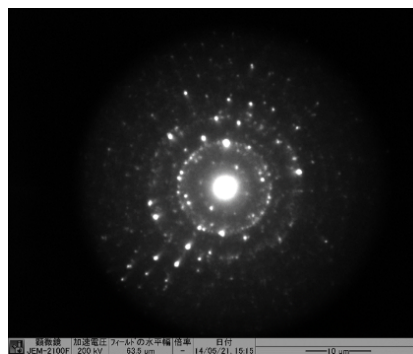


Fig. 2. SAED pattern of Mg-ferrite nanoparticles synthesized at 600 °C.

Controlled microwave-assisted synthesis of nano-crystalline zinc ferrite

Ranajit Sai^{1,2*}, Suresh D. Kulkarni², Navakanta Bhat², and S. A. Shivashankar²

¹Department of Electrical and Communication Engineering, Tohoku University, Sendai, Japan

²Centre for Nano Science and Engineering, Indian Institute of Science, Bangalore, India)

Controlled synthesis of nanocrystalline spinel ferrites are of immense importance owing to their interesting magnetic characteristics at nanoscale that leads not only to study the process of magnetization in them at that scale but also to use them for the development of various functional devices. Among largely-favoured low-temperature solution-based processing methods, as demonstrated in our earlier work¹, microwave-irradiation-assisted synthesis technique (MAST) offers rapid way to obtain pure crystallites with very narrow size distribution. However, the use of surfactant and the need of post-synthesis anneal was unavoidable in order to control distribution and growth of particle size. In this work we will demonstrate surfactant-free and anneal-free synthesis of zinc ferrite nanocrystallites with tunable physical and chemical properties by same MAST but with slightly altered synthesis conditions. Furthermore we will also show the effect of processing conditions on their properties.

For the synthesis of zinc ferrite by MAST, metalorganic complexes such as $\text{Zn}(\text{acac})_2$ and $\text{Fe}(\text{acac})_3$ were chosen (in stoichiometric ratio) as precursors and taken in a solvent mixture containing ethanol, 1-decanol, and a small quantity of de-ionized water (5:8:1) and stirred mildly until a clear solution resulted. The clear solution was then transferred to a Pyrex glass vessel, designed for ‘Discover SP’ system (Microwave reactor, CEM Corp., US), and placed inside the microwave cavity for the exposure of microwave irradiation (2.45 GHz, 300 W) for just 10 minutes so as to complete the reaction that resulted in pure nanocrystalline zinc ferrite powder (sample name: N10x) as precipitate at the bottom of the vessel. 1-decanol, being a high boiling point solvent, pushed the overall boiling point of the solution mixture near to 200 °C, while serving the purpose of surfactant due to its high viscosity. Therefore, the inclusion of 1-decanol was found to be crucial to control shape and size of the nanocrystallites. The purity and crystallinity of the samples were confirmed through powder X-ray diffraction (PXRD; Fig. 1) and X-ray photoelectron spectroscopy (XPS). Scanning electron microscopy (SEM) image of the crystallites revealed mono-dispersed particles of ~ 5-7 nm diameters in agglomerated state. Magnetization of these nanocrystallites, measured at low (3 K) temperature by using SQUID magnetometer, revealed (Fig. 3) hysteresis with saturation magnetization (M_s) and coercivity of 30 emu/g and 400 Oe respectively. Zinc ferrite – a normal spinel, which ideally is antiferromagnetic (below $T_N=10$ K) in bulk, displayed superparamagnetism even at room temperature (Fig. 1c). This observation is a clear evidence of process-induced distribution of cations in the lattice that in turn enables ferrimagnetically coupled superexchange interactions among the Fe^{3+} ions present both in tetrahedral and octahedral sites. It is also to be noted that the inversion was infused in the crystal structure only at ~190 °C and is believed to be influenced heavily by the presence of microwave irradiation. Prolonged exposure (1 hour; sample name: N10 x-1H) of microwave irradiation, however, resulted in a little reduction in M_s (23 emu/g), while uniform growth of nanocrystallites up to 20 nm was observed (Fig. 1 and 2). Therefore, an anneal-free alternative to crystal growth was evidenced.

Reference

- 1) R. Sai *et al*, J. Mater. Chem., **22**, 5 (2012), 2149.

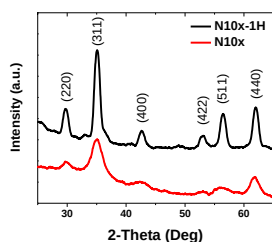


Fig. 1: XRD patterns of N10x and N10x-1H

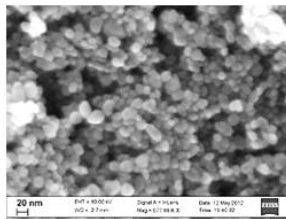


Fig. 2: SEM image of N10x-1H

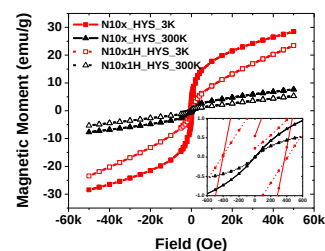


Fig. 3: M-H plot of N10x and N10x-1H measured at 3 K and 300 K

短絡・開放同軸線路を用いた透磁率・誘電率の相互補正測定

武田 茂, 発知富夫*, 本村貞美*, 鈴木洋介*

(有) Magnontech, *キーコム (株)

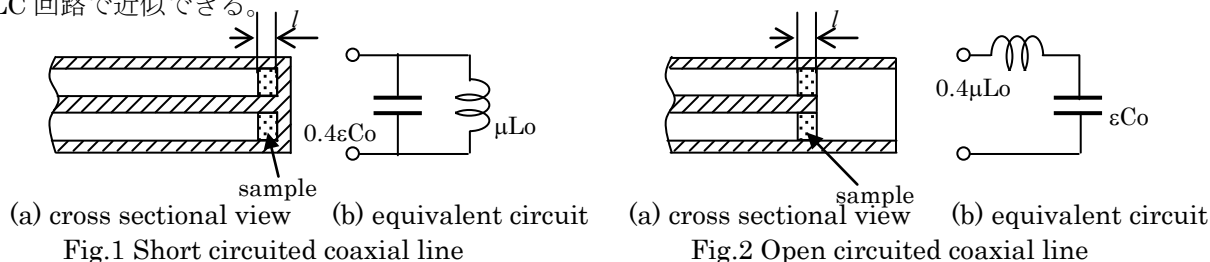
Inter correction measurement of permeability and permittivity by short and open circuited coaxial line

S. Takeda, T. Hotchi*, S. Motomura*, and H. Suzuki*

(Magnontech, Ltd., *KEYCOM Corp.)

はじめに 短絡・開放同軸線路を用いて透磁率・誘電率を測定する方法はよく知られている¹⁾。この方法では、お互いの効果を考慮する必要があるが、一般に解析手法は面倒である。今回、解析方法として、集中定数回路近似を用いることにより、両者の効果を簡単に補正できる方法を考案したので報告する。

測定理論 Fig.1 に短絡同軸線路を、Fig.2 に開放同軸線路を示す。円筒形試料が内外導体に緊密に接触した状態で挿入されている。それぞれの線路は、試料表面を基準面とすると等価回路として並列 LC 回路と直列 LC 回路で近似できる。



図中、 $L_0=L/l$, $C_0=C/l$ であり、 $L=166.7[\text{nH/m}]$, $C=66.7[\text{pF/m}]$ は 50Ω 同軸線路の単位長当たりのインダクタンスと静電容量である。また l は試料の厚みである。試料の透磁率と誘電率を μ と ϵ で示した。等価回路の 0.4 の係数は、位相変化が $\pi/2$ 以下であれば、集中定数近似が 5% 以下で成立するためのものである。このような配置で、試料がある場合とない場合の S_{11} パラメータを測定する。Fig.1 の場合は ϵ が既知であれば μ を求めることができ、Fig.2 の場合は μ が既知であれば ϵ を求めることができる。そこで、最初、 $\epsilon=1$ として μ を求め、これを μ_1 とする。同じように、 $\mu=1$ として ϵ を求め、これを ϵ_1 とする。次に、 $\epsilon=\epsilon_1$ として μ を求め、これを μ_2 とする。同じように、 $\mu=\mu_1$ として ϵ を求め、これを ϵ_2 とする。この操作を続ければ、補正の精度は向上する。しかし、実際には 1 回の操作で十分であり、2 回目以降はほとんど変化しない。また、最終的に得られた μ , ϵ を用いて、 $\beta=(2\pi f/c)\sqrt{\epsilon\mu}l$ を計算して、各周波数 f で $\beta<\pi/2$ であることを確認する。ただし、 c は真空中の光速である。

実験結果 同軸線路としては APC-7 を用いた。円筒形試料の寸法は $7\text{mm}\phi \times 3\text{mm}\phi$ であり、金型で打ち抜いて作成した。試料の端部は凹凸を示すが、外導体と内導体との試料の接触状況は、軽く金型で押しても外れないほどの緊密さである。被測定試料は NEC トーキン製 K4E 材で、厚みは 0.3mm である。Fig.3 に測定結果を示す。複数回測定で、透磁率の測定値はほとんど変化しなかったが、誘電率測定は ϵ' の最大値で $20\% \sim 30\%$ のばらつきがあった。図は最大のものを示している。

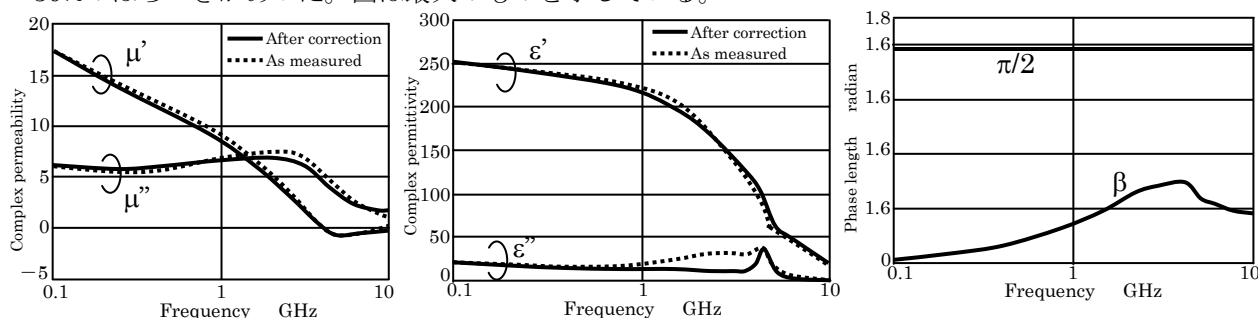


Fig.3 Measurement results of permeability (a) and permittivity (b) and judgment (c)

透磁率と誘電率の両者はお互いに影響を受けるが、実数部より虚数部の方が補正後変化は大きかった。特に誘電率の虚数部は透磁率の影響を受ける。位相変化 β は 3.7GHz で最大をとるが、 $\pi/2$ より十分に小さく、今回の測定が集中定数近似範囲内であることを示している。

参考文献

- 1) 橋本 「高周波領域における材料定数測定法」 p17, 森北出版 (2003)

High frequency soft-magnetic properties and thermal stability of CoPd-SrTiO₃ nano-composite films

Yiwen Zhang¹, Nobukiyo Kobayashi², Masayuki Naoe², Shigehiro Ohnuma^{1,2} and Hiroshi Masumoto¹

¹ Frontier Research Institute for Interdisciplinary Sciences, Tohoku University, Sendai, 980-8578, Japan

² DENJIKEN, Sendai, 982-0807, Japan

Soft magnetic films with high permeability and ferromagnetic resonance frequency have been studied intensively for the application in micro-electronic device components. Recent work has been done on soft-magnetic Co-based nano-composite films to keep their permeability as high as possible to GHz frequency.¹⁾ However, the resonance frequency (f_r) of the films is still low which may limit the application in higher-frequency magnetic devices. According to the modified Landau-Lifshitz equation, it is required of large values of magnetic anisotropy field (H_k) and saturation magnetization (M_s) to obtain high f_r . Soft-magnetic films studied to date have large M_s , but show rarely high H_k . Recently, a few films demonstrate high H_k , whereas, they show low thermal stability, which is a big disadvantage for the high temperature processing in practical applications (such as Surface mounted technology at 250°C for Printed circuit board). In this report, SrTiO₃ (STO) is employed as nonmagnetic ceramic phase due to its thermal stability and high resistivity (ρ). Pd is induced to form CoPd alloy nanoparticles to enlarge anisotropy (H_k). To prevent oxidation of Co metal, a kind of tandem sputtering method is used. The composition, structure, magnetic properties and thermal stability of the CoPd-STO films have been investigated.

The CoPd-STO nano-composite films were deposited onto Si and quartz substrates by sputtering methods, using a STO target and a composite target composed of a Co disk, Pd chips. The chemical composition of the films was analyzed by X-ray photoelectron spectroscopy (XPS). Film structures were investigated by XRD. The microstructure of films was characterized by TEM. The magnetization was measured with VSM. The permeability (μ) was determined by a shielded loop coil method.

The CoPd-STO films consist of amorphous STO matrix and CoPd nano-particles. The CoPd phase shows fcc structure. The CoPd-STO films have a typical in-plane uniaxial soft magnetic properties, with the easy axis (parallel) and hard axis (perpendicular to easy magnetic direction) (Fig. 1). The magnetization hysteresis loops of the films show magnetization (B_s) of about 10 kG, H_k of around 950 Oe, and ρ of 300 $\mu\Omega\cdot\text{cm}$. It is noteworthy that the magnetic properties of the sample after annealing treatment at 250 °C shows no obvious change compared with that of the as-deposited film. From XRD analysis (Fig. 2), it is clearly proved that the CoPd particles have no change after annealing treatment for both size and crystalline structure. The measured μ' is approximately 10, which keeps constant up to 3 GHz. The calculated μ' by L.L.G. formula is consistent with the measured results and shows the resonance frequency at about 9 GHz.

Reference

- 1) Y. W. Zhang et al., IEEE Trans. Magn., vol. 47 (2011), 3795-3798.

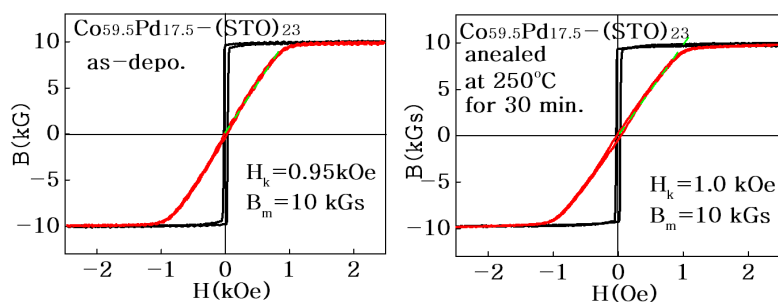


Fig.1 Hysteresis loops of CoPd-(STO) nano-composite film: a) as deposited, b) annealed at 250 °C for 30 min.

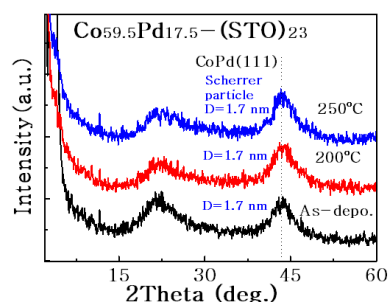


Fig.2 XRD spectra of the as-deposited and annealed CoPd-STO samples.

MgO 単結晶基板の上に形成した Fe-Si 合金薄膜の構造解析

相田拓也・川井哲郎・大竹充・二本正昭・桐野文良*・稲葉信幸**

(中央大, *東京藝大, **山形大)

Structure Analysis of Fe-Si Alloy Thin Films Formed on MgO Single-Crystal Substrates

Takuya Aida, Tetsuroh Kawai, Mitsuru Ohtake, Masaaki Futamoto, Fumiyoshi Kirino*, and Nobuyuki Inaba**

(Chuo Univ., *Tokyo Univ. Arts, **Yamagata Univ.)

はじめに Fe-Si合金は高い透磁率を持つ代表的な軟磁性材料であり、電磁鋼板から薄膜デバイスまで、幅広い分野で用いられている。Fe-Si薄膜の構造と磁気特性はSi/Fe組成や形成条件により変化することが報告されている^{1,2)}。薄膜応用デバイスの可能性検討では、膜の結晶方位が基板方位により制御されたエピタキシャル膜を用いて、特性解析を行うことが有効である。本研究では、MgO(100), (110), (111)基板上にFe-Si膜を形成し、基板温度、Si/Fe組成、および、基板結晶方位が構造と磁気特性に及ぼす影響について、系統的に調べた。

実験方法 膜形成にはRHEED装置付きの超高真空RFマグネトロンスパッタリング装置を用いた。MgO基板上にRTから600℃の間の一定基板温度で40 nm厚のFe_{100-x}Si_x (at. %)膜を形成した。Si組成xを0から10の間で変化させた。構造評価にはRHEED, XRD, AFMを、磁化曲線測定にはVSMを用いた。

実験結果 Fig. 1にMgO(100)基板上に形成したFe₉₄Si₆膜のRHEEDパターンを示す。いずれの基板温度においても、Fig. 1(d)中の指数で示すように、bcc(100)単結晶表面の形成を示す回折パターンが観察されており、エピタキシャル膜が得られていることが分かる。RHEED解析から決定した結晶方位関係は

$$\text{Fe}_{94}\text{Si}_6(100)[011]_{\text{bcc}} \parallel \text{MgO}(100)[001]$$

である。Fig. 2(a-1)–(d-1)に面外XRDパターンを示す。bcc構造を持つFe₉₄Si₆膜からの鮮明な反射を確認できる。Fe₉₄Si₆(200)反射に対して測定を行ったロックングカーブをFig. 2(a-2)–(d-2)に示す。基板温度の上昇に伴い、 $\Delta\theta_{50}$ 値が減少しており、歪が緩和されていることが分かる。Fig. 3にAFM像を示す。基板温度が600℃まで上昇すると、基板表面に到達した原子の表面拡散が促進され、ファセットが発達した島状表面が形成されていることが分かる。当日は、Si/Fe組成や基板結晶方位の依存性についても報告する。

参考文献

1) M. Takahashi, S. Suwabe, T. Narita, and T. Wakiyama: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **10**, 307 (1986). 2) S. Yaegashi, T. Kurihara, and K. Satoh: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **20**, 437 (1996).

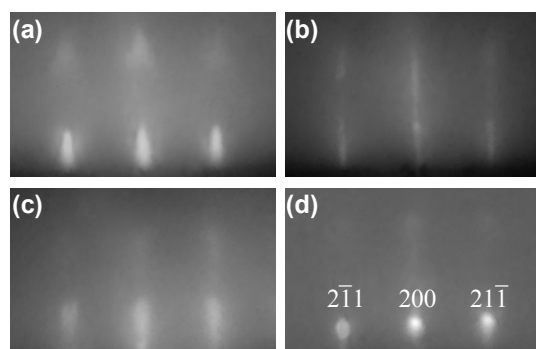


Fig. 1 RHEED patterns observed for Fe₉₄Si₆ films deposited on MgO(100) substrates at (a) RT, (b) 200 °C, (c) 400 °C, and (d) 600 °C.

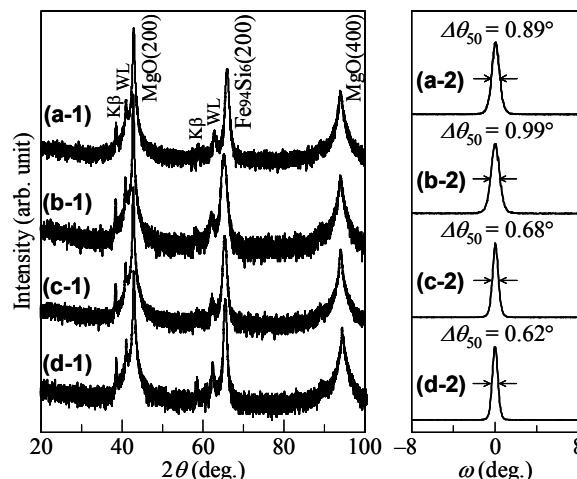


Fig. 2 (a-1)–(d-1) Out-of-plane XRD patterns of Fe₉₄Si₆ films deposited on MgO(100) substrates at (a-1) RT, (b-1) 200 °C, (c-1) 400 °C, and (d-1) 600 °C. (a-2)–(d-2) Rocking curves measured by fixing the diffraction angles at the peak angles of Fe₉₄Si₆(200) reflections in (a-1)–(d-1), respectively. The intensity is shown (a-1)–(d-1) in a logarithmic scale or (a-2)–(d-2) in a linear scale.

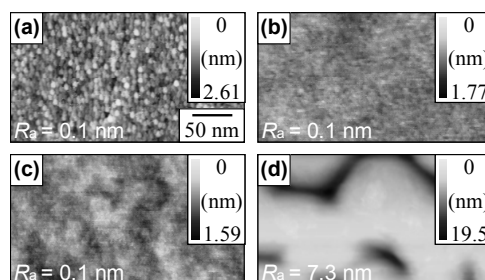


Fig. 3 AFM images observed for Fe₉₄Si₆ films deposited on MgO(100) substrates at (a) RT, (b) 200 °C, (c) 400 °C, and (d) 600 °C.

高純度化による Fe-(4-6)wt%Si 合金の磁気特性改善

レイ チェ, 三村 悠, 堀内 拓郎, 佐々木 巖, 小川 俊文*, 恵良 秀則, 開道 力**
(九州工業大, * 福岡県工技センター機電研, ** 北九州高専)

Improvement of Magnetic Properties on Fe-(4-6)wt%Si alloys using High Purity Metallurgy

Z. Lei, Y. Mimura, T. Horiuchi, I. Sasaki, T. Ogawa*, H. Era, and C. Kaido**

(Kyushu Inst. of Tech., * Mechanics & Electronics Research Institute, Fukuoka Industrial Technology Center,

** Kitakyushu National Coll. of Tech.)

はじめに

鉄-シリコン合金はシリコン濃度を上げることにより, 高透磁率, 低磁歪及び低鉄損など磁気特性が向上する. さらに, 不純物を低減させることで, 磁壁移動, 磁区回転が容易になることにより, ヒステリシス損を低下させ, 磁気特性向上が期待できる¹⁾.

本研究では高純度原料をコールドクルーシブル溶解 (CCLM) 装置で溶解した. CCLM 装置は高真空雰囲気中で溶融物と坩堝を非接触することができ, また磁力攪拌する²⁾ ことにより, 不純物の混入を最小限に抑え, 合金の均質化を行うことができる. 今回, Fe-(4-6)wt%Si 合金を作製し, 不純物の低減とシリコン高濃度化が磁束密度, 保磁力と透磁率など磁気特性へ及ぼす影響を調査することを目的とした.

実験方法

CCLM 装置 (富士電機製) を用いて純度 99.99% 電解鉄マイロン SHP (東邦亜鉛社製) と純度 99.999% シリコン (高純度化学研究所製) を高真空雰囲気 ($\times 10^{-3} Pa$ 以下), 保温時間 20 分の条件で溶解・凝固させ, Fe-(4-6)wt%Si のインゴットを作製した. インゴットから環状試料を切り出し, 自動直流磁化特性装置 (メトロン技研製) 用いてヒステリシスループ ($H_{max} = 5000 A/m$) を描いた. さらに, それぞれインゴットの微細構造と結晶方位等を観察した.

実験結果

Fig.1 に Fe-5wt%Si と Fe-6wt%Si の磁気特性を示す. Fig.1(a) により, 保磁力とヒステリシス損は Fe-5wt%Si では 19 A/m と 0.68 W/kg, Fe-6wt%Si では 10 A/m と 0.37 W/kg であり, 約 2 倍の差が確認した. Fig.1(b) から, Fe-6wt%Si の透磁率は 0.028 H/m であり, Fe-5wt%Si の 0.008 H/m と比べ約 3 倍である. Fe-4wt%Si の結果及びこれらの詳細な磁区, 結晶方位・構造を踏まえ詳しく発表する.

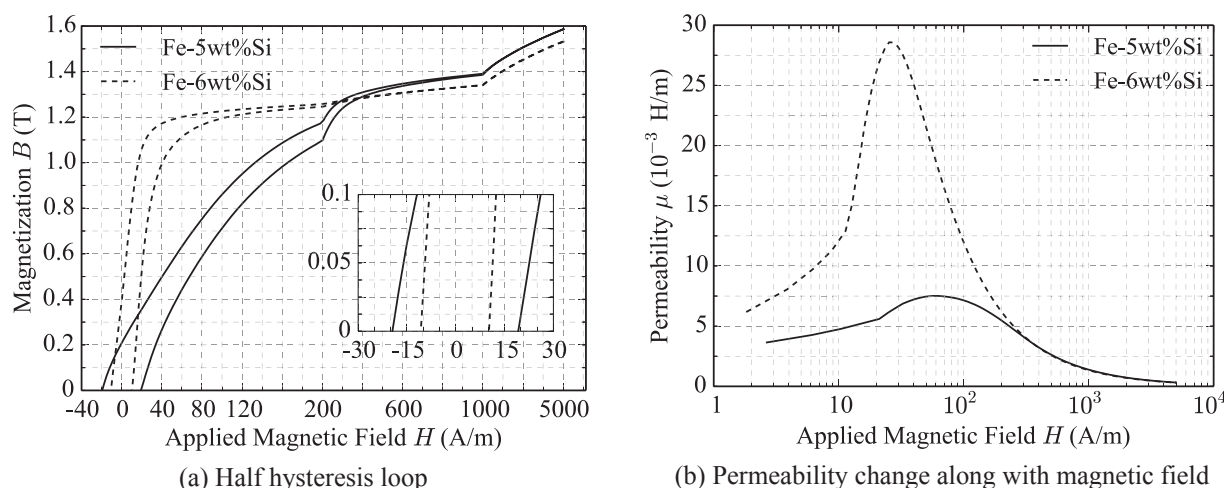


Fig. 1: The magnetic properties of Fe-5wt%Si and Fe-6wt%Si ring samples

参考文献

- 1) C. Kaido, T. Ogawa, Y. Arita, J. Yamasaki, and Y. Shishido: Optimum Iron Loss of Non-oriented Electrical Steel Sheets. *J. Magn. Soc. Japan*, 31(4):316--321, 2007.
- 2) K. Ono, T. Ogawa, and T. Sen: Develop of New Material using Vaccum Technology: Development of High Purity Iron Base Alloy. *Research paper of Industry Technology Center in Fukuoka*, (9):99--103, 1999.

Fe-Cr-Ni-Si-Co-Mn 合金の磁気・形状記憶特性

武藤 寛明*、戸高 孝
(大分大学)

Magnetic and Shape Memory Properties of Fe-Cr-Ni-Si-Co-Mn alloy

Hiroaki Muto*, Takashi Todaka
(Oita University)

はじめに

形状記憶合金には Ti-Ni 合金、Cu 系合金、Fe 系合金の 3 種類が存在する。しかしながら、既存の形状記憶合金は応用範囲が狭いため生産量も少ないといった短所を抱えている。そこで、著者らは、経済性・加工性に優れる Fe 系形状記憶合金である Fe-Mn-Si 合金に強磁性を付加した強磁性形状記憶合金の開発を試み、これまでに、Fe-Mn-Si 合金をベースとして、強磁性化のために Co および Ni、耐食性向上のために Cr を添加した Fe-Cr-Ni-Si-Co-Mn 合金を開発し特性改善の検討を行ってきた¹⁾。本報告では、Fe-Cr-Ni-Si-Co-Mn 合金の組成や製造方法の最適化を行うために、磁気特性や形状記憶特性の検討を行った結果について述べる。

実験方法

薄帯試料の作製は、大気中液体急冷法により行った。磁気特性の評価は、振動試料型磁力計(VSM)により、飽和磁化 M_s [emu/g]を、薄帯用磁気特性測定装置²⁾により保磁力 H_c [A/m]及び比磁化率 χ_r を測定することにより行った。形状記憶特性の評価は、形状記憶効果²⁾ SME [%]を測定した。また、VSM により、キュリー点 T_c [°C]、熱機械分析装置(TMA)によりオーステナイト変態終了温度 A_f [°C]の測定を行った。

実験結果及び考察

Fig. 1 と Fig. 2 に $Fe_{71.5-x}Cr_9Ni_6Si_xCo_4Mn_4$ 合金の飽和磁化 M_s と形状記憶効果 SME の測定結果をそれぞれ示す。Fig.1 に示すように、Si の含有量が減少することで飽和磁化 M_s の値は増加している。これは、Si の含有量を減らし、Fe に置換した結果である。また、Fig. 2 より、形状記憶効果 SME は Si の含有量が 5wt%以下の試料において急激に低下することが確認された。これは主相となる形状記憶相の減少が原因と考えられる。今回作製した Si の含有量が 5.1wt%の $Fe_{71.9}Cr_9Ni_6Si_{5.1}Co_4Mn_4$ 試料は、飽和磁化 M_s が 69.5emu/g で形状記憶効果 SME が 100%となり、形状記憶特性を劣化させることなく、磁気特性の向上に成功している。詳細な実験結果は発表時に報告する。

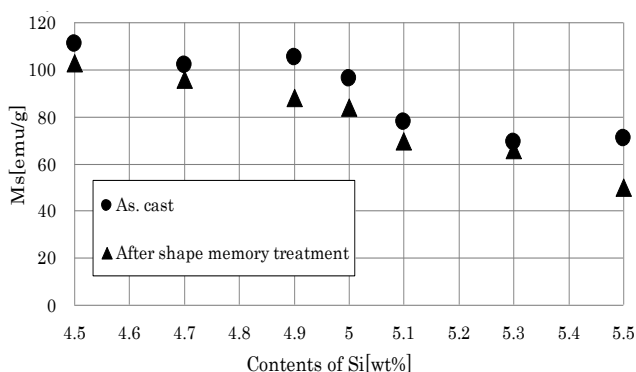


Fig.1 M_s vs. Si contents in wt%.

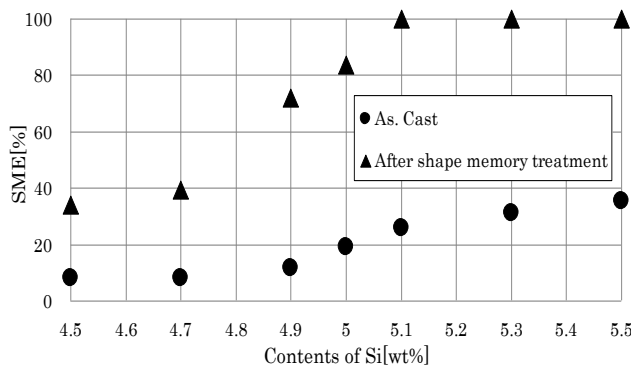


Fig.2 SME vs. Si contents in wt%

参考文献

- 1) T. Todaka, M. Szpryngacz, M. Enokizono, International Journal of Applied Electromagnetics and Mechanics, IOS-press, Vol.19, No.1-4, pp.149-152, 2004.
- 2) T. Todaka, Journal of JSAEM, vol. 12, No. 3, pp. 169-174, 2004.

ナノ結晶のランダム磁気異方性のシミュレーション

李昇珍、井波暢人*、石川 正*、岩野 薫*、三俣千春**、小野寛太*、柳原英人、喜多英治
(筑波大学、*高エネルギー加速器研究機構、**物質・材料研究機構)

Micromagnetics simulation of random magnetic anisotropy in magnetic nanocrystals

S.-J. Lee, N. Inami*, T. Ishikawa*, K. Iwano*, C. Mitsumata**, K. Ono*, H. Yanagihara, E. Kita
(University of Tsukuba, *KEK, *NIMS)

はじめに

ナノ結晶磁性材料に発現する軟磁性特性は、Herzer によって提唱されたランダム磁気異方性(Random Anisotropy Model)で解釈され、保磁力が粒径の 6 乗に比例する関係が示されている¹⁾。ナノ結晶の粒径によって変化する交換結合長と磁化の実空間分布との関係を明らかにするために、シングルスピンモデルによる Landau-Lifshitz-Gilbert(LLG)方程式を用いてシミュレーションを行なっている²⁾。粒径と保磁力の関係を調べるため計算セルサイズ(N)を 10~80 に対してシミュレーションを行なったところ、保磁力は D の 4~5 乗に比例し、 N が大きくなるとその指数は小さくなる傾向が見られた³⁾。さらに N を 128 まで増やして計算しても、保磁力は D^4 に近い関係に従い 6 乗則には近づかなかった。そこでシングルスピンモデルで用いた粒子間交換相互作用 $E_{\text{int}} \sim D^{-(1+\delta)}$ ($\delta=0$)において δ の値を修正して保磁力が D^6 乗則に従う場合の粒子間相互作用を議論することとした。

シミュレーション手法と結果

一辺 D の立方体形状の磁性粒子を $N \times N \times N$ の格子点に配置し、各粒子にはランダムな一軸磁気異方性と、粒子間強磁性交換相互作用を与えて、式(1)の LLG 方程式により磁化曲線のシミュレーションを行なった。計算セルサイズ(N)を 16, 32, 64, 128 に設定しスーパーコンピュータ (SR16000/M1)を用いた。

$$\frac{d\vec{m}_i}{dt} = -\gamma [\vec{m}_i \times \vec{H}_{\text{eff}}] - \frac{\alpha}{m} [\vec{m}_i \times [\vec{m}_i \times \vec{H}_{\text{eff}}]] \quad (1)$$

粒径を 5nm~30nm とし、保磁力と磁化過程での磁化分布を求めた。Fig.1 に保磁力の粒径依存性を示す。シングルスピンモデルで粒子間交換相互作用 E_{int} は $D^{-(1+\delta)}$ に比例すると仮定した。 δ が 0 の場合 H_c は D の 4.76 乗に比例し、6 乗に比例するためには $\delta=0.29$ になる(Fig.2)。 δ は計算サイズ N により変化する結果がえられ、 $N=16$ のときは $\delta=0.1$ 、 $N=32$ のとき $\delta=0.29$ になった。さらに N を増やして δ の値を求め、物理的な意義を議論する予定である。

謝辞

本研究は、(独) 科学技術振興機構 (JST) による産学共創基礎基盤研究「革新的次世代高性能磁石」の支援を受けて行なわれたものである。

参考文献

- 1) G. Herzer, *J. Magn. Magn. Mater.*, 294 (2005) 99., G. Herzer, *Handbook of Magnetic Materials*, vol. 10, Elsevier, Amsterdam 1997, p.415.
- 2) S.-J. Lee, *et al.*, *J. Magn. Magn. Mater.* 323 (2011) 28.
- 3) S.-J. Lee, *et al.*, *J. Kor. Phys. Soc.* 63 (2013) 768-772

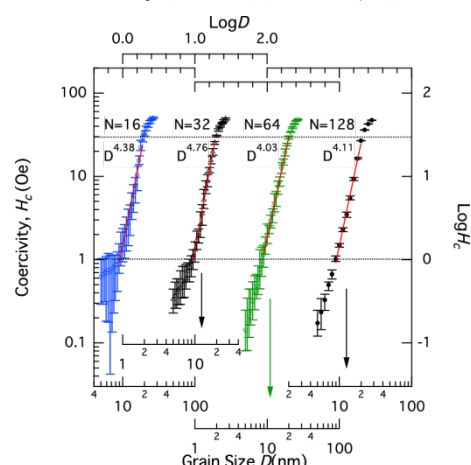


Fig 1. 粒径と保磁力の関係 ($N=16\sim128$)

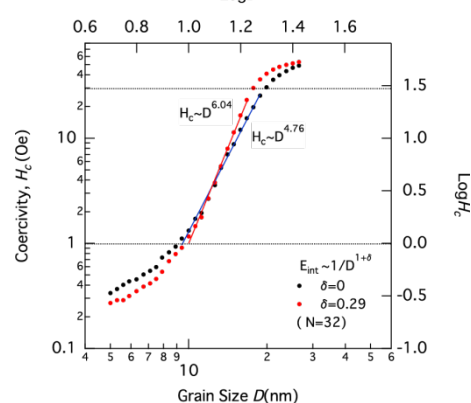


Fig 2. 粒子間交換相互作用による粒径と保磁力の関係($N=32$)

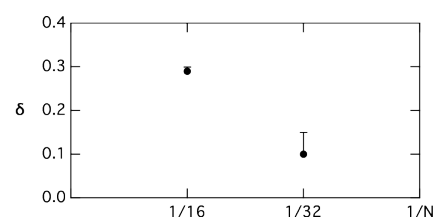


Fig 3. δ の計算サイズ N 依存性
粒子間交換相互作用: $E_{\text{int}} \sim D^{-(1+\delta)}$

アモルファス CoFeSiB 薄膜の耐熱性の向上

神保睦子, 藤原裕司*, 清水利文

(大同大学, *三重大学)

Improvement of thermal stability of CoFeSiB thin films

T.Shimizu, Y.Fujiwara, M.Jimbo

(Daido Univ., *Mie Univ.)

1. はじめに

アモルファス (a-) CoFeSiB 合金は、磁歪がほぼゼロで保磁力が 0.1Oe 以下と軟磁気特性に非常に優れており、1970 年代に東北大学金属材料研究所の増本健教授のグループが多くの研究¹⁾を行なっている。一方、近年、磁性グラニューラー薄膜の TMR を利用した GIG 磁気センサー²⁾の開発が進展している。この GIG 磁気センサーは、軟磁性薄膜をヨーク部に使用し、軟磁性薄膜の漏れ磁界を利用してグラニューラー薄膜の TMR 特性の感度を上昇させている。現在、ヨーク部に主に用いられているのが a-CoFeSiB 薄膜である。この薄膜は、非常に軟磁気特性に優れているが、薄膜であるために合金より耐熱性が低く、そのため、センサーに加工するための耐熱性の改善が必要である。一般にメタル-メタロイド系のアモルファス薄膜の結晶化温度は、メタル-メタル系のアモルファス薄膜よりも低い。そこで、a-CoFeSiB 薄膜に Zr などの金属を少量添加してその耐熱性の向上を検討したので、その結果について報告する。

2. 実験方法

試料は、RF スパッタ装置を用い、CoFeSiB ターゲットとその上に金属チップ (Ti, Zr, Ta, Nb, Hf, Mo, Cr) を数個置いて作製した。金属チップの大きさは 5x5x1mm で、組成は金属の種類により少しばらつきがあり数 at% である。作製した試料の膜厚は約 500nm で、上部には保護膜として SiN 膜を 10nm 蒸着した。作製した試料は、 2×10^{-5} Torr の真空中で 1 時間磁界中熱処理を行なった。熱処理温度は、200℃ から 350℃ である。磁気特性は VSM で測定し、XRD など構造を解析した。

3. 実験結果

作製した試料の保磁力は、添加した金属により変化した。Ti や Cr を添加した試料では、作製したままの状態では保磁力が大きくなり、その他の試料では保磁力の変化は見られなかった。特に、Hf と Ta を添加した試料では Fig. 1 に示すように、CoFeSiB よりも高い熱処理温度まで低い保磁力を維持した。この時の Ta を添加した試料の飽和磁化の変化を Fig. 2 に示す。飽和磁化は CoFeSiB よりも添加量により減少するが、CoFeSiB よりも熱処理による低下が小さいことが分かる。このように、Hf や Ta をわずか添加するだけで CoFeSiB 薄膜の軟磁気特性の耐熱性に向上が見られた。

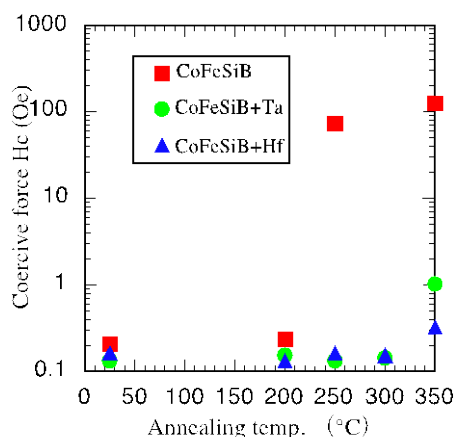


Fig.1 Dependence of the coercive force on annealing temperature for CoFeSiB, CoFeSiB+Ta and CoFeSiB+Hf thin films.

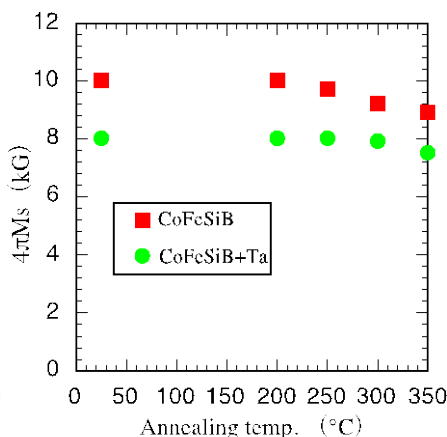


Fig.2 Dependence of the saturation magnetization on annealing temperature for CoFeSiB and CoFeSiB+Ta thin films.

参考文献

例えば

- H.Fujimori and N.S.Kazama : Sci Rep. RITU, A-27 (1979) 177
 2) N.Kobayashi et al. : J.Magn. Magn.Mater.,30,188(1998)

厚肉非晶質合金箔の加工性と磁気特性

佐藤 駿

(SACO 合同会社)

Magnetic properties of thick amorphous alloy sheets

T. Sato

(SACO Limited Liability Company)

はじめに

急冷法で作製される市販の非晶質合金箔の板厚はすべて $30\mu\text{m}$ 以下である。板厚が2倍になれば生産性が上がりコストダウンになる。変圧器のコアでは占積率が向上し機器の小型化ができる。巻線の量も削減され機器の価格を下げるができる。実験室規模ではすでに $100\mu\text{m}$ をこえる板厚が達成されている¹⁾。しかし、工業規模では、 $40\mu\text{m}$ 以上の非晶質箔が製造されたという報告を聞かない。著者らは最近、25mm 幅、 $50\mu\text{m}$ 厚の FeSiB 非晶質箔帯を連続で 150kg 製造できることを実証した。

本報告では、その厚肉箔の加工性、磁気特性について報告する。

製造方法

合金組成 $\text{Fe}_{78}\text{Si}_9\text{B}_{13}$ (at%) の非晶質箔帯が、文献 1) に示されるダブルスリットノズル法を用いて作製された。幅 25mm、板厚 $50\mu\text{m}$ である。ロールの肉厚を十分大きくすることが重要である。周速は 25m/s で通常板厚 (約 $25\mu\text{m}$) と同じである。パドル付近の様子を Fig.1 に模式的に示した。

加工性

フリー面を外にして密着曲げできる。ロール面を外にすると破断した。スリット加工ができる。最小幅は 1 mm であった。ハンディタイプの金型で冷間打抜き加工ができる。

磁気特性

As cast の磁気特性を Fig.2 に示す。鉄損は 2kHz 以下の周波数で、同じ板厚の 3%珪素鋼板の約 1/2 である。6.5%珪素鋼板に比べても低い。市販の非晶質箔 ($25\mu\text{m}$) よりわずかに大きい。

Fig.3 は、トロイダルコアの無磁場焼鈍後の 50Hz における BH 特性を示す。 $B_m=1.38\text{T}$ における鉄損は方向性電磁鋼板 23ZH85 の 55% である。

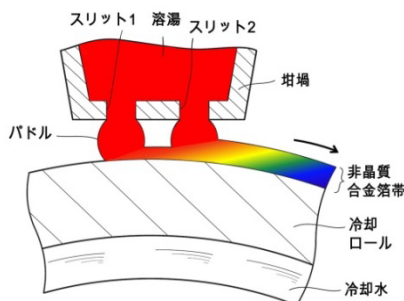


Fig.1 Schematic view of double slotted nozzle method.

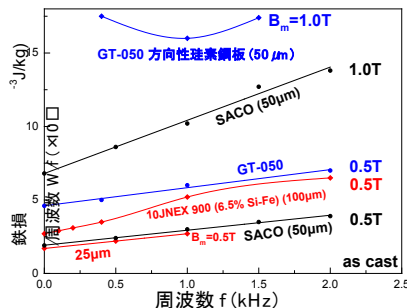


Fig.2 Core losses of thick amorphous sheet comparing other materials.

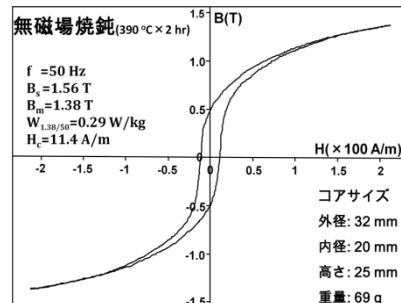


Fig.3 BH loop of thick sheet non-field annealed.

文献 1) 日本特許登録番号 1575136(1990)

コア-シェル構造 CoPt-CoFe₂O₄ 粒子の作製とその還元雰囲気熱処理による 結晶構造および磁気特性の変化

クヤ ジョン、宮村 弘、バラチャンドラン ジャヤデワン、石尾 俊二*
(滋賀県立大学、秋田大学*)

Structural and magnetic property changes of core-shell structured CoPt-CoFe₂O₄ particle during heat treatment under reducing atmosphere

Cuya Jhon, Miyamura Hiroshi, Balachandran Jeyadevan, Ishio Shunji*
(The University of Shiga Prefecture, Akita University*)

1. Introduction

Energy product (BH)_{max}, which is a function of saturation magnetization(M_s) and magnetic anisotropy of the material, is the decisive factor in the development of strong magnets. Though record energy product has been obtained by the invention of Nd₂Fe₁₄B, the use of rare-earth elements such as Nd has prompted the researchers to look for (a) new compounds composed of earth abundant materials with high magnetization and high anisotropy on one hand and (b) exchange-coupling between hard-magnetic compound and a soft phase with high M_s . We attempted the preparation of exchange-coupled magnet through the formation of CoPt(core)-FeCo(shell) using solution technique and subsequent heat treatment. Here, the synthesis of core-shell structured CoPt-CoFe₂O₄ particle and structural and magnetic property changes during heat treatment under reducing atmosphere are reported.

2. Experimental

CoPt nanoparticles with varying composition and size ranging between few nm to few tens of nm were synthesized by heating in an alcoholic solution containing cobalt acetate, dihydrogen hexachloroplatinate and surface protecting agent, oleylamine. Then, these particles were introduced into a mixture of oleylamine and oleic acid, containing cobalt and iron acetylacetonate. Finally, the suspension was heated to temperatures above 250 °C to obtain the CoFe₂O₄-coated CoPt particles. The core-shell structured CoPt-CoFe₂O₄ particles were heat treated under reducing atmosphere to obtain a soft-hard magnetic composite. Morphological, structural and magnetic properties of the products obtained at various heat treatment temperatures were analysed using TEM, XRD and VSM, respectively.

3. Results and Discussion

A typical result obtained from the morphological analysis of the samples synthesized using the above technique is shown in Fig. 1(a). The presence of the CoPt core surrounded by the cobalt ferrite shell was confirmed from the observation under TEM and EDS mapping. Though the heat treatment under hydrogen atmosphere was carried out to reduce the CoFe₂O₄ shell and to obtain high M_s and magnetically soft FeCo alloy shell, the presence of FeCo was not determined at none of the heat-treatment temperatures. In contrast, CoFe₂O₄ crystals grew with higher heat treatment temperatures. Then, at 600 °C underwent reduction and diffused into the CoPt core. This transition was clearly observed in the XRD profiles (Fig. 1(b)) and in the transmission micrograph (Fig. 1(c)). On the other hand, the coercivity of the particles exhibited a maximum of 1.1 kOe, when shell was partially reduced. The details of the structural transformation process and the magnetic properties obtained thereof will be discussed.

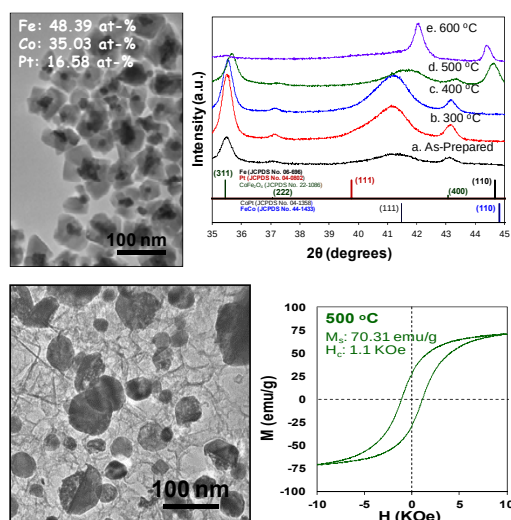


図 1 (a) TEM photograph of core-shell structured CoPt/CoFe₂O₄, (b) XRD patterns of the product heat-treated at different temperatures, (c) micrograph of the product annealed at 600 °C, (d) magnetic loop of the product annealed at 500 °C.

FeCo-MgF ナノグラニューラー膜の磁気-誘電効果

小林伸聖, 岩佐忠義, 石田今朝男, 増本博*, 高橋三郎**, 前川禎通***
(電磁研, *東北大学際研, **東北大金研, ***原研先端基礎研)

Magnetic-dielectric effects of FeCo-MgF insulating nanogranular films

N. Kobayashi, T. Iwasa, K. Ishida, H. Masumoto*, S. Takahashi**, and S. Maekawa***
(DENJIKEN, *FRIS, Tohoku Univ., **IMR, Tohoku Univ., ***ASRC, JAEA)

はじめに

金属-絶縁体ナノグラニューラー薄膜は、絶縁体マトリックスに微細な金属グラニュールが分散したナノメーターサイズの構造を有し、高周波軟磁性やトンネル型磁気抵抗効果などの、絶縁体と磁性粒子の双方の特性が複合化したユニークな機能性を発現する。マトリックスの絶縁体は誘電特性を示すので、金属グラニュールを含むナノグラニューラー構造薄膜において、特徴的な誘電特性を示すことが期待される。本研究では、結晶化したマトリックスを有するナノグラニューラー薄膜として FeCo-MgF 系に着目し、その誘電特性および磁気-誘電効果について検討し、その発現メカニズムについて理論考察を行った。

実験方法

薄膜試料は、高周波スパッタ装置により、タンデム法によって作製した。ターゲットは FeCo 合金円板(75mm φ)と, MgF₂ 円板(75mm φ)を用いた。誘電特性評価には LCR メーターを用い、磁化曲線は, AGM (alternating gradient magnetometer) で測定した。構造解析は XRD および高分解能 TEM, 組成分析は WDS によって行った。尚, 各測定は室温で行った。

結果

Fig. 1 には Fe₉Co₈Mg₂₆F₅₇ 膜の印加磁界 (H) と誘電率の変化率 ($\Delta \epsilon' / \epsilon'_0$) を示す。誘電率は, H の増加に伴って増加し, H=800kA/m において約 3% の変化率を示す。 $\Delta \epsilon' / \epsilon'_0$ は $(M/M_{1200})^2$ の外挿曲線と非常に良く対応しており、このことは、誘電率の変化が膜の磁化過程に対応していることを示している。この膜の電気抵抗率は我々の測定系の上限限界の $\sim 10^4 \Omega \text{m}$ を超えたほぼ絶縁体であり、磁気抵抗効果も観測されないことから、この膜の磁気-誘電効果は複相系の古典論では説明することができない。我々は、電界変化に伴うナノグラニュール間の電荷の振動を考慮することによって、ナノグラニューラー膜の誘電特性の挙動およびその磁界変化のメカニズムを解明し、理論計算と実験値の非常に良好な一致を確認した。これまでに報告されているマルチフェロイック材料等の磁気-誘電効果を示す材料は、特性が確認される温度は -200℃ 程度の極低温であり、室温で磁気-誘電効果が確認されたのは、実用的にも有意な結果である。

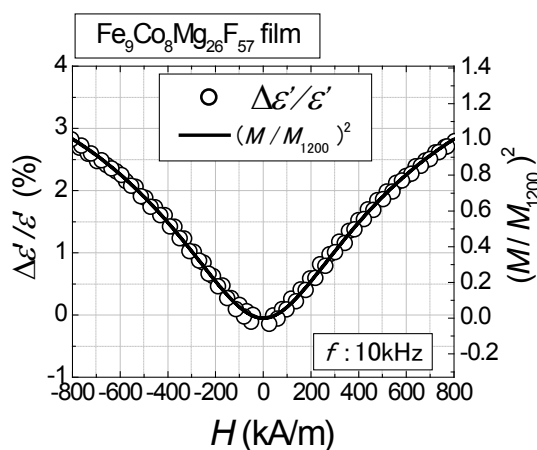


Fig. 1. Magnetodielectric ratio $\Delta \epsilon' / \epsilon'_0$ vs. applied magnetic field H in the Fe₉Co₈Mg₂₆F₅₇ film. The solid curve represents the values of $(M/M_{1200})^2$ as a function of magnetic field H.

Co₂Fe(AlSi)-MgF₂ グラニューラー薄膜のトンネル磁気抵抗効果

篠田将利、藤原裕司、前田浩二、加藤剛志*、服部真史**、神保睦子**、小林正
(三重大工、*名古屋大工、**大工大)

Tunneling magnetoresistance effect of Co₂Fe(AlSi)-MgF₂ granular films

M. Shinoda, Y. Fujiwara, K. Maeda, T. Kato*, M. Hattori**, M. Jimbo**, T. Kobayashi
(Mie Univ., *Nagoya Univ., **Daido Univ.)

はじめに

磁性金属-絶縁体グラニューラー薄膜のTMR比は磁性金属のスピンの分極率に依存すると報告されている¹⁾。また、ハーフメタルであるCFASのスピンの分極率は、化学組成に密接に関係がある²⁾。しかしながら、CFAS-MgF₂グラニューラー薄膜では微粒子表面に化合物が形成され、その結果CFAS微粒子の組成が変化する可能性が考えられる。また、高感度磁界センセGIGS^{®3)}の実現のため高い耐熱性が求められている⁴⁾。本研究では、Al、Siの組成を変化させたCo₂Fe(AlSi)-MgF₂グラニューラー薄膜を作製し、CoとFeに対するAlとSiの組成比依存と耐熱性について検討した。

実験方法

試料はRF及びDCマグネトロンスパッタ法を用いて成膜した。基板には熱酸化膜付Si(100)とNaClを使用した。組成変化はCFASターゲット上にAl、Siのチップを置くことで制御し、各組成はEPMAにより分析した。膜構成はSubstrate/MgF₂ (10 nm)/CFAS(1 nm)/MgF₂ (5 nm)である。成膜後CFASの規則化を促すために、真空中において任意の温度で1時間保持することで熱処理を行った。MR効果は直流2端子法で、最大印加磁界±15kOeで測定した。測定はすべて室温で行った。CoとFeに対するAlとSiの組成比をXとする(1)。

$$X = \frac{Al + Si}{Co + Fe} \dots(1)$$

実験結果

Fig. 1は熱処理前(as-dep.)と熱処理後(Ta=300°C)の試料のMR比の組成依存性である。as-dep.において、MR比はXに従って減少傾向にあった。これは増加させたAl、Siが非磁性体であるため、磁性金属微粒子の磁気モーメントが減少したことに起因していると考えている。また、Ta=300°Cにおいて、MR比はX=0.47で11.7%の極大を示した。また、組成変化前(X=0.33)のTa=300°Cでは5.9%とMR比は減少したが、X=0.47のTa=200, 300°Cではそれぞれ11.9, 11.7%と高いMR比を示している(Fig.2)。これにより、Ta=300°Cまでの温度範囲において高いMR比を保持し、高い耐熱性を得られたことが確認できた。以上の結果から、成膜時の磁性金属の組成を変化することは、熱処理後のMR比の向上において一つの有効な手段であると考えている。

参考文献

- 1) J. Inoue and S. Maekawa., Phys.Rev.B., **53**, R11927(1996).
- 2) Y.K.Takahashi et al., Materia Japan., **47**(8), pp406-412 (2008)
- 3) N. Kobayashi et al., 電気学会マグネティックス研究会資料, **06-81**, 41-46 (2006)
- 4) N. Kobayashi et al., 日本金属学会誌, **76**, **6**, pp. 375-379 (2012)

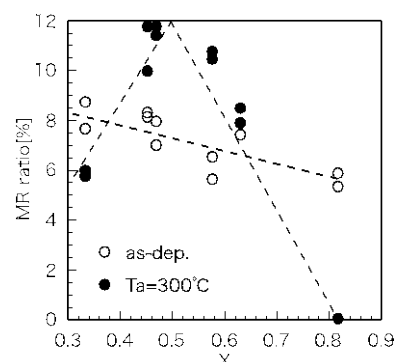


Fig. 1 MR ratio of the as-dep. and Ta=300°C films as function of X.

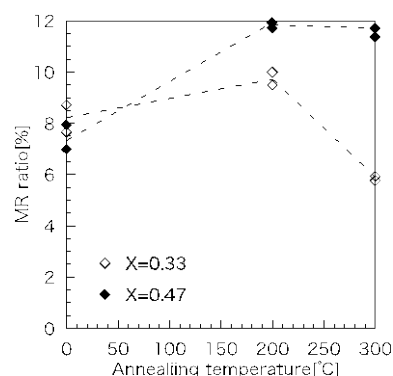


Fig. 2 Annealing temperature dependence of MR ratio

液相放電法で作製されたカーボン微粒子の磁気特性

稲森太一、藤原裕司、村上淳、田中貴大、高瀬祥、前田浩二、神保睦子*、青木裕介、小林正
(三重大工、*大同大)

Magnetic properties of carbon nano-particles synthesized by discharge in ethanol

T. Inamori, Y. Fujiwara, J. Murakami, T. Tanaka, S. Takase, K. Maeda, M. Jimbo*, Y. Aoki, K. Kobayashi
(Mie Univ., *Daido Univ.)

はじめに

グラフェンの端を水素などで終端すると強磁性を示すと理論的に指摘されている¹⁾。実験的にも、水素含有雰囲気下でレーザ蒸発させたナノカーボン微粒子²⁾や高温で熱処理したグラフェン³⁾が強磁性を示すとの報告がある。炭素単体を強磁性化できれば応用面からも興味深い。本研究では液相放電法で合成したカーボン微粒子およびグラフェンの磁気特性を評価したので報告する。

実験方法

カーボン微粒子はエタノール中の放電により合成した。放電電流は 10A である。グラフェンは Cheap Tubes Inc.より酸化グラフェンを購入し、試料とした。どちらの試料も水素の吸着を目的として Ar, H₂ 混合ガス雰囲気下、大気圧、800℃～900℃で熱処理（水素処理）を行った。酸化グラフェンに関しては、水素処理における水素の吸着を促進させることを目的として、処理前に 16 時間超音波処理を行った。TGA, XRD, TEM で構造解析を用い、VSM で磁気特性を評価した。

実験結果

Fig.1 にグラフェンの磁気特性を示す。未処理のグラフェンはグラファイトと同様に反磁性を示しているが、水素処理を行ったグラフェンのヒステリシスループは強磁性的な形状を示している。飽和磁化を見積もると 0.04 emu/g 程度であり、この値は、Wang らが報告している熱処理した酸化グラフェンの飽和磁化の値³⁾と同程度である。水素処理により、磁気特性に変化が表れていることから、水素の存在がグラフェンの磁気特性に影響を与えていることがわかる。

Fig.2 は液相放電法で合成したカーボン微粒子の磁気特性である。水素処理前は反磁性を示しているが、処理後に若干の常磁性を示しており、水素処理により磁気特性に変化が表れたことがわかる。また、TGA, XRD から、水素処理後にカーボン微粒子の結晶性が向上していることがわかっている。Asano らは結晶性の低いナノカーボン微粒子が強磁性を示し、結晶性の向上が強磁性の消失につながると報告しており²⁾、水素処理による結晶性の向上が今回のカーボン微粒子が強磁性を示さなかった原因の 1 つであると考えられる。

参考文献

- 1) N. Ohta et al.: J. Magn. Soc. Jpn. **34** (2010) 573.
- 2) H. Asano et al.: J. Phys.: Cond. Matter. **22** (2010) 334209.
- 3) Y. Wang et al.: Nano Lett. **9** (2009) 220.

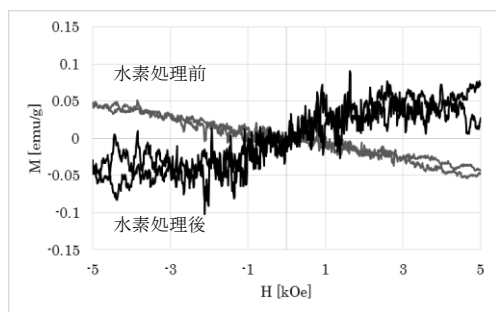


Fig.1 Magnetic hysteresis loops of graphene powder.

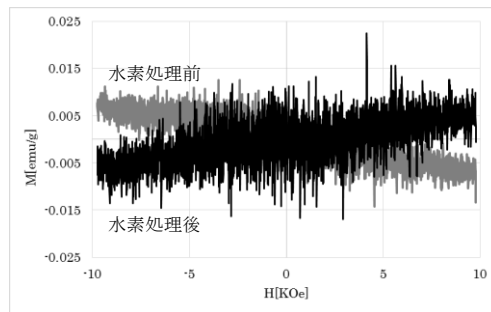


Fig.2 Magnetic hysteresis loops of carbon nano-particles.

化学的手法により合成した Fe ナノ粒子の生成過程、生成相と飽和磁化の相関

○小川智之
(東北大院工)

Correlation between growth dynamics, phase and saturation magnetization of Fe nanoparticles synthesized by chemical route

○T. Ogawa
(Eng. Tohoku Univ.)

はじめに

新たな磁気デバイス用材料のひとつとして、高飽和磁化を有する磁性ナノ粒子の集合体の研究・開発が盛んに行われている。例えば、化学的に合成された Fe ナノ粒子は高飽和磁化を有しており、そのポリマーとの複合材料は粒子間で働く強い双極子相互作用磁界(3kOe 以上)を起源とした高周波駆動デバイス用材料として注目されており、我々の研究グループでも精力的に研究を行ってきた。これまでの我々の研究から、合成した Fe ナノ粒子の飽和磁化は温度や反応時間等の合成条件に非常に敏感であり、特に、界面活性剤の役割が重要であることを見出してきた。本研究では、種々の界面活性剤を用いて合成した Fe ナノ粒子について、Fe 原材料の熱分解過程の知見を交えながら、飽和磁化および結晶構造との関係を議論する。

実験方法

Fe ナノ粒子表面への物理・化学吸着力の指標として界面活性剤の分子構造を反映した極性を表す親水新油バランス (HLB) 値を用い、比較的強く吸着する界面活性剤としてオレイルアミン (OlAm; HLB = 9.3)、弱く吸着する界面活性剤としてトリベンジルアミン(TBeAm; HLB = 2.3)、トリオクチルアミン (TOcAm; HLB = 1.3) を選択した。これらの界面活性剤を含んだ溶媒中で $\text{Fe}(\text{CO})_5$ を熱分解することによって Fe ナノ粒子を得た。得られた Fe ナノ粒子に対し、X 線回折(XRD)、X 線吸収微細構造解析(XAFS)、透過型電子顕微鏡観察(TEM)、飽和磁化の評価を行った。また、フーリエ変換型赤外吸収(FT-IR)スペクトルを用いて $\text{Fe}(\text{CO})_5$ の熱分解過程を評価した。

実験結果

TBeAmおよびTOcAmを用いた場合、飽和磁化は最大で200emu/g程度であり、バルク値(220emu/g)に匹敵する値となっていることが分かった。また、OlAmを用いた場合では160emu/gと20%程度小さい。XRDおよびXAFSの結果から、飽和磁化が大きいFeナノ粒子ではバルクFeと同様のbcc相を長周期で構成しているのに対し、飽和磁化が小さいFeナノ粒子では格子が伸張し歪み、かつ、短周期の構造であることが分かった。以上の結果から、飽和磁化と結晶相との間に相関があり、これはFe原子間で働く交換相互作用に起因するものと考えられる。一方、図1に示すFT-IRの結果から、 $\text{Fe}(\text{CO})_5$ の分解は界面活性剤種に依存し、TBeAmやTOcAmでは $\text{Fe}(\text{CO})_5$ の熱分解が緩やかであることが分かる。以上の結果から、緩やかな $\text{Fe}(\text{CO})_5$ の熱分解はFeナノ粒子生成時に緩やかなFe原子の供給につながり、結果として、長周期のbcc相の形成を促し、飽和磁化の大きなFeナノ粒子となることが推察される。

本研究の一部は日本学術振興会科学研究費補助金 基盤研究(B) 23360132、若手研究 (A) 26709018によって支援されている。

参考文献

- 1) M. Kamata *et. al.*, IEEE Trans. Magn. **48**, No.11, 3944 (2012).
- 2) H. Kura *et. al.*, J. Phys. Chem. C **114**, 5835 (2010).
- 3) T. Ogawa *et. al.*, J. Magn. **16**(3), 308 (2011).

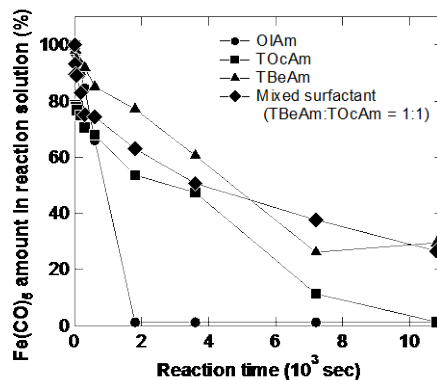


Fig.1 $\text{Fe}(\text{CO})_5$ amount vs. reaction time for synthesis of Fe NPs using various kinds of surfactant.

水素ガス中低温熱処理による Fe ナノ粒子の飽和磁化改善

金甫根、藏裕彰、田中雅明、林靖、長谷川順、小川智之*
((株) デンソー、*東北大院工)

Improvement of saturation magnetization of Fe nanoparticles
by low-temperature post-annealing in a hydrogen atmosphere

M. Kin, H. Kura, M. Tanaka, Y. Hayashi, J. Hasegawa, T. Ogawa*
(DENSO CORPORATION, *Eng. Tohoku Univ.)

はじめに

Fe ナノ粒子は他の磁性ナノ粒子と比べ高い飽和磁化を有するため、基礎的な研究だけでなく新規軟磁性材料などへの応用に向けた研究も盛んに行われている。Fe ナノ粒子の合成法の一つとして、 $\text{Fe}(\text{CO})_5$ の熱分解法が知られている。その方法を改良した $\text{Fe}(\text{CO})_5$ とオレイルアミンを反応させた前駆体(反応前駆体)を熱分解させる方法は、Fe ナノ粒子の粒径を 10 nm 以下の範囲で制御することに優れている¹⁾。しかしながら、反応前駆体の熱分解法で得られた Fe ナノ粒子(6.5 nm)の飽和磁化は 300 K で 155 emu/g_{net} であり、バルクの α -Fe の値の 71%に留まっている²⁾。その原因は得られたナノ粒子の結晶構造が α -Fe に比べて歪んでいることだと考えられている。本研究では Fe ナノ粒子の歪みを緩和し飽和磁化を向上させるため、水素雰囲気中で熱処理することを試みた。

実験方法

$\text{Fe}(\text{CO})_5$ とオレイルアミンを反応させた前駆体を溶媒中で熱分解することによって Fe ナノ粒子を合成した。合成後、ナノ粒子を洗浄し永久磁石で回収した。回収したナノ粒子を減圧乾燥($\sim 10^{-2}$ Torr)により粉末状とした。その後、水素ガス中において 200 °C で 4 時間熱処理を行った。X 線回折装置(XRD)、透過型電子顕微鏡(TEM)、試料振動型磁力計(VSM)を用いて、Fe ナノ粒子の結晶構造、粒径、磁気履歴曲線を評価した。

実験結果

合成直後と水素ガス中熱処理後の Fe ナノ粒子の XRD の結果を Fig.1 に示す。合成直後は α -Fe のピーク位置に比べて低角側に回折線が確認され、格子が広がるように歪んでいることがわかる。一方、水素ガス中熱処理後は α -Fe のピーク位置とほぼ同じ位置に回折線が確認された。合成直後および水素ガス中熱処理後の Fe ナノ粒子の飽和磁化の大きさは、Fig.2 に示す磁気履歴曲線からそれぞれ 86 emu/g_{net}, 188 emu/g_{net} であった。水素ガス中熱処理後に飽和磁化が大きく向上した原因は、Fe ナノ粒子の結晶構造が α -Fe に近づいたためだと考えられる。また、合成直後と水素ガス中熱処理後の TEM 像より、Fe ナノ粒子の平均粒径が 6.5nm であり、熱処理前後でナノ粒子の粒径に変化がないことがわかった。これは界面活性剤が脱離・分解しないで粒子表面に配位しているためと考えられる。以上の結果より、低温の水素ガス中で熱処理を行うことで、10nm 以下の高飽和磁化の Fe ナノ粒子を得ることができた。

参考文献

1) T. Ogawa et. al., J. Magn. Soc. Jpn., 36, 202 (2012)

2) M. Kamata et. al., J. Magn. Soc. Jpn., 36, 309 (2012)

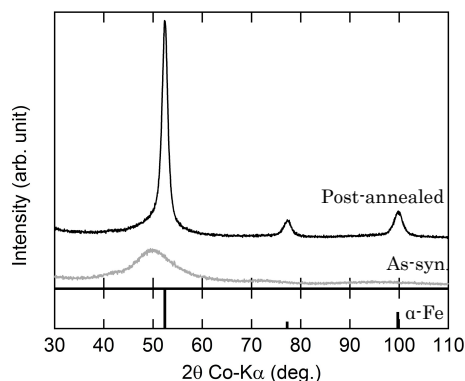


Fig.1 XRD patterns of Fe nanoparticles

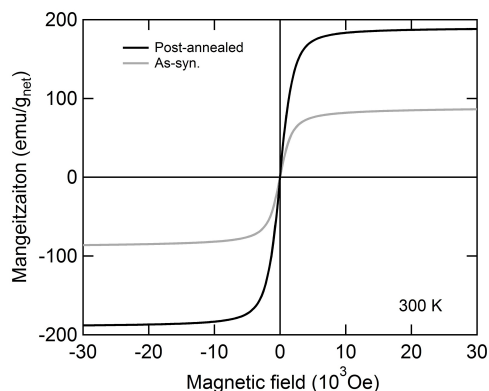


Fig.2 M-H curves of Fe nanoparticles

電界により誘導される磁気相転移の観測に向けた

 α -Fe / MgO ナノ粒子集合体の作製

石山敦之、佐藤徹哉

(慶應義塾大学)

Preparation of α -Fe / MgO Nanoparticle Assembly for Observation of Magnetic Phase Transition induced by Electric Field

A.Ishiyama, T.Sato

(Keio Univ.)

はじめに

強磁性ナノ粒子の集合体は超常磁性、スーパースピングラス磁性、超強磁性といったバルクにはない特有の磁気秩序を示す。これらの磁気秩序はナノ粒子間の磁気双極子相互作用エネルギー E_{dip} とナノ粒子の磁気異方性エネルギー E_a の比 E_{dip}/E_a を秩序パラメータとして相転移を起こすと考えられている[1]。本研究では電界を用いてナノ粒子の E_a を変調し、超常磁性 $\leftrightarrow$ スーパースピングラス磁性間、スーパースピングラス磁性 $\leftrightarrow$ 超強磁性間の磁気相転移を起こすことのできる α -Fe / MgO ナノ粒子の作製を目指す。

実験方法

α -Fe / MgO ナノ粒子の作製を以下の方法で目指した (Scheme.1)。まずベンジルエーテル中で $\text{Fe}(\text{CO})_5$ の熱分解を用いて α -Fe ナノ粒子を作製した。ここに $\text{Mg}(\text{OH})_2$ を分散させたオクチルエーテルを少量加え、加熱によりオクチルエーテルを蒸発させるという工程を繰り返すことで α -Fe ナノ粒子上に $\text{Mg}(\text{OH})_2$ を析出させ、 α -Fe / $\text{Mg}(\text{OH})_2$ ナノ粒子を作製した。その後マッフル炉で α -Fe / $\text{Mg}(\text{OH})_2$ ナノ粒子を熱処理することで $\text{Mg}(\text{OH})_2$ の脱水反応を促し α -Fe / MgO ナノ粒子の作製を目指した。

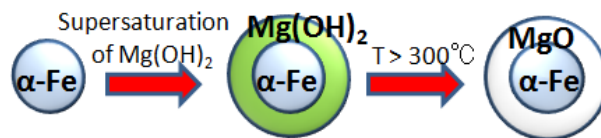
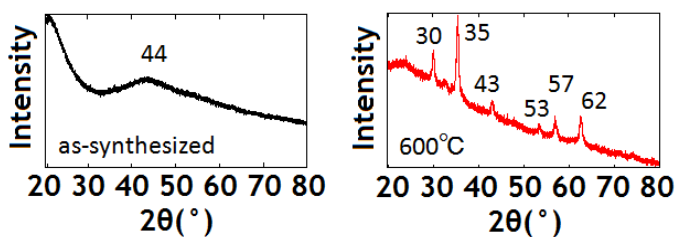
Scheme.1 Synthesis of α -Fe / MgO nanoparticles .**結果**

Fig.1 に熱処理前後の試料の X 線回折の結果を示す。熱処理前の試料では α -Fe のピークが観測され、熱処理後の試料では Fe_3O_4 のピークが観測された。大気中で 600°C で熱処理をしても γ - Fe_2O_3 のピークが観測されなかったことは、ナノ粒子の表面に MgO が存在し、酸化防止膜の役割を果たしていることを示唆している。今後は試料を真空中で熱処理することで α -Fe の Fe_3O_4 への酸化を防ぎ、 α -Fe / MgO ナノ粒子を作製する。講演では作製した α -Fe / MgO ナノ粒子集合体の特性についての議論を行なう。

Fig.1 XRD profiles of the nanoparticles
(black : before calcinated, red : after calcinated).**参考文献**

[1] K. Hiroi, *et al.*, J. Phys. : Condens. Matter **26**, 176001 (2014).

磁性金属ナノ粒子含有多層カーボンナノチューブの CaH_2 を用いた低温合成

山本真平¹、リース・セインベルグ²、辻本将彦¹、小林洋治²、高野幹夫^{1,3}、陰山洋²
(¹京大物質-細胞統合システム拠点、²京大院工、³岡山大学)

CaH₂-assisted low temperature synthesis of metallic magnetic nanoparticle-loaded multiwalled carbon tubes
S. Yamamoto¹, L. Seinberg², M. Tsujimoto¹, Y. Kobayashi², M. Takano^{1,3}, H. Kageyama²
(¹iCeMS, Kyoto Univ., ²Eng. Kyoto Univ. ³Okayama Univ.)

はじめに

カーボンナノチューブ(CNT)は、その優れた物理・化学的性質により、大きな注目を集めている。これまでに様々な合成方法が開発されており、その中でも有機金属塩を不活性ガス雰囲気下で熱分解することにより CNT を得る手法(熱分解法)は、その簡便さ故に大量生産に適した手法である。熱分解法で得られる CNT は金属ナノ粒子を含んでおり、CNT および金属ナノ粒子に由来する多機能性を活かした応用も期待されている¹⁾。しかし、CNT 生成の触媒として働く金属ナノ粒子を形成する際に必要となる有機物配位子の還元能力が乏しいため、一般に 800°C 以上の高い反応温度が必要であり²⁾、構造制御が困難となる問題があった。本研究では、固相反応における強力な還元剤として注目されている水素化カルシウム(CaH_2)³⁻⁵⁾を添加することにより、CNT 生成温度の低下を試みた結果⁶⁾を報告する。

実験方法

不活性ガス雰囲気下、 CaH_2 とステアリン酸ニッケル(II)(またはステアリン酸鉄(III))を重量比 1:2 で混合・パイレックスガラス管に封入し、400, 450 および 500°C で所定時間熱処理を行った。その後、反応副生成物である CaO や未反応の CaH_2 を洗浄・除去することにより、ニッケル(または鉄)ナノ粒子がドーブされた多層カーボンナノチューブ(MWCNT)を得た。

結果及び考察

Fig.1 に、ステアリン酸ニッケル(II)を 400, 450 および 500°C で 24 時間熱処理することにより得られた試料の透過型電子顕微鏡(TEM)像を示す。いずれの温度においてもニッケルナノ粒子がドーブされた MWCNT の生成が観測されており、 CaH_2 の添加により CNT 生成温度が従来の半分程度にまで低下したことがわかる。当日はステアリン酸鉄(III)を原料とする系と併せて、ニッケル(または鉄)ナノ粒子がドーブされた MWCNT の構造制御・磁気特性についても報告する予定である。

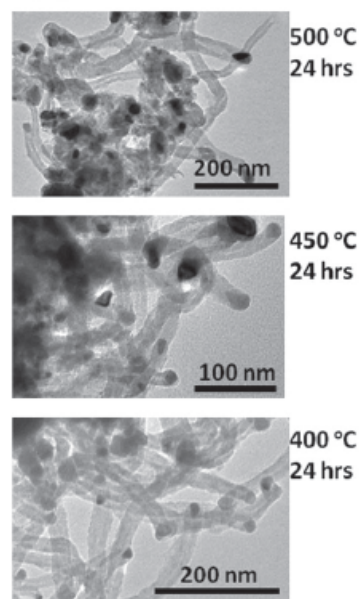


Fig.1 TEM images of the samples prepared with nickel(II) stearate at 500, 450 and 400 °C for 24 h.

参考文献

- 1) A. Masotti and A. Caporali, *Int. J. Mol. Sci.*, **2013**, 14, 24619.
- 2) F. Geng *et al.*, *J. Mater. Chem.*, **2005**, 15, 844.
- 3) S. Yamamoto *et al.*, *Chem. Mater.*, **2011**, 23, 1564.
- 4) L. Seinberg *et al.*, *Chem. Commun.*, **2012**, 48, 8237
- 5) K. Kohara *et al.*, *Chem. Commun.*, **2013**, 49, 2563.
- 6) L. Seinberg *et al.*, *Chem. Commun.*, **2014**, 50, 6866.

超音速フリージェット PVD による Fe 厚膜の成膜と軟磁気特性

湯本敦史, 鷹野一朗*, 丹羽直毅*
(芝浦工大, *工学院大)

Formation and soft-magnetic properties of thick Fe film deposited by Supersonic Free-Jet PVD

A.Yumoto, I.Takano, N.Niwa
(Shibaura Inst. of Tech., *Kogakuin Univ.)

はじめに

超音速フリージェット PVD は、不活性ガス雰囲気中で皮膜となる原料を加熱蒸発させることにより生成される nm サイズの粒子（ナノ粒子）を、超音速のガス流により加速、基板上にナノ粒子を堆積させることにより皮膜形成させる新しい原理による成膜技術である。これまでの研究成果により、ナノ粒子の堆積によって成膜される本法の皮膜はナノ結晶組織を呈し、また、高い成膜速度で膜厚数十 μm 以上の緻密な厚膜を形成させることが可能であることが既に明らかとなっている。軟磁性材料は、結晶粒をナノオーダーまで微細化していくと、保磁力が結晶サイズに比例して減少することがよく知られている。本研究は、超音速フリージェット PVD によりナノ結晶 Fe 基軟磁性膜を成膜し、成膜条件が及ぼす磁気特性への影響を評価検討することを目的とする。

実験方法

超音速フリージェット PVD (Supersonic Free-Jet PVD: SFJ-PVD)

SFJ-PVD 装置の概略図を Fig.1 に示す。本装置は、ナノ粒子生成室 (Fig.1 下のチャンバ) と膜形成室 (Fig.1 上のチャンバ)、及び真空排気系で構成されている。ナノ粒子生成室と膜形成室は搬送管により連結されており、搬送管の先端には超音速ノズルが取り付けられている。真空排気系により両チャンバを減圧し、ナノ粒子生成室に不活性ガス（本研究では He を使用）を導入すると両チャンバ間の差圧により生成室側から膜形成室側へのガス流が発生する。不活性ガス雰囲気としたナノ粒子生成室で、膜材料を加熱蒸発させ蒸発した材料原子が不活性ガス原子との衝突により冷却・凝集しナノ粒子となる。生成させたナノ粒子は、ガス流により搬送管を通り膜形成室に搬送、超音速ノズルによりガス流はマッハ 4.2 の超音速ガス流に加速され、ガス流と共に加速させたナノ粒子を基板上に堆積、膜を形成させる。

実験条件

基板には、 $\phi 5 \times 1.0(\text{mm})$ の A1050 アルミニウムを用い、膜原料には純鉄 (4N) を使用した。膜原料の加熱源にはアーク加熱を用い電力 0.6kW、基板は無加熱とし、超音速ノズルの形状差異による膜特性への影響を検討した。成膜した Fe 膜は、SEM, TEM, XRD, ビッカース硬さ試験, VSM により評価を行った。

実験結果

膜断面の SEM 写真を Fig.2 に示す。Fig.2 により膜中及び基板界面にき裂などの欠陥は観察されず、緻密な Fe 膜が形成されていることが確認された。また、TEM 観察および X 線回折結果から、Fe 膜の結晶粒径が $\sim 20\text{nm}$ 程度の等軸 α 相で構成されていること、配向性の無い多結晶膜であることが確認された。以上の結果は、本研究で検討した全条件において同じ結果であった。保磁力及びビッカース硬さは、成膜に用いるノズルの形状により異なり、 H_c が $32.6\text{A/m} \sim 132\text{A/m}$, H_v が $937 \sim 1190$ であった。

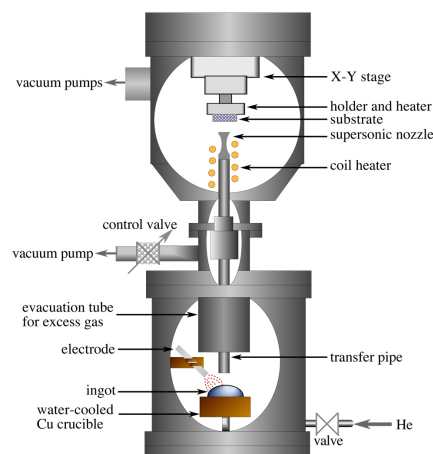


Fig.1 Schematic diagram of SFJ-PVD apparatus.

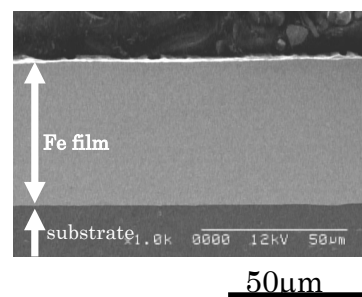


Fig.2 Cross-sectional SEM image of Fe film on A1050 substrate.

PLD 法により作製した Pr-Fe-B 系等方性磁石膜の磁気特性と膜構造

大島 修一* 柳井 武志 中野 正基 福永 博俊 (長崎大学)

Magnetic properties and structure of isotropic Pr-Fe-B film magnets prepared by PLD method

Oshima Shuichi*, Takeshi Yanai, Masaki Nakano, Hirotooshi Fukunaga (Nagasaki University)

はじめに

モータ等の電子機器の小型化に伴い、内部に用いられる永久磁石の薄手化、およびその磁気特性の向上が期待されている。すでに我々は、数 10 μm 厚の等方性 Nd-Fe-B 系ナノコンポジット系磁石膜を作製し、1.0 T 程度の比較的大きな残留磁化を実現した⁽¹⁾ものの、現状で 300 kA/m 程度の保磁力を増加させれば、磁気特性の更なる向上が期待される。本研究では、室温の飽和磁化値(1.56 T)が Nd₂Fe₁₄B 相の値(1.61 T)に比べ劣るものの、Nd₂Fe₁₄B 硬磁性相より高い結晶磁気異方性定数を有する Pr₂Fe₁₄B 硬磁性相に着目し、等方性 Pr-Fe-B 系厚膜磁石を作製し、その磁気特性ならびに膜構造について評価・検討した結果を報告する。

実験方法

成膜法として PLD (Pulsed Laser Deposition)法を用いた。約 6.5 rpm で回転させた Pr_xFe₁₄B (x=2.0~2.4)合金ターゲットに、波長 355 nm の Nd:YAG レーザを照射し、厚膜磁石を成膜した。具体的には、ターゲット-Ta 基板間距離を 10 mm とし、レーザーパワー 2 W、成膜時間 60 min 一定の条件下において、10 μm 厚以上の試料を作製した。成膜直後は非晶質であるため、熱処理時間 1.8 s 程度の極短時間熱処理を施した後、印加磁界 7 T のパルス着磁を行い、最大印加磁界 2.5 T のもと VSM で磁気特性を評価した。組成は SEM-EDX で Pr と Fe の含有量を測定した。膜断面の観察には TEM を用いた。

実験結果

Fig.1 に作製した試料内の Pr 含有量ならびに磁気特性の関係を示す。Pr 含有量減少に伴い、残留磁化値は低下し、Pr_{2.0}Fe₁₄B ターゲットを用いた試料では、希土類含有量が 9 at.%程度で保磁力は約 350 kA/m の値を示す。その一方で、Pr_{2.2}Fe₁₄B, Pr_{2.4}Fe₁₄B ターゲットを用いた試料の残留磁化値は 1.0 T 程度の比較的高い値を示すと共に、400 kA/m 以上の保磁力が得られる。Fig. 2 に示すように、Pr_{2.2}Fe₁₄B ターゲットより作製し、1.0 T 程度の残留磁化ならびに 400 kA/m を超える保磁力を両立した Pr-Fe-B 系試料 (Pr 含有量: 11.8 at.%)と既報の Nd-Fe-B 系ナノコンポジット磁石膜⁽¹⁾のリコイル特性を比べたところ、より優れた特性を示すことが確認された。本学会発表では TEM による微細構造観察の結果も含めて議論する予定である。

参考文献

- (1) 本村浩介ら：電気学会マグネティクス研究会試料, MAG-12-072(2012)

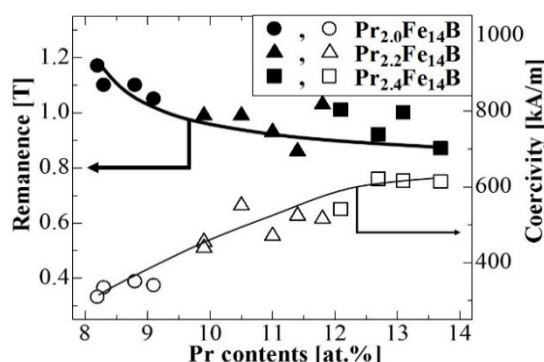


Fig.1 Magnetic properties of Pr-Fe-B samples

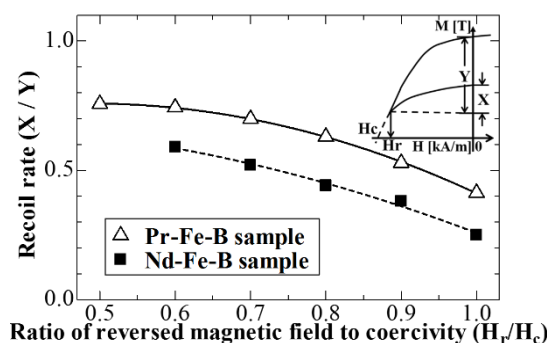


Fig.2 Recoil rates of Pr-Fe-B and Nd-Fe-B samples

階層分析法を用いた RF スパッタリング FePt 磁石膜の 成膜条件パラメータと膜品質の属人的相関関係の抽出

廣瀬伸吾、江塚幸敏
(産総研)

Extraction of Thinking Process in Gross Relationship Between Deposition Conditions and Film Quality
of FePt Magnet Film by RF Sputtering Using Analytic Hierarchy Process

Shingo HIROSE, Yukitoshi EZUKA
(AIST)

はじめに

近年、熟練技能者の高齢化や若年層の製造業離れなど、複合的な要因が重なり、熟練技能者の経験やノウハウを若年層に維持、伝承していくことが困難な状況になりつつある。本報告では、RF スパッタリングを用いた場合の磁石膜の高品質化に関わる影響項目と成膜条件パラメータとの相互の関係を分析して、階層分析法 (Analytic Hierarchy Process: AHP) ¹⁾を用いることで数値化・定量化することで、熟練作業者の経験や考え方の維持および継承に利用できることを紹介する。

実験方法、結果および考察

成膜の最適化やトラブル対策時の熟練者の思考プロセスは、経験や知識に基づいて主観的に判断されており、属人的なものであって形式知化されにくい。ここでは、一層目を高品質磁石膜作成を目的として、二層目を品質に関わる影響因子 (評価基準) として、「膜厚」、「組成」、「膜構造」、「欠陥」として、三層目として、成膜パラメータ (代替案) を「チャンバー内圧力」、「RF 出力」、「基板温度」、「ターゲット・基板間距離」、「バフ層」、「ポスト熱処理」として三層の AHP 階層構造を作成した (図 1)。

AHP 分析では、あらかじめ用意した重みベクトルを用いて各項目ごとに、どちらがどれくらい重要かを一対比較して行列 (マトリクス) を構成する。二層と三層目で得られた一対比較マトリクスの固有ベクトルをスーパーマトリクス法によって求めることで AHP 分析による影響度が求まる。

図 2 に示したのは、FePt 膜 RF スパッタリングにおいて 20 年の経験を有するエンジニアの結果である。この結果から、磁石膜の高品質化のためには、条件パラメータとして「チャンバー内圧力」を第一優先で調整することがわかった。膜品質に満足できない場合は次いで「RF パワー」を調整し、「基板温度」を三番目に変更することが明らかとなった。この判断は、過去に経験的に得られたに実験結果に基づいており、思考プロセスを形式化できたことがわかった。なお、講演では、別の対象者への適用との比較検証を含めて考察を行う。

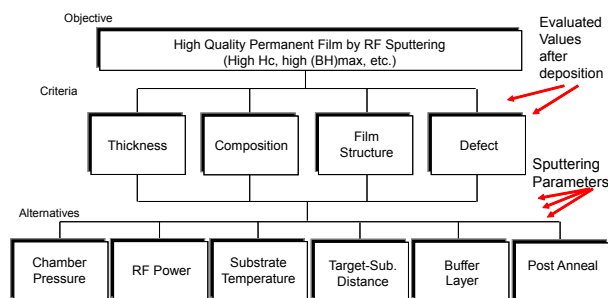


図 1 高 Hc・高 BHmax を目的とする FePt 膜の RF スパッタリング成膜条件と品質を決定する影響因子との因果関係を示した AHP 階層構造モデル

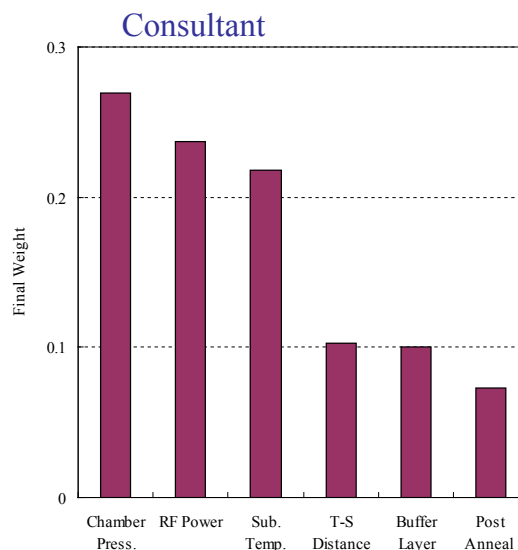


図 2 キャリアを有するエンジニアの AHP 分析結果

FTS 法における薄膜初期形成時の in-situ 応力観察

林原久憲、中込将成、高村陽太、中川茂樹
(東京工業大学 理工学研究科 電子物理工学専攻)

In-situ stress observation at the initial stage of film growth in FTS method
Hisanori Hayashibara, Masanari Nakagome, Yota Takamura, and Shigeki Nakagawa
(Dept. of Physical Electronics, Tokyo Institute of Technology)

はじめに

対向ターゲット式スパッタ(FTS)法ではそのターゲットと基板の位置関係からスパッタ粒子は基板に対し斜め方向から入射する。そのため、スパッタ粒子はターゲットの向かい合う方向(対向方向, Facing direction)とそれに膜面内で直交する方向(直交方向, Orthogonal direction)に異方的な運動量を持ち、これにより膜中には異方的な応力が形成される場合がある。この異方的な応力を積極的に利用すれば、多機能な磁性薄膜の形成が期待できる^{1,2)}。我々は FTS 装置に片持ち梁法を用いた応力の in-situ 測定システムを導入し、この異方的な応力の形成過程の観測を行ってきた。今回、従来に比べ厚さが約 1/7 の 30 μm の薄いガラス基板を用いることで測定感度を 100 倍以上向上させ、Ti や FeCo 薄膜などの膜堆積初期段階の応力形成過程を評価した。

実験方法

Fig. 1 に FTS 装置に対応した応力の in-situ 測定システムを示す。膜の内部応力によるガラス基板のたわみ量をレーザー変位計を用いた片持ち梁法で in-situ 観測した。この際、対向方向と直交方向の 2 方向にそれぞれ短冊状のガラス基板を配置し、各方向の基板のたわみ量の変化を調べた。

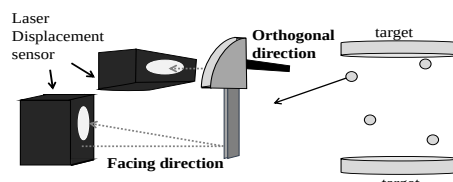


Fig. 1 In-situ stress observation system

実験結果

Fig. 2 にガラス基板上に Ti を直接成膜した場合の膜厚に対するたわみ量の変化を示す。曲線の傾きは膜厚増加に伴い膜内部に新たに形成されていく応力を表しており、正の傾きでは引張応力、負の傾きでは圧縮応力が優位に形成されていることを示す。見込み膜厚が 1.5 nm まで (領域 1) は引張応力が形成され、その後一定の圧縮応力 (領域 2) が形成された。

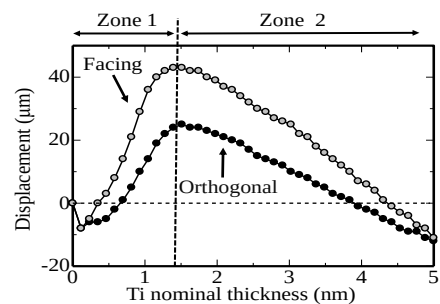


Fig. 2 Displacement as a function of film thickness for Ti

領域 1 では Ti 粒子がガラス基板上に島状に成長し、島間のファンデルワールス力により実効的な引張応力が働いたと考えられる。対向方向と直交方向で引張応力の大きさが異なることから、膜堆積初期時の島の形状が正円ではなく直交方向に長軸を持つ楕円状になっている可能性が高い。領域 2 では層状成長が支配的となり、peening 効果により圧縮応力が形成されたと考えられる。この傾向は Ru 膜でも観測された。

一方、FeCo 膜の場合 (Fig. 3) は引張応力が形成された後 4 nm 付近で特異なたわみ量の変化が観測された。この変化は成膜レートに依らず同程度の膜厚で現れた。当日はこの現象について詳細に議論したい。

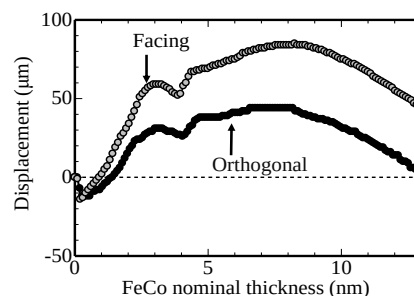


Fig. 3 Displacement as a function of film thickness for FeCo

参考文献

- 1) 中川茂樹, 日本磁気学会誌「まぐね」 **8**, 107 (2013).
- 2) A. Hashimoto, K. Hirata, T. Matsuu, S. Saito, and S. Nakagawa, IEEE Trans. Magn. **44**, 3899 (2008).

FeCo ナノ粒子と FePt 電析膜の複合薄膜作製に関する検討

林禎彰, 横井甫, 栢修一郎, 藏裕彰*, 柳井武志**, 小川智之*, 石山和志, 中野正基**, 福永博俊**
(東北大学電気通信研究所, *東北大学大学院工学研究科, **長崎大学)

Study on fabrication of composite film composed of FeCo nanoparticles and FePt electroplated film

Y. Hayashi, H. Yokoi, S. Hashi, H. Kura*, T. Yanai**, T. Ogawa*, K. Ishiyama, M. Nakano**, H. Fukunaga**
(RIEC, Tohoku Univ., *Eng., Tohoku Univ., **Nagasaki Univ.)

はじめに

近年, 磁気記録応用やバイオ応用などへの期待から様々な磁性ナノ粒子の合成例や合成技術が報告されている. これらの磁性ナノ粒子を複合的に積み重ね, 粒子間に生じる微細な空隙を他の磁性物質で充填することで, ナノコンポジット磁石実現の可能性があることから, 我々は電気化学的手法による磁性ナノ粒子を用いた複合薄膜作製に関する検討を行っている. 既に, ランダムな構造ではあるが酸化物磁性ナノ粒子を用いた複合薄膜の作製を報告した. 優れた磁気特性を発現するためには金属磁性ナノ粒子を用いることが望まれ, おおよそ数 10 nm 以下であると報告される交換結合長内に金属磁性ナノ粒子と他の磁性物質が存在する非常に微細な組織が必要である. そこで本研究では, 金属磁性ナノ粒子を用いたナノコンポジット磁石膜作製への応用を目的とし, FeCo ナノ粒子(平均粒径: 15 nm)を用いた電気泳動粒子堆積(EPD)膜に対する FePt 電析による複合化に関する検討を行った.

実験方法

複合化に用いる FeCo ナノ粒子は, $\text{Fe}(\text{CO})_5$ および $\text{Co}(\text{CO})_8$ の混合前駆体を, 界面活性剤を含む溶媒中で熱分解することにより合成した. 合成した FeCo ナノ粒子をエタノール 30 mL に分散させ, EPD 用のナノ粒子分散液(懸濁液)とした. 合成後の FeCo ナノ粒子は界面活性剤により被覆されているが, EPD 法によりナノ粒子を堆積させるためには, FeCo ナノ粒子の表面電位を制御する必要があるため, カチオン性界面活性剤であるポリエチレンイミンを懸濁液に加えた. 基板にはスライドガラス上に成膜したモリブデン(Mo)膜を用い, FeCo ナノ粒子を EPD 法により堆積させた. その後, FeCo ナノ粒子 EPD 膜に対してナノ粒子表面の界面活性剤および酸化層を取り除くため, 真空中熱処理(150 °C) および H_2 ガス雰囲気中熱処理(280 °C)を施した. その後, FeCo ナノ粒子 EPD 膜に対して, FePt の電析を行った. 電析後, 複合薄膜に対して FePt 膜の規則化のため, 真空中熱処理(750 °C)を施した. 膜の磁気特性測定は VSM, 表面観察は SEM, 元素分析は波長分散型 X 線分析(WDX)により行った.

実験結果

Fig. 1 に真空中熱処理後の FePt 電析単体膜および 2 種類の複合薄膜の磁化曲線(第 1-2 象限)を示す. 膜の体積を正確に評価できておらず磁化値は[emu]のままで示しているが, FePt の電析量はクーロンメータによる電荷量制御により, 高い再現性を確認していることから, 磁化値の差は FeCo ナノ粒子の複合量に対応していると考えられる. FeCo ナノ粒子の複合量の増加(EPD 時の印加電圧により制御)に伴い, 残留磁化付近での磁化値の減少が激しくなり, 複合薄膜の磁化曲線の振舞いは FePt 単体膜とは異なり相分離を生じていることがわかる. また FeCo ナノ粒子の複合量が多くなると, 保磁力も 14 kOe から 11.7 kOe まで減少している. 膜中の FeCo ナノ粒子同士の凝集や, 熱処理時の FePt 膜への拡散の影響などについて検討する必要があるため, 今後は膜中のナノ粒子の状態など, TEM などを用いて微細構造と磁気特性との関係を明らかにしていく予定である.

謝辞 本研究の一部は JSPS 特別研究員奨励費 26-7528 の助成を受けたものである.

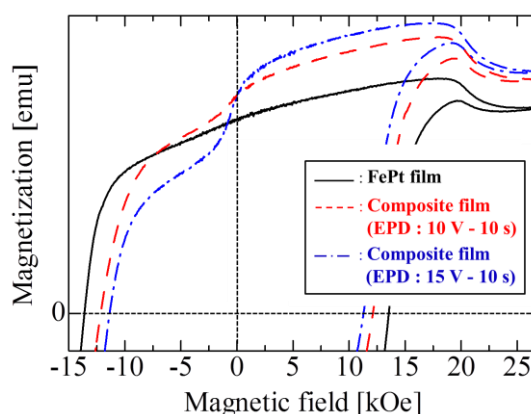


Fig. 1 M-H curves (first and second quadrant) of annealed FePt electroplated film and annealed composite films.

ハイパーサーミヤ用高周波磁界発生器における ブースターコイルによる磁界の増強

山田外史, 池畑芳雄, 林 亮平, 上野敏幸, 柿川真紀子
(金沢大学)

Enhancement of High-Frequency Magnetic Fields
By Using Booster Coils Added to Applicator for Hyperthermia Therapy

S.Yamada, Y.Ikehata, R.Hayashi, T.Ueno, M.Kakikawa,
(Kanazawa University)

はじめに

ワイヤレス給電によるダブルパンケーキコイルの発生磁界の増加, また主な損失のコイル抵抗損失を低減させるため, リッツ線の導線数 ($60\mu\text{m}^{\phi}$, 6000本) の増加が必要であるが製作上の困難である. 本報では, コイルを並列とし, 起磁力を増加させ発生磁界の増強を行った. さらに, それぞれのコイルにコンデンサを付けたLCブースター回路としてワイヤレス給電回路とすることにより, コイルの自己インダクタンス等のバラつきによる並列コイル間の電流の不均一を検討した.

ブースター回路付アップリケータ

Fig. 1 は, 平面コイルにて構成され人のがん治療用の誘導加熱形ハイパーサーミアの励磁コイルシステムである. 体をサンドイッチするように上下コイルが配置され, また上下コイルを直列にすることによるインダクタンスの増加, すなわち励磁電圧の増加を抑制するため, 磁電磁誘導形ワイヤレス給電により一方の電流を流している^{1), 2)}.

このシステムの磁界発生を増加させるため, Fig. 2 に示すように上下コイルを2並列回路(2×2 コイル)とした. 並列に巻いたコイルは, LCブースター回路として電磁誘導により給電する. この等価回路は, Fig. 3 となる. 上コイルの一方のみに直接電源に接続し, 他の3コイルには共振コイルが直列接続される. 抵抗はコイル損失等を含めた等価直列抵抗である. 各コイル, コンデンサの値は基本的には同じ値とする. 上下の並列コイル間の結合係数 $k=0.95$, また上下コイル間の結合係数 $k=0.065$, コイルのインダクタンス値 $L=6.0\mu\text{H}$, コンデンサ値は $0.29\mu\text{F}$ である.

シミュレーション結果とまとめ

Fig. 3 に示す等価回路にてシミュレーションした結果を Fig. 4 に示す. パラメータの値は, 計測によって得られたものを使用した. 上下のそれぞれのコイルに流れる電流はほぼ同位相の同振幅であり, かつ利用する共振周波数(f_1)近傍では, 上下コイルにおいても同じとなる. また, シミュレーションの結果は, コイルの自己インダクタンス, コンデンサの値の変動による電流の不均一性は大きく抑制できることが明らかになった.

参考文献

- 1) S.Yamada, et al., *J. Magn. Soc. Jpn.*, **37**, 282 (2013).
- 2) S.Yamada, et al., *J. Magn. Soc. Jpn.*, **38**, 37 (2014).

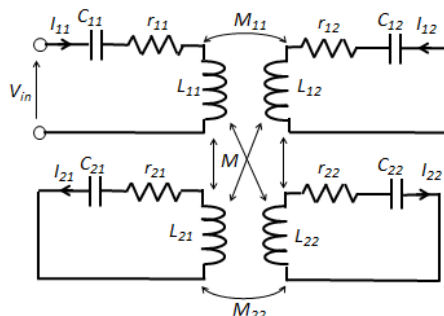


Fig. 3 Equivalent circuit of applicator.

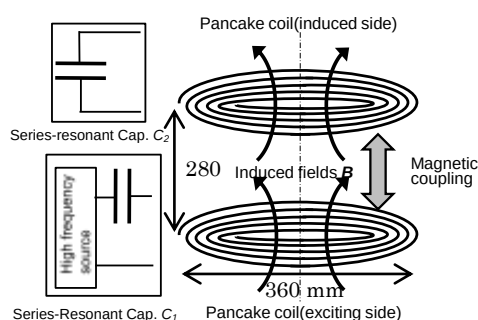


Fig. 1 Applicator with wireless transmission system.

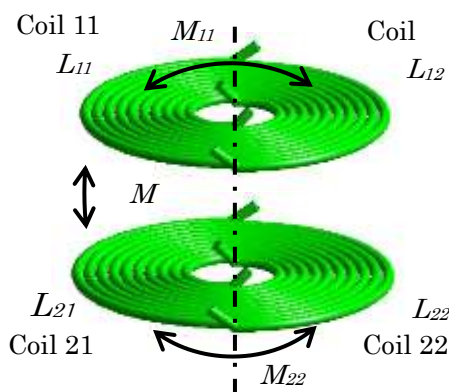


Fig. 2 Double pancake coils with parallel coils.

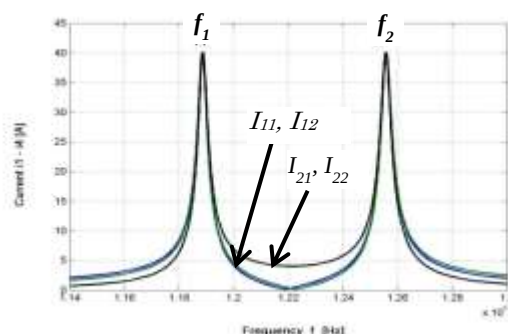


Fig. 4 Frequency characteristics of currents.

磁気機能性流体を用いた円管内面マイクロ加工のための磁界解析

塚田悠太, 池田慎治, 平松信義, 櫻井 豊, 西田 均
(富山高等専門学校)

Magnetic Field Analysis for Micro Processing for Internal Horizontal Circular Pipe Utilizing Magnetic Functional Fluid

Y. Tsukada, S. Ikeda, N. Hiramatsu, Y. Sakurai, H. Nishida
(Toyama National College of Technology)

はじめに

各種産業用の金属円管の内面精密加工は、その強度などの材料特性が優れているほど被削性が低下する。そのため、これを高精度かつ容易に加工する方法が求められており、磁気混合流体（MCF）を用いた加工法が提案されている。MCFは粒径の異なる磁性微粒子を分散させた粘性流体であり、磁界分布を制御することにより、砥粒と混合した長くフレキシブルな凝集体（磁気クラスタ）を形成することができる。本研究では、MCFを用いた研削法の工具設計のための磁界解析を行った。

数値解析の方法と結果

これまでに実験的にいくつかの研削方法が検討されている中から、Fig. 1に示す形状の工具を数値解析の対象とした。工具はリング形状の永久磁石を一定間隔で連結したものであり、磁石は軸方向に着磁されており、着磁方向は、隣接する磁石毎に反対方向となっている。砥粒は非磁性体であり、磁気クラスタによってトラップされる。円管内面で一定以上の磁界を発生させないと磁気クラスタを形成できない。一方、単純に磁石を多くして位置を近づけると、隣接クラスタ間の相互作用が期待できる半面、磁気クラスタの体積減少などにより研削効率は向上しないことが実験的に明らかとなっている。

以上より、解析手法は軸対象2次元静磁界解析とした。磁石形状とその配置をパラメータとして広範囲に解析し、実験結果との比較を行うことと、将来的な工具設計の最適化に資するデータを得ることを目的とした。2次元解析のため1つの計算条件当たりの計算量は比較的少ないが、これを多数の条件において解析するため、解析処理を連続化するシステムを構築した。

結果の一例をFig. 2に示す。管内径は

14.9mmである。磁石間隔を13mm以上とすると磁石間には磁気クラスタの保持が難しくなる条件である。磁石間の最低磁束密度は約180mTとなっており、磁石間でこれより大きな磁束密度を確保しながら、その周囲に大きな磁束密度勾配を得よう設計すればよいことがわかる。

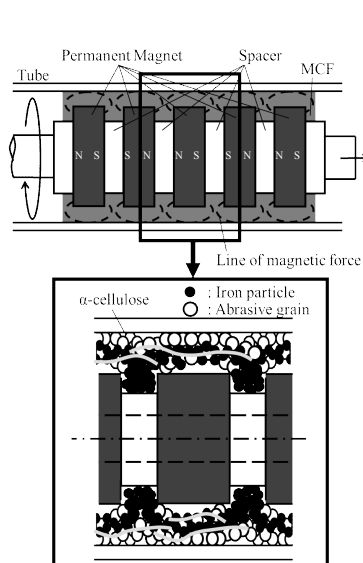


Fig. 1 Schematic diagram

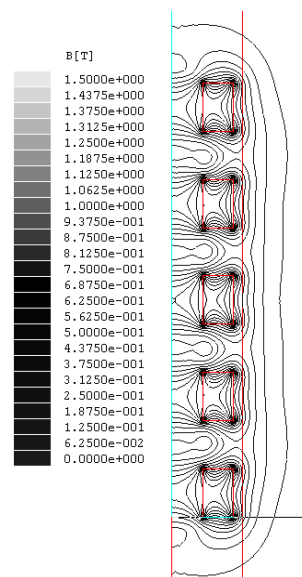


Fig. 2 Distribution of flux density

参考文献

- 1) H. Nishida, et. al., "Influence of Magnetic Field Distribution on Micro Processing for Internal Horizontal Circular Pipe Utilizing Magnetic Functional Fluid", Journal of JSAEM, Vol 22, (2014 in press)

ハルバッハ配列磁石の磁束密度向上へ向けたヨーク構造の最適化

磯上 慎二¹, 松本 拓樹²
(福島高専¹一般教科, ²電気工学科)

Optimum yoke structure for enhancement of magnetic flux density in Halbach-type permanent magnets

Shinji Isogami, Hiroki Matsumoto

(Fukushima National College of Technology, ¹General Education, ²Electric Engineering)

1. はじめに

現行アクチュエーターデバイスの磁気浮上駆動機構の性能は、そこに搭載される永久磁石がつくる磁束密度分布や強度などによって決められている。今後デバイスサイズの縮小に伴い永久磁石の小型化が進むと、従来の駆動性能が得られない可能性がある。これは永久磁石から発生する磁束密度が低下するためである。永久磁石体積の縮小による磁束密度の低下を抑制するため、我々はこれまで、磁石を Halbach 配列化することで漏れ磁束を集中し磁束密度の向上を目指してきた。しかし、更なる向上のためにはバックヨーク構造の最適化が必須である。Halbach 配列磁石は Plain 型磁石とは異なる複雑な磁束パターンを有するため、バックヨークには特異的な構造が求められると推測される。よって本研究では、Halbach 配列磁石に対して最適なバックヨーク構造の設計を目的とした。

2. 検証方法

磁束密度の検証には、磁場解析ソフト (JMAG) を用いて算出を行った。Halbach 配列磁石材料には、Wellmax-18ME ネオジウムボンド磁石 (住友金属鉱山製) を仮定した。Halbach 配列磁石は図 1 に示すように、同極を向かい合わせた両側 2 枚の永久磁石 ($4 \times 14 \times 4 \text{ cm}^3$) で中央の永久磁石 ($6 \times 14 \times 4 \text{ cm}^3$) を挟み込む構造とした。この Halbach 配列磁石を空隙 $d = 6 \text{ mm}$ だけ離し、上下に重ねて配置した。代表的なバックヨーク構造はコの字型を基準とし、①フロントヨーク設置、②断片型バックヨークの 2 種類の場合について、JMAG 解析を行い、空隙中央の磁束密度の Z 成分を比較した。ここで空隙中央とは、磁石表面から 3 mm の高さで定義している。

3. 検証結果

図 2 は種々の永久磁石と種々のバックヨーク構造による中央磁束密度 (B_z) の増加率を示す。両側 Plain 磁石に比べて、両側 Halbach 磁石の場合は、40 % の増加となった。これは Halbach 配列により、漏れ磁束が空隙中央に集中した効果であることが JMAG による解析で別途明らかとなった。次にフロントヨークを設置したところ、さらに 7.3 % の増加が得られた。これは両側 Halbach 磁石から外部への漏れ磁束が、対をなす磁石へ効率よく戻った結果であることが判った。更なる増加を目的としてバックヨークを断片化したところ、2.2 % の増加を見出した。これは Halbach 磁石内部の特異的な磁束構造に起因すると考えられる。本講演会ではこの主要な原理を具体的に議論し、磁束密度向上へ向けた種々の磁石に対する汎用的なバックヨークの設計指針を示す予定である。

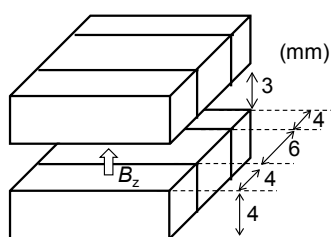


図 1 解析に用いた Halbach 配列磁石モデル

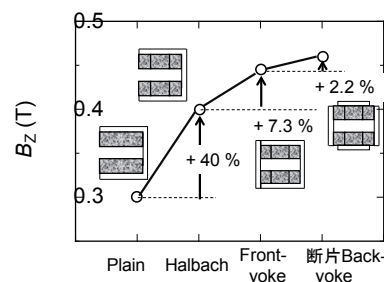


図 2 種々の永久磁石とバックヨーク構造の最適化による中央磁束密度の Z 成分 (B_z) の増加率

参考文献

- 1) K. Halbach, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, 246, 77 (1986).
- 2) Z. O. Zhu, and D. Howe, *Electric Power Applications*, 148, 299 (2001).

ヒステリシスを考慮可能な磁気回路モデルを用いた 種々の磁性材料の鉄損算定

田中秀明, 中村健二, 一ノ倉理
(東北大学)

Iron loss Calculation of Soft Ferromagnetic Materials using Magnetic Circuit Model
considering Magnetic Hysteresis

H. Tanaka, K. Nakamura, O. Ichinokura
(Tohoku University)

はじめに

トランスやモータなどの電気機器の高効率化には、磁気ヒステリシスも含めた鉄損の定量的な算定が必要不可欠である。マイクロマグネティクスは磁壁や磁区の挙動を微視的に解析する手法であり、ヒステリシスや磁気飽和などの複雑な磁気現象を表現できるが、一般にモデルが大規模になるため、電気機器の解析に適用することは容易では無い。これに対し、いくつかの仮定を設けることで、モデルを簡略化する手法が提案されている⁽¹⁾。これを受けて、先に筆者らは、簡略化されたマイクロマグネティクスモデルを磁気回路法に取り入れることで、磁気ヒステリシスを簡便かつ精度良く算定する手法を提案した⁽²⁾。

本稿では、提案手法の適用拡大を目的とし、2種類の無方向性ケイ素鋼板、並びにアモルファス金属のヒステリシスループの算定を行ったので報告する。

ヒステリシスを考慮可能な磁気回路モデル

図1に、巻数 N の巻線が施され、交流電源に接続された鉄心と、これに対応する磁気回路モデルを示す。本モデルは、同図に示すように、直流ヒステリシスをLLG方程式で計算し、交流損失を磁気インダクタンスと従属電源で計算する。LLG方程式のパラメータは、実測した直流ヒステリシスを近似することで求められる。また、交流損失を表す素子のパラメータである γ_1 および γ_2 は、材料の高周波鉄損曲線を近似することで求まる。

提案手法の妥当性を確認するため、板厚0.35 mmの一般的な無方向性ケイ素鋼板(35A440)と板厚0.20 mmの低鉄損の無方向性ケイ素鋼板(20H1500), およびアモルファス金属のヒステリシスループを実測し、計算結果と比較を行った。図2に、ヒステリシスループの実測値と計算値を示す。これらの図を見ると、提案手法によって種々の磁性材料のヒステリシスループを精度良く算定できることが了解される。

参考文献

- 1) 古屋, 藤崎, 上原, 清水, 大島, 村上, 高橋, 電学研資 SA-13-6, RM-13-6 (2013)
- 2) 田中, 中村, 一ノ倉, 電学論 A, Vol. 134, pp.243-249 (2014)

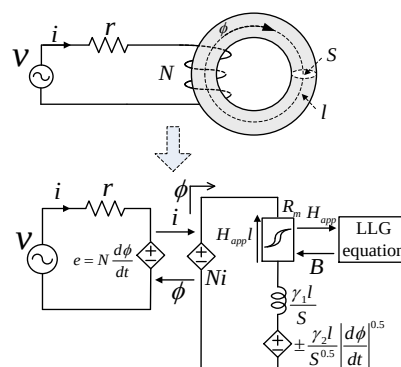
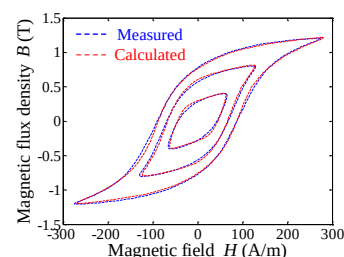
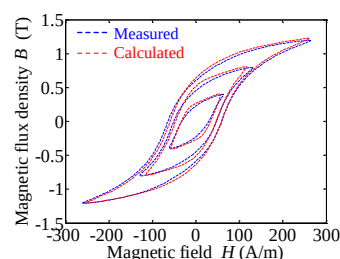


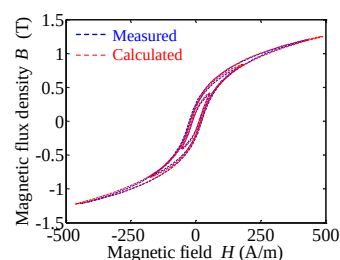
Fig. 1 Proposed magnetic circuit model.



(a) 35A440 ($f = 200$ Hz)



(b) 20H1500 ($f = 200$ Hz)



(c) Amorphous ($f = 2$ kHz)

Fig. 2 Measured and calculated hysteresis loops.

高効率化と出力電圧安定化を両立した非接触給電装置に関する検討

太田佑貴, 有賀暢幸, *宮原敏, 佐藤文博, *松木英敏
(東北大学大学院工学研究科, *東北大学大学院医工学研究科)

Compatibility with High Efficiency and Output Voltage Stabilization on Wireless Power Transfer

Y. Ota, N. Aruga, *S. Miyahara, F. Sato, *H. Matsuki
(Grad. Sch. of Eng., Tohoku Univ., *Grad. Sch. of Biomed. Eng., Tohoku Univ.)

はじめに

電磁誘導を用いた非接触給電技術は、携帯機器や電気自動車、医療・ヘルスケア機器等、幅広い機器への応用が期待されている¹⁾。本技術が対象とする機器の多くは定電圧電源を要求するため、充電状態の変化等により負荷変動が生じても出力電圧が安定していることが求められる。これまでの研究²⁾においては、送電コイルを定電流駆動とした場合の出力電圧安定化手法について考察を行ってきたが、対象機器によっては、回路規模等の観点から送電側も一般的な定電圧駆動であることが求められる場合がある。そこで今回は、LCブースタ方式³⁾を活用し、高効率な非接触給電と出力電圧の安定化を両立する方法について検討を行った。

検討内容

給電中の負荷状態はバッテリーの充電状態や機器の動作状況によって数 Ω ～ ∞ まで大きく変化するため、効率と負荷端電圧の両方について負荷特性を検証する必要がある。本検討では、携帯機器やヘルスケア機器への給電を想定したコイル（外径 40 mm, 20 turn）を試作し、そのコイルパラメータを用いて負荷変動による負荷端電圧と効率の変化を直列共振、並列共振、LCブースタの各方式で回路シミュレータにより確認した。

検討結果

負荷変動と出力電圧の関係を Fig. 1, 負荷変動と効率の関係を Fig. 2 に示す。Fig. 1 より、直列共振に比べて、並列共振形や LC ブースタ型は出力電圧の変動範囲が小さくなることからわかる。一方 Fig. 2 より、直列共振と LC ブースタ方式が重負荷領域で効率最大であり、並列共振型は軽負荷でピークを迎えることがわかる。一般に非接触給電装置を設計する際には、電力消費が大きい重負荷時に効率が高くなるよう調整されるため、効率の観点からは直列共振または LC ブースタ方式を選択したほうが有利であるといえる。以上より、直列共振同様の効率特性を持ちながら出力電圧変動が抑えられる、LC ブースタ方式の活用が有効であることが示された。引き続き他のマッチング方式の活用などについて考察を深めていく。

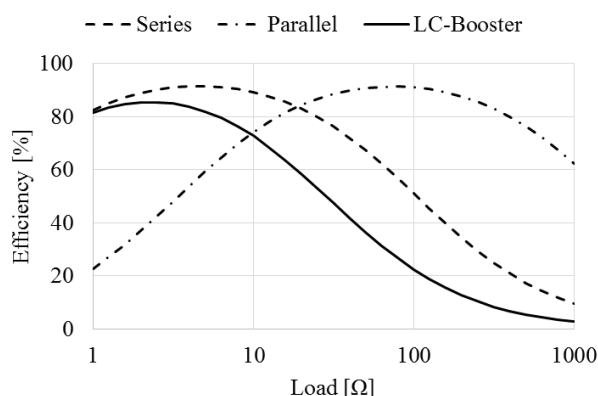


Fig. 1 Load - Efficiency Characteristics

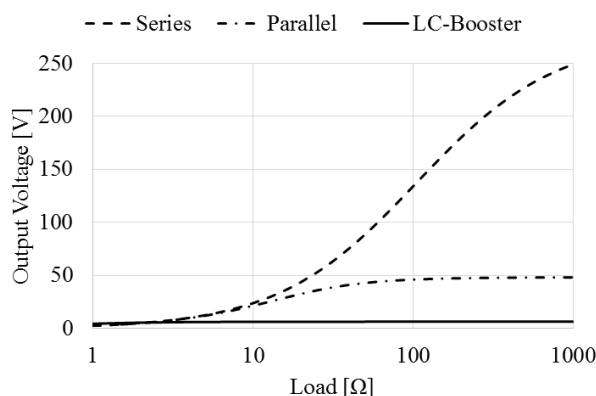


Fig. 2 Load - Output Voltage Characteristics

参考文献

- 1) 松木, 高橋: ワイヤレス給電技術が分かる本, pp.82-91, 131-140 (2011)
- 2) 太田, 田倉, 佐藤, 佐藤, 松木: 平成 24 年度電気関係学会東北支部連合大会講演論文集, 2G24(DVD) (2012)
- 3) Y. Ota, T. Takura, F. Sato, H. Matsuki, T. Sato, T. Nonaka: *IEEE Trans. Magn.*, **47**, pp.4235-4237 (2011)

EV 用走行中非接触給電システムにおける 電力給電時の効率改善に関する検討

有賀暢幸, 宮原敏, 佐藤文博, 松木英敏

(東北大学)

A study on efficiency improvement during power supply for Contactless Electric Vehicle Charge on Moving

N. Aruga, S. Miyahara, F. Sato, H. Matsuki

(Tohoku Univ.)

はじめに

現在, 環境負荷が小さい EV (電気自動車) に注目が集まっているが, 航続距離と充電時間の最適な関係を成立させることが重要な課題となっている. そこで, 我々は当初より走行中に非接触で車両に給電を行うことを提案し, スケールモデルにおける種々の検討を行ってきた¹⁾. しかし, 実際に走行中非接触給電を行う場合には, 負荷に合わせた整合回路の設計と, kW 級の電力を給電する必要がある, それに付随する問題を解決する必要がある. そこで本検討では, 整合回路として LC ブースタ方式²⁾を用い, 併せてシールド材として送受電コイル背面に磁性体を装着させた際の電力上昇に伴う効率変化に関する検討を行った.

検討方法

送電コイル (L_1), 受電側 LC ブースタコイル (L_2), 負荷整合を行うための受電側ピックアップコイル (L_3) を Fig. 1, Table. 1 の様に設計した. 送電コイルには走行方向に安定的に給電可能なレーン状長方形コイルを用い, LC ブースタコイルは普通乗用車に搭載可能な仕様を満たす外径 500 mm, 15 turns の円型スパイラルコイルとし, ピックアップコイルは外径 200 mm, 10 turns とした. 整合回路は, バッテリ及びモータの想定負荷として, 50 Ω で最大効率を得られるよう設計を行った. また, 磁性体には MnZn 系フェライトを用い, コイル間ギャップを 100 mm, 周波数を 100 kHz とし各入力電圧における効率の負荷特性を測定した.

実験結果

Fig. 2 に実験結果を示す. 出力電力が低い場合は計算結果とほぼ一致していることがわかるが, 出力電力が大きい状態では, 効率低下が著しい事がわかる. 更に最大効率を与える負荷 (最適負荷) が入力電圧を上昇させることにより重負荷へと遷移していることが分かる. これは, 電力増加に伴い伝送系のパラメータが変化したためであると考えられる. 今後は電力規模を大きくした際に生じる効率低下をより抑えるコイル設計・磁性体の配置方法について検討を行っていく.

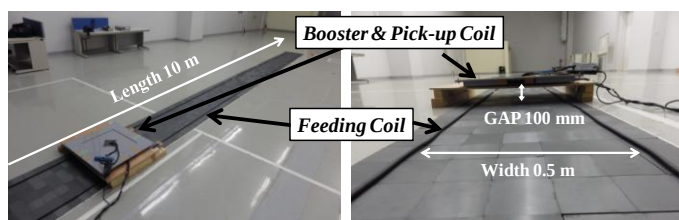


Fig. 1 Figure of Coil configuration

Table. 1 Coil Specifications at 100 kHz

	Feeding	Booster	Pick-up
Inductance L [μH]	33.1	176.5	25.4
Resistance r [Ω]	0.20	0.20	0.05
Coupling Factor k		0.07	0.3

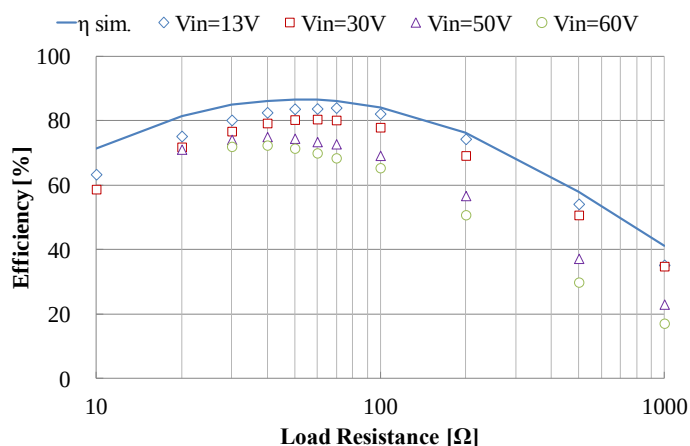


Fig. 2 Load characteristics of efficiency at each Input Voltage

参考文献

- 1) F. Sato, J. Morita, T. Takura, T. Sato, and H. Matsuki : *J. Magn. Soc. of Jpn.*, 36, 249-252 (2012)
- 2) T. Takura et al.: *J. Magn. Soc. of Jpn.*, 35, 132-135 (2011)

マルチ周波数バンド型電磁界共振式 WPT システムの提案

土井 達也
(足利工業大学工学部)

Proposal of electromagnetic resonant coupling type WPT using multi-frequency band

DOI Tatsuya
(College of Engineering, Ashikaga Institute of Technology)

はじめに

近年、比較的高い周波数のスイッチング電源を用いた電磁界共振式ワイヤレス給電 (WPT) が検討されている⁽¹⁾。スイッチング電源は電源高調波成分による漏洩磁界や放射磁界の対策が必要になる。電磁界共振式では、システムの共振周波数成分が支配的となって他の周波数成分は受電側負荷にほとんど供給されない。

本稿では、複数の周波数成分を利用した電磁界共振結合式 WPT を提案し、基礎検討を行なう。提案システムを示し、電源高調波成分を使ったワイヤレス給電への応用について述べる。

提案システム

本稿では、複数の周波数成分を同時給電可能な WPT システムの構築を目的とする。Fig.1 に提案 WPT システムの概念図を示す。1 次側電源からは高調波成分または多周波数成分をもつ交流電圧が供給される。Fig.1 のシステムは単一の共振周波数をもつ送受電デバイスを複数セットもち、送電及び受電デバイスは 1・2 次側でそれぞれ並列接続されている。各セットの送受電デバイスには、それぞれの共振周波数近傍の電流が流れやすくなる。

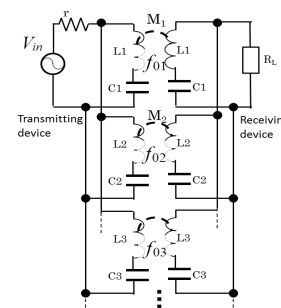


Fig. 1. Concept of resonant coupling type WPT with multi-frequencies.

提案法の応用

一般に、電磁界共振式では単一の共振周波数をもつ LC 共振コイルを送受電コイルに使用される。このため、電源高調波成分の電力は受電側に供給されにくく、効率を下げの一要因となっている。本稿では、電源高調波成分を使ったワイヤレス給電に提案システムを応用した例を示す。

本稿では、基本波成分と第 3 高調波成分を給電する 2 組の送受電デバイスをもつ WPT システムの例を示す。Fig.2 に、意図的に高調波成分を含むよう設計した 1 次側の電源電圧波形を示す。

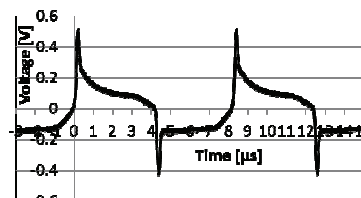


Fig. 2. Voltage waveform of primary power supply [2].

Table 1 に、基本波成分と第 3 高調波成分を給電する送受電デバイスの電圧波形の周波数分析結果をそれぞれ示す。Table 1 の結果から、共振周波数 120kHz の送受電デバイスでは第 3 高調波成分 360kHz も含まれるが、基本波成分 120kHz が大きく効率が高い。一方、共振周波数 360kHz の送受電デバイスでは基本波成分は皆無(ノイズレベル)であり、第 3 高調波成分が支配的で変換効率が高い。第 5 高調波成分 600kHz も受電側に給電されている。結果として、Table 1 は提案システムによって、周波数分割給電が可能であることを示す

Table 1. Measured voltages.

A set of transmitting and receiving coils with $f_0=120\text{kHz}$ [dBμVB]		
120kHz component	Primary	29.6
	Secondary	26.8
360kHz component	Primary	27.1
	Secondary	21.8
A set of transmitting and receiving coils with $f_0=360\text{kHz}$ [dBμVB]		
120kHz component	Primary	22.4
	Secondary	23.1
360kHz component	Primary	56.6
	Secondary	43.5
600kHz component	Primary	30.6
	Secondary	26.9

参考文献

- 1) 細谷達也：信学技法，WPT2013-16 (2013)
- 2) 松坂駿也：平成 25 年度足利工業大学卒業論文 (2014)

マルチデバイス方式ワイヤレス給電システムの伝送コイル形状の検討

古里洸一、野中崇、田倉哲也*、佐藤文博**、松木英敏**

(八戸工業高等専門学校、*東北工業大学、**東北大学)

A study on transmission coil in multi-device type wireless transmission system

K. Furusato, T. Nonaka, T. Takura*, F. Sato**, H. Matsuki**

(Hachinohe Nat. Coll. Tech., *Tohoku Inst. Tech., **Tohoku Univ.)

序論

近年、モバイル機器の普及が著しいものとなっている。そこでモバイル機器の充電に関する利便性を向上することが求められる。これらの問題を解決する技術のひとつにワイヤレス電力伝送技術がある。給電システムには給電ステーション上のどの場所にモバイル機器をおいても、電力伝送効率と機器の受電電圧が安定することが要求される。しかし、送電コイルと受電コイルの位置関係のずれが生じることによって、結合係数が変化するため、結果的に電力伝送効率や受電電圧の変動を招く。よって本研究では、送受電コイル間の結合係数の分布がコイルの位置関係によって変化しないための最適な1次側送電コイル形状を検討した。

コイルの作成と評価

送受電コイル間の結合係数の理論計算¹⁾を行い、送電コイルの形状の最適化を行った。送電側の複数巻円形ステーションコイルを複数の円形コイルの組み合わせとして近似して、過去に検討されたコイル²⁾の大きさ、巻数を変更せずに形状を改良した。最適化対象のモバイルコイルは半径 20 mm のものを使用し、送受電コイル間の距離は 6 mm とした。提案したコイルの外観を Fig. 1 に示す。Fig. 1 のコイルを用いて空心での結合係数分布の測定を行った。コイルの横ずれによる結合係数の変化量は改良前より小さくなり、結合係数の位置特性の改善がコイル形状の変更によって可能であるといえる。

効率の改善のためにフェライト挿入する場合を考慮し、電磁界シミュレータ Maxwell 3D を用いて、コイル中心軸が一致した状態での結合係数と受電コイルサイズとの関係を検証した。シミュレーション条件は前述のコイルを用い、受電コイル半径を 20 mm から 50 mm まで検証を行った。Fig. 2 にその結果を示す。グラフ内の k_a は空心での、 k_f はフェライトを使用した場合の結合係数をそれぞれ示している。フェライトによる変化率は空心に比べ 120 % 程度の一定の値で推移していたことから、空心での理論計算結果に 120 % 程度の比を乗じることでフェライトを設置した場合の特性についてもおおよそ得ることができる。

参考文献

- 1) 古里洸一、野中崇、田倉哲也、佐藤文博、佐藤忠邦、松木英敏: マルチデバイス方式ワイヤレス電力伝送の送電コイルの数値解析, 平成 25 年度電気関係学会東北支部大会講演論文集 (2013)
- 2) T. Futatsumori, T. Nonaka, T. Tetsuya, F. Sato, T. Sato, and H. Matsuki: Contactless Power Transmission System of Station-type Charger in Mobile Device, J. Magn. Soc. Jpn., 36, pp. 131~134 (2012).



Fig. 1. Proposed station coil in supply side.

(Left side : Primary coil. Right side : Secondary coils)

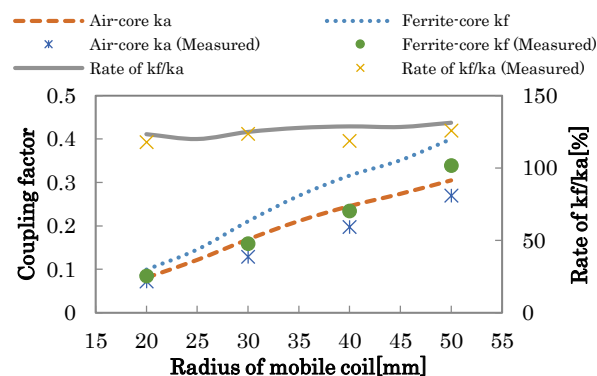


Fig. 2. Effect of coupling factor by ferrite.

極低磁場核磁気共鳴を想定した強磁性トンネル接合磁場センサによる微弱磁場検出

遠藤基¹、水上成美²、藤原耕輔¹、西川卓男³、大兼幹彦¹、永沼博¹、安藤康夫¹
(東北大¹、東北大 WPI²、コニカミノルタ³)

Weak field detection using MTJs magnetic sensor aimed at ultra-low-field nuclear magnetic resonance

M. Endo¹, S. Mizukami², K. Fujiwara¹, T. Nishikawa³, M. Oogane¹, H. Naganuma¹ and Y. Ando¹
(Tohoku Univ.¹, WPI-AIMR, Tohoku Univ.², Konica Minolta³)

はじめに

近年、極めて低い磁場下における核磁気共鳴(ULF-NMR)に注目が集まっている。その理由として、低磁場において低歪、高コントラストな磁気共鳴画像を得られることが挙げられる。現在、ULF-NMR には SQUID を応用した磁場センサがよく用いられているが、SQUID の動作は低温に限定されているため、これに代わる室温で動作する高感度磁場センサが求められる。100 μm 程度の静磁場中では、NMR のラーモア周波数は kHz 帯である。従って、我々は ULF-NMR を想定し、静磁場および周波数 kHz の微弱交流磁場をセンサに印加する測定系を構築し[1]、強磁性トンネル接合(MTJ)磁場センサの磁場検出能力を評価した。

実験方法

成膜は超高真空マグネトロンスパッタ法を用いて行った。膜構成は Si/SiO₂/Ta (5)/NiFe (70)/Ru (0.85)/CoFeB (3)/MgO (2.5)/CoFeB (3)/Ru (0.85)/CoFe (5)/IrMn (10)/Ta (5)/Ru (8) (膜厚:nm)とした。ゼロ磁場付近で直線的な応答を示す磁気抵抗曲線を得るため、自由層と固定層の磁化容易軸を直交化させた。さらに 1/f ノイズを低減するため、一万個の MTJ を直並列に接続した。また、直流二端子法により MTJ 磁場センサの磁気抵抗を測定した。MTJ 磁場センサの磁場検出能力評価にはスペクトラムアナライザを用い、ヘルムホルツコイルおよびワンターンコイルにより静磁場および微弱交流磁場を各々印加した。バイアス電流の印加には定電流源を用いた。

実験結果

Fig. 1 に MTJ 磁場センサへ 20 mA の電流を印加した際のゼロ磁場付近における磁気抵抗曲線を示す。ゼロ磁場付近の抵抗の変化から、MTJ 磁場センサの感度は 110%/mT であることが分かった。現在、最も高感度な MTJ 単素子の感度は 400 %/mT であり[2]、このセンサの感度はその 1/4 程度である。Fig. 2 に周波数 2.2 kHz の微弱磁場を印加した際の実出力電圧スペクトルを示す。ここでは MTJ の感度が最大となるように静磁場を印加している。交流磁場周波数における電圧のピーク値とノイズスペクトルの平均値から、この MTJ 磁場センサの磁場検出能力は 200 pT/Hz^{0.5} と見積もられた。この磁場の値は ULF-NMR において 1 cc の水の核磁気により距離数 cm の所に発生する微弱磁場の大きさである。

謝辞

本研究の一部は JST 研究成果展開事業「戦略的イノベーション創出推進プログラム(S-イノベ)」の支援により行われた。

参考文献

- 1) M. Endo *et al.*, The abstract of the 74th JSAP Autumn Meeting, 16p-P5-1 (2013).
- 2) D. Kato *et al.*, Appl. Phys. Express **6**, 103004 (2013).

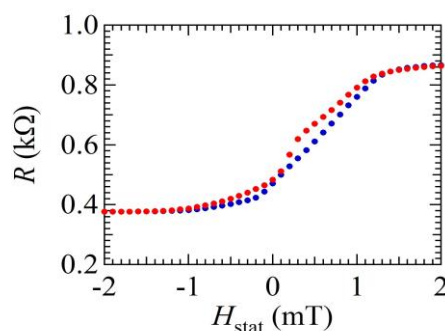


Fig. 1 Magnetoresistance curve of a MTJ sensor with bias current of 20 mA

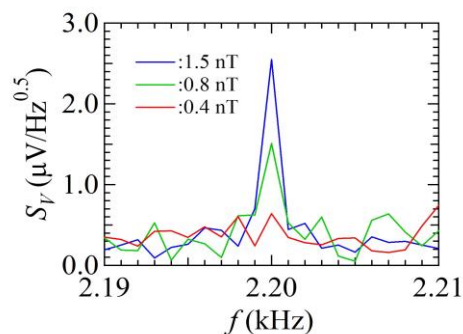


Fig. 2 Voltage spectrum of current-biased MTJ sensor when alternating magnetic field with frequency of 2.2 kHz was applied

高感度磁気インピーダンスセンサによる脳波 N100 および P300 信号の検出

王 可望、田島真吾、内山 剛、中山晋介
(名古屋大学)

N100 and P300 Brain Waves Detection Using Highly Sensitive Magneto-impedance Sensor

K. Wang, S. Tajima, T. Uchiyama
(Nagoya Univ.)

はじめに これまでに、パルス通電による磁化回転を利用した磁気インピーダンス (MI) センサにより、ピコテスラオーダーの磁界検出分解能が実現されている^[1]。我々は、磁気インピーダンスセンサの小型で操作性に優れた特徴を利用して、人体表面における生体磁場を近接的に計測する方法を検討している。これまでの実験結果から、数十 pT 程度の大きさの脳波に類似する磁気信号が後頭部や頭頂部付近で検出できることが分かってきた^[2]。一方、SQUID による、脳磁場計測の事例では、その信号の大きさは fT オーダーである。すなわち、MI センサにより計測される頭部付近の生体信号は、SQUID による計測事例より、数十倍から数 100 倍程度信号が大きいためシールドレスでの計測も可能である。本研究では、MI センサを利用して、脳波 N100 および P300 信号の検出を行った。

実験結果

事象関連電位 P300 信号を検出するためにまず、後頭部の生体磁気を計測した。高音 (2000 Hz) の標的信号は低確率 ($p = 0.2$) で提示され、標準の低音域信号 (1000 Hz) は、高確率で ($p = 0.8$) 提示された。被験者には、標的信号に応じて、左手側のスイッチを押すように指示を行った。図 2 は、オドボール課題により得られた、後頭部の生体磁気信号の時間領域波形を示す。25 回の測定結果の平均として求めた結果である。各信号は -100ms から 0 ms の平均値をオフセットとして補正した。標準刺激に対する反応波形が時間に対してほぼ一定 (平坦) なのに比べて、標的刺激では、300 ms 付近で波形が大きく変化することが示されている。さらに、頭頂部の磁気信号に関しては、研究室内の 4 名の被験者から、P300 と考えられる信号を検出した。また、脳波 N100 を検出するために、2 名の被験者に対して聴覚刺激の実験を行った。磁場に換算して 20-30pT の大きさの信号ピークが、100 回の加算平均により、100ms 付近に観測された。

[1] T. Uchiyama, K. Mohri, Life Fellow, IEEE, Y. Honkura, and L. V. Panina, "Recent Advances of Pico-Tesla Resolution Magneto-Impedance Sensor Based on Amorphous Wire CMOS IC MI Sensor," IEEE Trans. Magn., vol. 48, no.11, pp. 3833-3839, Nov. 2012.

[2] S.Tajima, T. Uchiyama, Y. Okuda, and K. Wang, "Brain activity measurement in the occipital region of the head using a magneto-impedance sensor," Seventh International Conference on Sensing Technology, pp.267-270,3-5,Dec.2013.

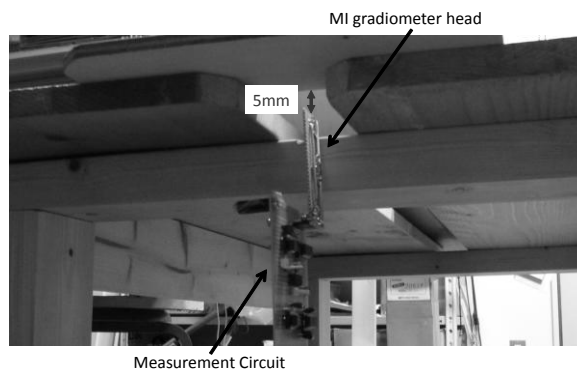


Fig.1 Magnetic field measurement system at in the occipital region using MI sensor

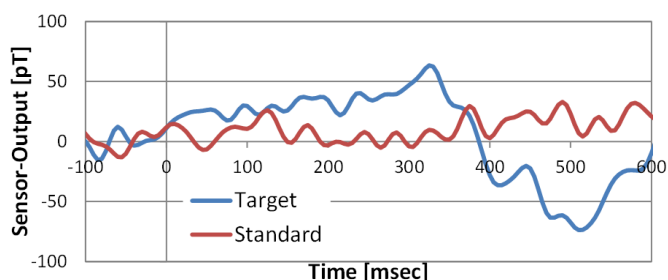


Fig. 2 Time series of magnetic wave forms in the occipital region due to oddball paradigm

磁気シールドルームの低周波遮蔽性能評価法の検討

その3 1層シールドルームのコイル配置条件

米山祐太^{*1}, 酒井昭彦¹, 結城聡², 風見邦夫², 山崎慶太³, 新納敏文⁴, 山口孝夫⁵, 村松和弘⁶

(¹技研興業, ²横河電機, ³竹中工務店, ⁴鹿島建設, ⁵大同プラント工業, ⁶佐賀大学)

Investigation on method for evaluation of shielding factor of magnetically shielded room applied magnetic field with low-frequency. Part 3. Placement condition of coil on single-layered shielded room.

Yuta Yoneyama¹, Akihiko Sakai¹, Satoshi Yuuki², Kunio Kazami², Keita Yamazaki³, Toshifumi Shinnoh⁴, Takao Yamaguchi⁵, Kazuhiro Muramatsu⁶

(¹Giken-kogyo Corp., ²Yokogawa Electric Corp., ³Takenaka Corp., ⁴Kajima Corp.,

⁵Daido Plant Industries Corp., ⁶Saga Univ.)

まえがき

(社)電子情報技術産業協会 (JEITA) 金属磁性材料標準化専門委員会 (現 磁気シールドルーム G) は、2012 年 1 月に JEITA EM-4502 規格「磁気シールドルームの超低周波 (1Hz 以下) 環境変動磁気ノイズに対する遮蔽性能評価法」¹⁾を制定した。引き続き、姉妹版の 1Hz よりも高い周波数 (低周波と称す) の遮蔽性能評価法の規格化を検討している。本報では、商用周波数 (55Hz) に対する 1 層磁気シールドルーム (MSR) の遮蔽性能評価法の検討として、MSR の形状を変えたときのコイル配置条件の妥当性について解析により検証する。

遮蔽性能評価とコイル配置条件

MSR の寸法を幅 W , 奥行 D , 高さ H , 正方形励磁コイル一辺の長さを L_c , MSR 扉面からコイルまでの離隔距離を L_g として、コイル配置条件を設定した。遮蔽性能 SF の過大評価を防ぐため、磁気シールドの弱点部である扉面にはコイルを設置し、磁界を印加する。

L_c は扉の幅 D_w 以上とする。また、 L_g は EM-4502 規格に従い、コイル中心を MSR 扉面の中心に合わせる。磁束強度分布に偏りがあるため²⁾, 中心から範囲を広げて評価をする必要がある。そこで、シールドがない場合の MSR 中心点の磁束密度を B_0 , シールドされた時を B_0 , 中心点周辺の 4 点の磁束密度を B_a, B_b, B_c, B_d とし (Fig.1), 遮蔽性能 SF を式(1)と定義した。

$$SF = 8B_0 / (4B_0 + B_a + B_b + B_c + B_d) \quad (1)$$

MSR 形状と設定誤差の検討

前章で述べた条件のコイル配置における SF と一様磁界の SF_0 を比較し、誤差を検討する。 $L_c=1435\text{mm}$ とし、MSR 形状 (パーマロイ 1 層, 銅 1 層) を基本モデル, $D=3000\text{mm}$ モデル, $W=3000\text{mm}$ モデルに設定して、有限要素法による渦電流を考慮した三次元線形磁界解析を行った (Fig2)。

その結果、基本モデル, $D=3000\text{mm}$ モデル, $W=3000\text{mm}$ モデルでは EM-4502 規格のコイル配置条件での誤差 (SF_0 に対する SF の比率) はそれぞれ 40%, 19%, 59% となり, MSR 形状によっては著しく SF が低く評価されることが分かった (Fig3)。

今後は、誤差を考慮した上で、規格化に向けて多様な MSR の形状に対応した条件を検討したい。

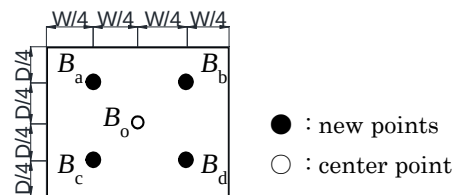
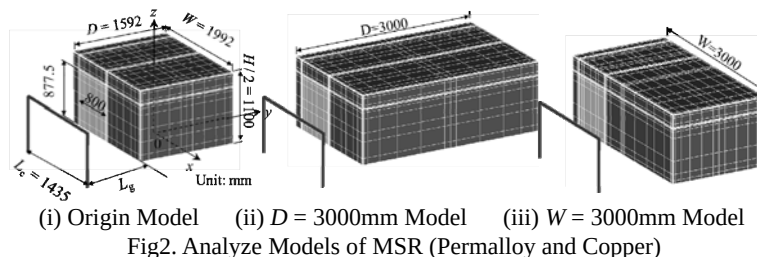
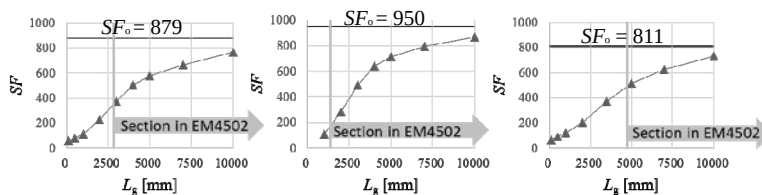


Fig.1 Evaluation Points around the Center Point



(i) Origin Model (ii) $D=3000\text{mm}$ Model (iii) $W=3000\text{mm}$ Model
Fig2. Analyze Models of MSR (Permalloy and Copper)



(i) Origin Model (ii) $D=3000\text{mm}$ Model (iii) $W=3000\text{mm}$ Model
Fig3. SF vs L_g (55Hz)

参考文献

- 1) JEITA:「磁気シールドルームの超低周波 (1Hz 以下) 環境変動磁気ノイズに対する遮蔽性能評価法」, EM-4502, 2012
- 2) 米山 他:「磁気シールドルームの遮蔽性能評価法の検討 その1 遠方磁気ノイズに対する遮蔽性能評価法」第 37 回日本磁気学会学術講演会
- 3) 山崎 他:「環境磁気ノイズと磁気シールド」第 28 回日本生体磁気学会

磁気シールドルームの低周波遮蔽性能評価法の検討 その4 2層シールドルームの測定結果

結城聡¹, 風見邦夫¹, 米山祐太², 酒井昭彦², 山崎慶太³, 新納敏文⁴, 山口孝夫⁵, 村松和弘⁶
(¹横河電機, ²技研興業, ³竹中工務店, ⁴鹿島建設, ⁵大同プラント工業, ⁶佐賀大学)

Investigation on method for evaluation on shielding factor of magnetically shielded room applied magnetic field with low frequency. Part 4. Measurement results of double-layered shielded room.

Satoshi Yuuki¹, Kunio Kazami¹, Yuta Yoneyama², Akihiko Sakai², Keita Yamazaki³, Toshifumi Shinnoh⁴, Takao Yamaguchi⁵, Kazuhiro Muramatsu⁶
(¹Yokogawa Electric Corp., ²Giken-kogyo Corp., ³Takenaka Corp., ⁴Kajima Corp., ⁵Daido Plant Industries Corp., ⁶Saga Univ.)

まえがき

(社)電子情報技術産業協会 (JEITA) 磁気シールドルーム G では、一様磁界における 1Hz 以下 (超低周波) の磁気シールドルーム (MSR) の遮蔽性能評価法¹⁾に続き、現在、渦電流の影響が無視できない 1Hz より高い周波数 (低周波) の遮蔽性能評価法の規格化を検討している。これまで、導電層を含み渦電流による遮蔽効果を有する 1 層 MSR (パーマロイ 1 層, 銅 1 層) に励磁コイルを用いて磁界を印加し、コイルの大きさと離隔距離を変化させた実測及び解析による検証を行ってきた²⁾。

本報告では、より遮蔽性能が高い 2 層 MSR について 1 層と同様の効果が得られるか実測にて検証する。

磁気シールドルームと励磁コイル配置

Fig.1 に測定に用いた MSR を示す。幅 $W=3,004\text{mm}$, 奥行き $D=3,004\text{mm}$, 高さ $H=3,004\text{mm}$ で、パーマロイ 2 層 (2mm), アルミ 2 層 (4mm) を内側よりパーマロイ, アルミ, アルミ, パーマロイの順で構成された立方体 MSR である。励磁コイルは、各方向とも MSR の扉面片側で中心軸に一致するように配置する。MSR がない場合の中心点での磁界 B_0 と MSR がある場合の漏洩磁界 B_m を測定して遮蔽性能 $SF (=B_0/B_m)$ を求めた。励磁コイルの大きさ L_c を $1,435\text{mm}$ とし、離隔距離 L_g を変化させ、x, y, z 方向の SF を測定する。

実験結果

Fig.2 に $L_g=1,200\text{mm}$, 周波数 $0.75\sim 200\text{Hz}$ の範囲で変化時の各方向の遮蔽性能特性を示す。各方向とも周波数が高くなると SF は大きくなり、x, z 方向は 5Hz, y 方向は 10Hz で最大となり、それ以降は小さくなる。1 層 MSR の実測では、ピークが発生しなかったため、傾向に違いがある。 SF の大きさは、y 方向が x, z 方向に比べ約 1 桁大きくなっている。また、1 層 MSR の SF と比べ、1 桁以上の大きい遮蔽効果がある。

Fig.3 に周波数 55Hz, $L_g=500\sim 3,000\text{mm}$ の範囲で変化時の各方向の遮蔽性能特性を示す。各方向とも L_g が大きくなると SF も大きくなり、1 層 MSR 同様の傾向を示している。

まとめ

2 層 MSR において 1 層 MSR と同様の評価を行い、同じ傾向を示す距離特性とピークの有無が発生する周波数特性を確認することができた。今後は、1 層 MSR と同様に解析による検証を実施し、実測と解析結果の比較検証を行い、2 層 MSR にも適用できる遮蔽性能評価法を検討していく。

参考文献

- 1) JEITA: 「磁気シールドルームの超低周波 (1Hz 以下) 環境変動磁気ノイズに対する遮蔽性能評価法」, JEITA 規格 EM-4502, 2012
- 2) 米山 他: 「磁気シールドルームの低周波遮蔽性能評価法の検討 その3 1層シールドルームのコイル配置条件」, 第38回日本磁気学会学術講演会

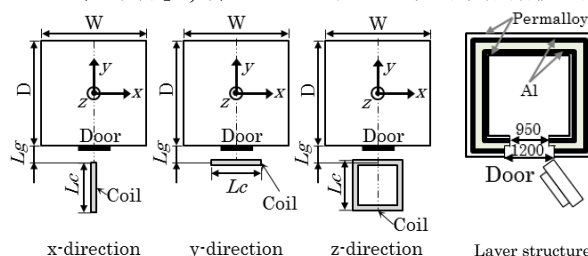


Fig.1 Experimental MSR and Exciting Coil

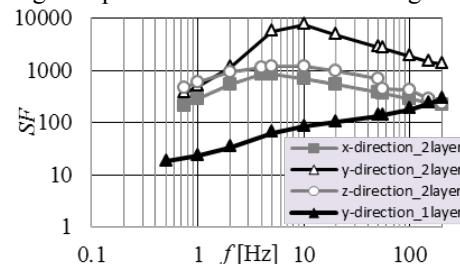


Fig.2 SF vs frequency ($L_c=1,435\text{mm}$, $L_g=1200\text{mm}$)

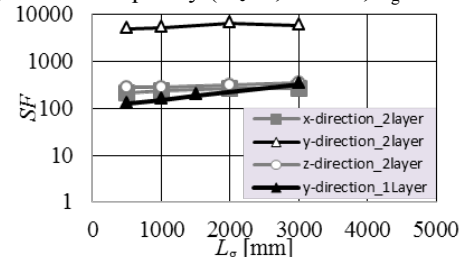


Fig.3 SF vs L_g ($L_c=1,435\text{mm}$, $f=55\text{Hz}$)

Improvement of Mechanical Stability and Dispersion of Hollow Porous Au/FePt Nanocapsules with Thermally Fused Netlike Shell

R. Zhang, Y. Kitamoto

Department of Innovative and Engineered Materials, Tokyo Institute of Technology, Japan

Introduction

A novel multifunctional nanocapsule with hollow interiors and porous Au/FePt shells has been developed for image-guided photothermal therapy and drug delivery. This architecture has strong plasmon resonance in NIR range, high magnetic response, and drug loading capability. In our previous work, we successfully fabricated hollow porous Au/FePt nanocapsules using silica spheres as template and improved their pore structure and magnetic properties of the thermally fused netlike shell by high-temperature high-pressure treatment (HTHP) in suspension. However the agglomeration and destruction of Au/FePt nanocapsules were observed after HTHP. In this work, a silica coating was prepared on the surface of Au/FePt/silica composite spheres to protect them from agglomeration and destruction during HTHP. The Au/FePt nanocapsules showed a better dispersion and higher mechanical stability even after removing silica spheres and the silica coating layer.

Experiment

Firstly, as-prepared Au/FePt silica spheres were modified with Polyvinylpyrrolidone (PVP). Then the PVP-modified Au/FePt silica spheres were dispersed in a mixture of ethanol, deionized water, and ammonia aqueous solution. TEOS was added drop-wise to the mixed solution. After being stirred for 2 h, the products were washed and then redispersed in ethanol. The ethanol solution of silica-coated Au/FePt silica spheres were HTHP-treated at 573 K for 1 h. The purified particles were stirred in NaOH solutions to dissolve both of silica coating and silica cores. Finally hollow Au/FePt nanocapsules were purified, and their morphology, crystallographic structure, optical and magnetic properties were investigated.

Results and discussion

TEM images of the Au/FePt/silica composite spheres at various steps are shown in Fig.1. A solid and uniform silica coating with the thickness of about 50 nm was prepared on the surface of Au/FePt/silica composite spheres. After HTHP, metallic nanoparticles deposited on the silica template sphere were thermally fused together, forming the Au/FePt netlike shell. The influence of silica coating during the fusion process of metallic nanoparticles was investigated in details by transmission electron microscopy (TEM) and X-ray diffraction. There was no obvious difference in the fusion process between Au/FePt silica spheres with and without the silica coating. After dissolving the silica coating and silica sphere, hollow Au/FePt nanocapsules with the pores of ~40 nm in diameter were obtained. TEM images and data of particle size distribution showed these hollow capsules have a better dispersion and higher mechanical stability. Magnetic properties of the nanocapsules were not influenced by the silica coating.

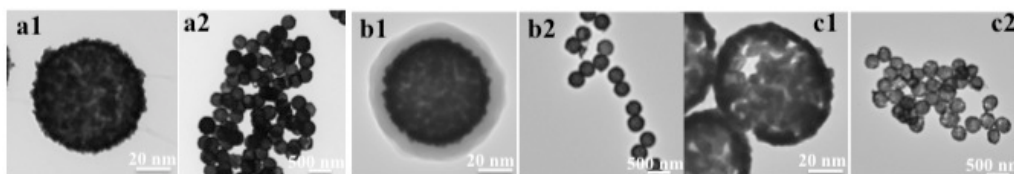


Fig.1 TEM images of Au/FePt/silica composite spheres (a1, a2), silica-coated Au/FePt/silica composite spheres (b1, b2), and hollow porous Au/FePt nanocapsules (c1, c2)

異方的形状を持つ強磁性酸化鉄ナノ粒子の作製と評価

堀内あかり、Hawa Latiff、関淳史、大田浩司、岸本幹雄、山本真平*、柳原英人、喜多英治
(筑波大物工、*京都大)

Synthesis of iron oxide nanoparticles having anisotropic shape

A. Horiuchi, H. Latiff, A. Seki, K. Ota, M. Kishimoto, H. Yanagihara, E. Kita

(Institute of Applied Physics, University of Tsukuba, *Kyoto Univ.)

背景

近年、交流磁場中での磁性流体の発熱を利用した磁気温熱治療法が検討されている。我々は、生体適合性に優れた板状酸化鉄ナノ粒子(DINP¹⁾)において大きな発熱量を見出し、形状異方性が発熱に寄与すると推察して検討を進めている²⁾。ここでの板状形状は前駆体となる板状 α -FeOOH ナノ粒子の合成時に形成されたものであるが、形状を最終生成物まで維持することは困難である。形状崩壊の原因は、高温の還元反応による焼結、強磁性体への還元に伴う結晶構造の変化などが考えられる。そこで本研究では、前駆体の形状を維持しつつ強磁性化する手法を見出すこととした。まず板状 α -FeOOH ナノ粒子を SiO_2 で厚く被覆し、結晶構造の変化に伴う粒子成長や溶解析出を防止する。更に、低温で強い還元力を持つ CaH_2 を還元剤として採用し、焼結の抑制を検討した。

実験

水熱法によって合成した板状 α -FeOOH ナノ粒子の表面に、 $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$ の加水分解によって SiO_2 を析出させた。これを CaH_2 で還元して Fe_3O_4 とし³⁾、水を添加して分散させた。TEM と XRD による観察と結晶構造解析、VSM による磁気特性評価、DLS によるサイズ測定を行った。

結果

Fig. 1 に、水熱法によって合成した板状 α -FeOOH ナノ粒子の粒度分布ヒストグラムを示す。粒子の形状は楕円板状をしており、長径と短径についてそれぞれ粒度分布を測定した。粒子サイズやアスペクト比は反応温度等の合成条件に依存して容易に変化させられることが明らかになっている。

Fig. 2 に、長径 70 nm、アスペクト比約 2 の SiO_2 被覆板状 α -FeOOH ナノ粒子の TEM 像を示す。板状 α -FeOOH ナノ粒子の表面に、均一な厚みの SiO_2 が析出した。Fig. 3 に、無被覆 α -FeOOH 粒子と SiO_2 被覆 α -FeOOH 粒子の XRD パターンを示す。 SiO_2 被覆した粒子のパターンから、非晶質 SiO_2 の存在が示唆された。講演では、反応条件を広範囲に変え、形状及び磁気特性との関係を報告する。

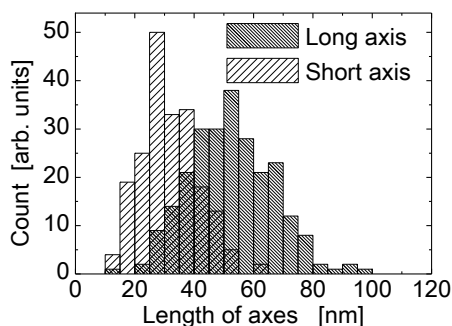


Fig. 1
TEM photographs of α -FeOOH nanoplates synthesized by hydrothermal treatment

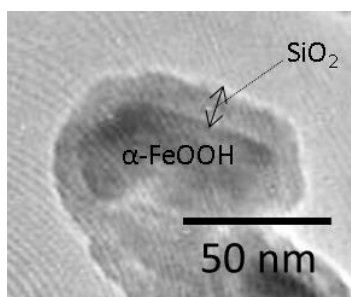


Fig. 2
TEM photographs of α -FeOOH nanoplates coated with SiO_2

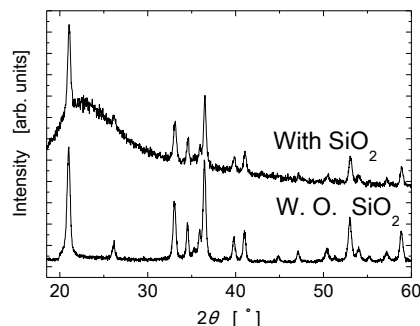


Fig. 3
XRD patterns of α -FeOOH nanoparticles

参考文献

- 1) M. Kishimoto, *et al.*, J. Magn. Magn. Mater., **324** (2012) 1285
- 2) 関淳史：筑波大学数理物質科学研究科電子・物理工学専攻修士論文(2014)
- 3) S. Yamamoto, *et al.*, Chem. Mater. **23** (2011) 1564–1569

生体親和性の高いハイドロキシアパタイト-(LaSr)MnO₃ ハイブリッド微粒子の合成

杉田秀次、Das Harinarayan、坂元尚紀、青野宏通*、篠崎和夫**、鈴木久男、脇谷尚樹、
(静岡大、*愛媛大、**東京工大)

Synthesis of biocompatible hydroxyapatite-lanthanum strontium manganite hybrid particles

S.Sugita, N.Sakamoto, H.Aono*, K.Shinozaki**, H.suzuki, N.Wakiya
(Shizuoka Univ., *Ehime Univ., **Tokyo Tech.)

はじめに

(La_{0.77}Sr_{0.23})MnO₃(LSMO)は約 50~60℃付近にキュリー温度(T_c)を有するため、高周波印可によって自己発熱させた場合にはこれ以上の昇温をしないという、発熱量の制御が可能な磁性体である。一方、LSMO は重金属を含む物質であり、生体親和性が低い。本研究では、LSMO 微粒子の表面をハイドロキシアパタイト(HAp)で被膜した、コアシェル型ハイブリッド微粒子を合成することにより、生体親和性の高い HAp-LSMO ハイブリッド微粒子の合成を目指した。

実験方法

HAp-LSMO ハイブリッド微粒子は超音波噴霧熱分解と SBF(Simulated Body Fluid)浸漬を組み合わせることにより合成を行った。まず、硝酸ランタン六水和物、硝酸ストロンチウム、硝酸マンガン六水和物を使用し、超音波噴霧熱分解により LSMO を合成した。合成された LSMO を遊星ボールミルにより解砕した後、HAp の前駆体溶液に分散させ、再び超音波噴霧熱分解することにより、HAp で被膜された LSMO 微粒子の合成を試みたが、この段階では HAp 層の厚さが薄いため、LSMO からの重金属の流出を抑制することは難しい。そこで、この複合微粒子を疑似体液(SBF 溶液)に浸漬させて HAp 被膜層の膜厚の増加を目指した。浸漬溶液には 1.0SBF と濃度が 1.5 倍である 1.5SBF を使用した。また、体内と同様の pH7.4、36.5℃の条件下で 2 週間浸漬させた。得られた試料は、結晶構造、組成、被膜厚さ、溶出測定、磁気特性及び高周波を印可した際の発熱特性を評価した。

実験結果

XRD、SEM-EDS の結果より、粒子が LSMO、HAp によって構成されており、また LSMO が HAp によって被膜されていることが確認できた。Figure.1 に超音波噴霧熱分解後(SBF 浸漬前)と SBF 浸漬後の粒子の SEM 画像を示す。SEM 画像より、浸漬後の粒子は浸漬前と比べ表面構造が変化しており、浸漬後の粒子表面には凹凸があることが確認できる。HAp は棒状の結晶成長がすることが知られており、HAp 結晶の表面は凹凸ができやすいとされている。そのため、SBF 浸漬によって被膜厚さ及び、溶出抑制効果の向上が示唆された。

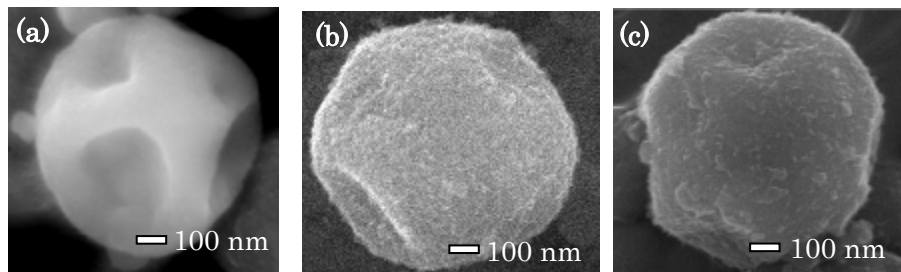


Fig.1. SEM micrographs of LSMO-HAp hybrid particles.

(a) before soaking (b) after soaking in 1.0SBF (C) after soaking in 1.5SBF

参考文献

- 1) A.Inukai, et al, J. Magn. Magn. Mater., 323, (2011), 965
- 2) Marc. Bohner, et al, Biomaterials, 30,(2009), 2157
- 3) G.-H.An et al, Mater. Sci. Eng. A, (2007), 449

広範囲の交流磁界条件に適用可能なマグネタイトナノ粒子の合成物性と発熱特性

岩本多加志、徳永充子、水野篤、間宮広明*、ジョン クヤ、宮村弘、
バラチャンドラン ジャヤデワン
(滋賀県立大学、*物質材料研究機構)

Development of synthesis technology for particles suitable magnetic hyperthermia in wide magnetic field and frequency range

T. Iwamoto, M. Tokunaga, A. Mizuno, H. Mamiya*, J. Cuya, H. Miyamura, B. Jeyadevan
(The University of Shiga Prefecture, *National Institute for Materials Science)

1. 緒言

近年、患者への負担が少ない効果的な癌治療法として、磁性ナノ粒子を用いた磁性流体温熱療法(MFH)が注目されている。実際に MFH で用いる磁場は比較的大きく、こうした磁場中での磁性ナノ粒子の発熱挙動はシミュレーションによって予測しなければならない¹⁾。しかし、このシミュレーションの妥当性は未だ証明されていない。本研究では、単分散で、粒径を制御したマグネタイトナノ粒子を化学合成で作製し²⁾、そのナノ粒子の広範囲交流磁場下における粒径に依存した発熱挙動を実験的に明らかにすることを目的とする。

2. 実験方法

典型的な合成方法として、既存の方法を改良して、オレイン酸とオレイルアミンの混合溶液に、金属前駆体として鉄(III)アセチルアセトナート($\text{Fe}(\text{acac})_3$)を加え、室温で 1.0 h 攪拌したのち、280 °C で 2.0 h 加熱還流を行った²⁾。その後、反応溶液を室温に戻し、洗浄を繰り返した。作製したナノ粒子の粒径および形状評価には透過型電子顕微鏡(TEM)を用い、発熱特性評価には交流磁場発生装置を用いた。

3. 結果と考察

$\text{Fe}(\text{acac})_3$ の濃度を変化させることにより、平均粒径 7.0–17.4 nm のマグネタイトナノ粒子の合成に成功した。様々な交流磁界下における試料の発熱特性を評価した結果、平均粒径 16.6 nm の試料(Fig. 1)が最も高い発熱を示し、その比吸収熱量(SAR)は 88.8 W/g であった(Fig. 2)。粒径 17.7 nm のナノ粒子は、分散性に乏しく、低い SAR 値を示した。ナノ粒子の磁化測定を行ったところ、他の試料と比較して、この試料は低磁場での磁気応答が敏感なため、外部磁場によるエネルギーの増大を効率良く熱エネルギーに変換できたと考えられる。

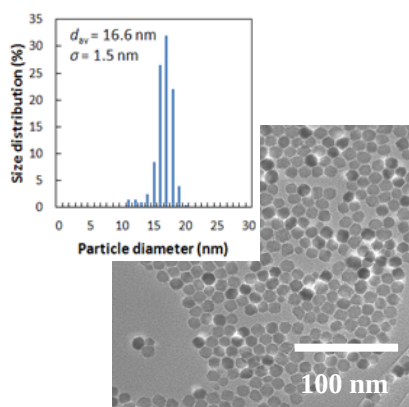


Fig. 1 TEM photographs of magnetite nanoparticles with 16.6 nm in diameter. The inset is a size distribution histogram.

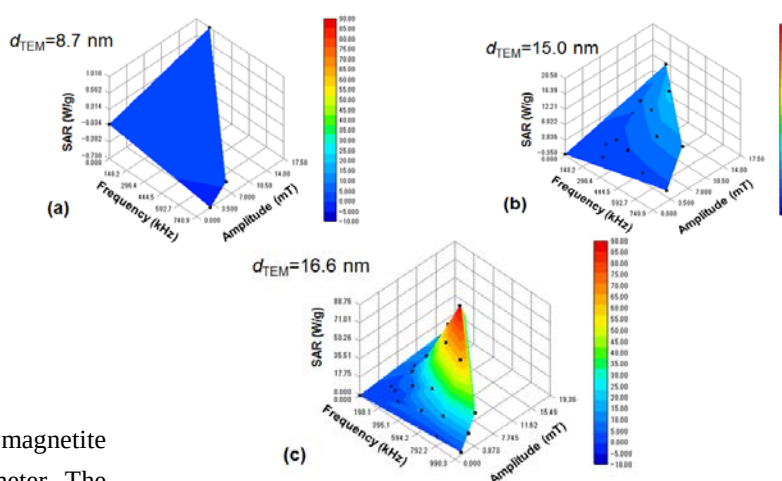


Fig. 2 Heat dissipation properties of (a) 8.7, (b) 15.0, and (c) 16.6 nm magnetite nanoparticles under various AC magnetic fields and frequencies.

参考文献

- 1) M. Suto et al., J. Magn. Magn. Mater. 321 (2009) 1493.
- 2) T. Kikuchi et al., J. Magn. Magn. Mater., 323 (2011) 1216.

磁気ナノ粒子体積分布の混合対数正規分布によるモデル化

笹山 瑛由、吉田 敬、圓福 敬二
(九州大学)

Modeling of Volume Distribution of Magnetic Nanoparticles by a Mixture of Log-normal Distributions
Teruyoshi Sasayama, Takashi Yoshida, Keiji Enpuku
(Kyushu University)

1. はじめに

磁気マーカーイメージングや磁気的ハイパーサーミア等に磁気マーカーが幅広く用いられている。磁気マーカーを用いる際には、その磁気特性を正確に把握する必要がある。一方、磁気マーカーは磁気ナノ粒子の凝集体からなるが、その凝集の程度は一様でないため、磁気マーカーの磁気ナノ粒子の体積は分布する。

代表的な磁気マーカーである Resovist の磁気ナノ粒子の体積分布を、2 つの混合対数正規分布でモデル化する報告¹⁾があるが、その妥当性については十分検証されていなかった。一方、この体積分布を磁気マーカーの $M-H$ カーブより分析する方法として、特異値分解法 (SVD 法) を用いた分析方法²⁾が提案されている。そこで本稿では、SVD 法によって得られた体積分布が混合対数正規分布でモデル化できるか否かについて検証する。

2. 方法

磁気ナノ粒子の直径 d_c に対する体積分布が、次式のような混合対数正規分布に従うとモデル化する。

$$n_c(d_c)V_c = \sum_{k=1}^K w_k \text{LN}(d_c; \mu_k, \sigma_k^2) \quad \text{where } \text{LN}(d_c; \mu_k, \sigma_k^2) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_k d_c} \exp\left[-\frac{(\ln d_c - \mu_k)^2}{2\sigma_k^2}\right]$$

ここで、 $n_c(d_c)$ および V_c はそれぞれ磁気ナノ粒子の直径が d_c の粒子数および一個当たりの体積、 K は体積分布のピーク数、 w_k は重み、 $\text{LN}(d_c; \mu_k, \sigma_k)$ は対数正規分布であり、 d_c の対数を取ったときに平均値 μ_k 、標準偏差 σ_k の正規分布に従う。この分布と SVD 法によって得られた体積分布との差の二乗和を最小とする最適化問題を解くことで w_k および σ_k を求めた。なお、 μ_k は SVD 法によって得られる体積分布においてピーク値を取る d_c より算出した。

また本稿では、SVD 法の適用前に $M-H$ カーブの磁気飽和部分の傾きを差分することで計測誤差を抑制した。

3. 結果

図 1 に SVD 法による磁気ナノ粒子体積分布の結果と、混合対数正規分布でモデル化した結果を示す。SVD 法によって得られた体積分布において、 d_c が 5.0 nm と 18.9 nm でピークが見られた。それぞれのピークに対応する対数正規分布の標準偏差は各々 3.8×10^{-1} 、 4.6×10^{-1} であった。図 1 の結果より、体積分布は 2 つの対数正規分布の混合分布に従っていると言える。この結果より、Resovist の磁気ナノ粒子の体積分布を 2 つの対数正規分布の混合分布でモデル化した他の報告¹⁾を裏付ける結果が得られた。

参考文献

- 1) D. Eberbeck, F. Wiekhorst, S. Wagner, and L. Trahms, Applied Physics Letters 98, 182502 (2011)
- 2) T. Yoshida, N. B. Othman, T. Tsubaki, J. Takamiya, and K. Enpuku, IEEE Trans. Magn. 48, 3788 (2012)

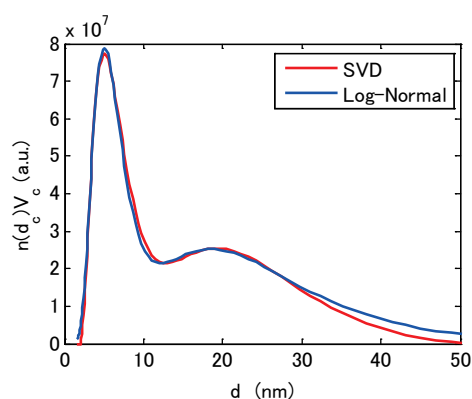


Fig 1. Volume distributions of the magnetic nanoparticles and the fitting of a mixture of log-normal distributions.

磁気ナノ粒子における第三高調波の特性評価

廣川 愛生*, 白石, 田邊 一博, 吉田 敬, 圓福 敬二

九州大学システム情報科学府

Characterization of the Third Harmonics for Magnetic Nanoparticles

Aiki Hirokawa, Shi Bai, Kazuhiro Tanabe, Takashi Yoshida, Keiji Enpuku

Kyushu Univ.

1. 序論

磁気ナノ粒子はナノサイズの強磁性体であり、その表面に検査試薬や薬剤等を結合したものは磁気マーカーと呼ばれる。近年、磁気マーカーからの磁気信号を利用して癌等の疾病領域を高感度・高分解能に画像化する MPI (磁気粒子イメージング) と呼ばれる手法が医療診断において注目されている。我々の MPI システムにおいては、磁気ナノ粒子の磁化応答の高調波信号を抽出し、得られた信号電圧データから粒子分布画像を再構築する。本稿では、画像再構築を行うための粒子モデルについて検討し、システムの性能改善を狙う。

2. 磁気ナノ粒子の第三高調波特性

磁気ナノ粒子の磁化特性は一般的に以下の Langevin 関数で表される。

$$L(mB/k_B T) = \coth(mB/k_B T) - k_B T / mB \quad (1)$$

ここで、 m は粒子の磁気モーメントである。MPI における実際の粒子の特性を調査するため、Resovist(富士フィルム RI ファーマ)60 μl に純水を添加した試料と glycerol を添加した試料に 2 mT_{rms} の交流磁界を印加し、その磁化応答における第三高調波成分の直流磁界依存性を測定した。その後、 m をパラメータとして実験結果と(1)式をフィッティングした。Fig. 1 に実験結果及び(1)式でのフィッティング結果を示す。(a)は交流磁界と並行な直流磁界を印加したとき、(b)は直交する直流磁界のときの実験結果である。 m は純水、glycerol でそれぞれ $3.3 \times 10^{-18} \text{ Am}^2$ 、 $5 \times 10^{-18} \text{ Am}^2$ となった。(a)ではどちらの試料においても実験値と理論値は概ね一致しているが、(b)では glycerol を添加した試料において乖離がみられる。

3. 結論

Resovist の第三高調波特性を測定し、Langevin 関数との比較を行った。純水を添加した試料は実験値と理論値が一致したものの、glycerol を添加した試料においては大きなずれがみられ、従って Langevin 関数では glycerol 中での粒子の振る舞いを再現出来ていないことがわかった。

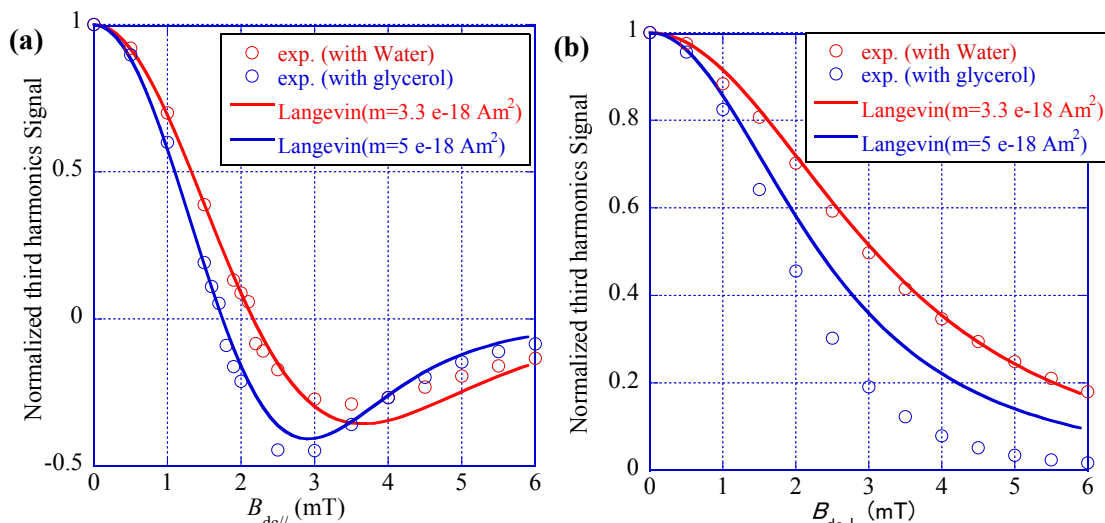


Fig. 1. Dependence of the third harmonic signal on the DC field. DC field was applied (a) parallel or (b) perpendicular to the AC field. Symbols are experimental results, while solid lines are calculated from (1).

磁気ナノ粒子イメージングシステムの高空間分解能化

白石、広川 愛生、田辺 一博、吉田 敬、円福 敬二

(九州大学大学院システム情報科学府)

Improvement of Spatial Resolution of Magnetic Nanoparticle Imaging

Shi Bai, Aiki Hirokawa, Kazuhiro Tanabe, Takashi Yoshida, Keiji Enpuku

(Graduate School of Information Science and Electrical Engineering, Kyushu University)

はじめに

磁気ナノ粒子イメージング (MPI) は磁気ナノ粒子 (MNP) の非線形磁化応答を利用した新しい体内診断技術である。MPI は外部磁場に対する MNP の磁化応答を直接検知するため、高速、高感度、高安全性などの特徴があり、近年多くの研究者に注目されている。ただし、この磁化応答信号はサンプル周辺で空間的に幅広く検出されるため、空間分解能が不足することが MPI の弱点である。そこで、我々は MPI の空間分解能の改善に着目している。先行研究では、AC 励起磁場と直交する方向に設置した DC 傾斜磁場を使うことが空間分解能の改善に有効であることを確認した⁽¹⁾。しかし、用いた傾斜磁場が弱いため 11 mm の空間分解能 (信号の半値幅) しか得られなかった。本研究では先行研究に基づいて、がん検診などの生体応用を想定し、さらに空間分解能を高めることを目指した。

原理とグラディエントコイル

MNP に AC 励起磁場を印加すると交流の磁化信号が発生するが、強い直流磁場が加わると磁気飽和状態となり信号が発生しなくなる。この特性を利用して、中心が 0 mT である DC 傾斜磁場を用いることで、MNP 信号の発生を中心部 (Field Free Point, 略: FFP) に限定出来る。この FFP, 即ち信号が出る領域の大きさが傾斜磁場の勾配で決まる。本研究では、銅線で巻いた線径 0.8 mm、200 Turns の 7 x 7 cm 正方形コイルを四つ並べた、傾斜磁場用四重極グラディエントコイルを作製した。このグラディエントコイルの表面で形成された中心が 0mT の傾斜磁場は x、y 方向に均等な勾配があり、その強さは 0.1 T/m @ 1A である。

検証イメージングと考察

先行研究で構築した MPI システムに今回作製したグラディエントコイルを実装し、イメージング実験を行った。強い傾斜磁場を得るために、グラディエントコイルに 8 A の DC 電流を流して 0.8 T/m の傾斜磁場を形成した。サンプルにかかる AC 励起磁場は $B_{ac} = 1 \text{ mT} @ f = 22.75 \text{ kHz}$ 、直径 2.1 mm 円柱状容器に注入したサンプル (Resovist : Fujifilm RI Pharma) の含量は $100 \mu\text{g}$ である。Fig. 1 は三つのサンプルを間隔 10 mm で配置したときの第三高調波によるイメージング結果である (検出コイルより 35 mm 離れた平面)。

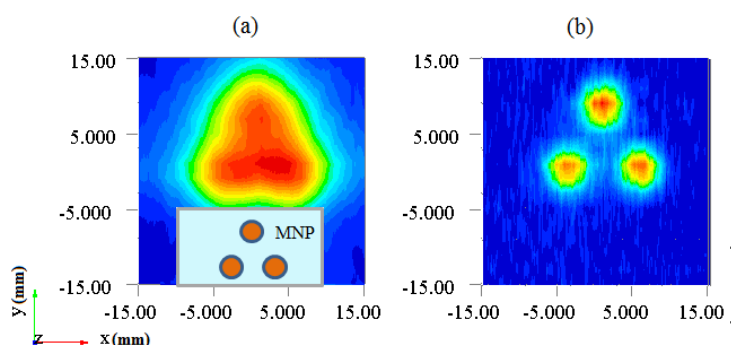


Fig. 1 Contour map of the magnetic field generated from the three MNP samples with spacing of 10 mm. The gradient field is (a) 0.4 T/m and (b) 0.8 T/m.

Fig. 1(a) は先行研究で用いた勾配 0.4 T/m の傾斜磁場を用いた時のイメージング結果である。三つのサンプル影がくっついていることが見える。

Fig. 1(b) は勾配 0.8 T/m の新たな傾斜磁場を用いたイメージング結果である。三つのサンプルが明らかに分離されている。サンプル一個における信号の半値幅は約 4 mm で、空間分解能を 2 倍以上も高めた。

参考文献

- (1) S. Bai, A. Hirokawa, K. Tanabe, T. Yoshida, K. Enpuku, IEEE Transactions on Magnetism, No. EW-04, 2014

磁性ナノ粒子の非線形非平衡磁気応答と がんイメージングにおけるアーティファクト

間宮広明, バラチャンドラン ジャヤデワン*

(物材機構, *滋賀県立大学)

Non-equilibrium and non-linear magnetic response of magnetic nanoparticles
and artifacts in magnetic particle imaging

H. Mamiya and B. Jeyadevan*

(NIMS, *The University of Shiga Prefecture)

準備困難で非常に高価なトレーサーである陽電子放出放射性物質と同様, 体内には存在しない磁性粒子の, 人体を容易に透過する磁気応答を用い, がんを電磁誘導検出によって簡便にイメージングしようとする研究に注目が集まっている. この磁性粒子イメージング(MPI)と呼ばれる検査法では, 最近著しく発達した生体内分子輸送システムを利用して磁性ナノ粒子をがん事前に集積させた後, 体外から大振幅の交流磁場を印加する. このとき, 磁性ナノ粒子の有無に関わらず得られる基本波の応答とは異なり, 高調波の信号は磁性ナノ粒子を取り込んだ腫瘍部分からのみ発せられる. また, 静磁場によって磁化を飽和させると, この高調波は消えるので, 意図的に零磁場スポットを作り出しそれを操作すれば, がんのイメージングが可能となる. MPIは, こうした特質を利用した検査法である.

実用に強く結びついたこのMPI研究では, 磁性ナノ粒子は単純に(磁氣的にも)丸いと仮定され, 異方性障壁のない応答は超常磁性でLangevin関数で記述されるとしてイメージが構成されてきた. しかし, 現実のナノ粒子には磁気異方性は必ず存在し, この場合, これによる超常磁性ゆらぎの抑制が問題となるはずである. また, 異方的, すなわち磁化容易軸の向きが存在するなら, 粒子自身の回転を無視できない. そこで, 我々は, 磁性粒子の大振幅の交流磁場応答を数値計算し, これまで無視されてきた丸くない事実のMPIへの影響を明らかにすることを試みた.

数値計算は, 今後, 感度向上を目指して利用が進むと考えられる10 nmから20 nmの磁鉄鉱ナノ粒子を対象とした. まず, 磁化容易軸の配向をランダムとおき, この大きさでは磁気モーメントの向きが磁化容易軸に束縛されている仮定して, 軸に平行な2状態間の熱活性型の遷移として交流磁場応答を数値計算した. また, 回転に関しては, 特に, 零磁場スポットの操作に対する超常磁性ナノ粒子交流磁場応答の変化に注目し, 様々な粘度の環境下でのシミュレーションを行った. なお, 腫瘍中に想定される粒子密度を考慮して, 粒子間の相互作用は無視した.

磁性ナノ粒子の磁気応答の3次高調波成分は, 粒径を10 nmから増していくと飛躍的に正に増大する. その後, 15 nm程度で最大値をとり急減, 負となる. これは, 異方性障壁の影響で応答が遅れ磁化曲線にヒステリシスが生じたことに由来する. また, 交流磁場振幅が大きいほどゼーマンエネルギーによる異方性障壁の低減効果が大きいので, 一定の大きさの粒子では低磁場振幅で信号が負, 高磁場振幅で正となる. 通常, 体表付近に比べて深部で磁場はかなり減衰するため, この結果は, 感度向上を目指して大きな粒子を用いた場合, 検査深度によって信号の位相反転が起きることを示している.

一方, 回転に関しては, 異方性を有する磁性ナノ粒子の応答が超常磁性であってもLangevin関数で記述されず, 磁化容易軸の向きに依存することの影響が大きかった. すなわち, 零磁場スポットに当たる以前の静磁場中で飽和した状態では磁化容易軸も配向しているので, 磁場を消磁しても配向がランダムになるまでの間, 磁気応答の3次高調波成分は, 以前にかかっていた静磁場の向きに大きく依存する. 最近の細胞内構造にアンカーされたナノ粒子でもゆっくりと回転するとの報告と考え合わせれば, この結果は, 診療時間短縮を目指して零磁場スポットを高速で操作した場合, 信号に操作履歴依存性が現れることを示している.

以上のように, 磁性ナノ粒子は実際には(磁氣的に)丸くないとしてシミュレーションを行うと, これまで考慮されてこなかったような挙動がみられた. 逆に, 従来のように安易にLangevin関数だと仮定してイメージを構成すれば, 思わぬアーティファクトが生じる可能性があることがわかった.

交流磁場印加により発生する励磁音響波の 遅延時間に関する基礎研究

石田巖, 中川貴, 清野智史, 山本孝夫
(大阪大学)

Study on delay time of sonic wave emission from magnetic nanoparticles
stimulated by alternating magnetic field application

I. Ishida, T. Nakagawa, S. Seino, T. A. Yamamoto,
(Osaka University)

1. 研究背景

磁性ナノ粒子に外部交流磁場を印加すると、粒子から磁場の2倍の周波数を持つ音波（励磁音響波）が誘起されるという現象“励磁音響効果”が2008年に報告された¹⁾。励磁音響波は励磁してから音波が検出されるまでに非常に長い遅れ（遅延時間）が生じることが明らかになっている²⁾。本研究では、この遅延時間の要因を磁場の印加から励磁音響波が発生するまでの“発音遅延時間”と励磁音響波の媒質中の“伝搬速度”に分けて考え、磁性粒子径を変化させて励磁音響波を測定し、磁性粒子径が発音遅延時間と伝搬速度に与える影響を調べた。

2. 実験

励磁音響波を検出するための実験系は以下の通りである。平均粒径がそれぞれ15、18、30 nmの Fe_3O_4 粒子2652FY、2655YD、2650MY（Nanostructured & Amorphous Materials Inc.製、以下それぞれ M_{15} 、 M_{18} 、 M_{30} と略す）をNaOH溶液中に濃度10 wt.%で分散させた磁性流体を励磁音響波発生源とし、これらの磁性流体をポリアクリルアミドゲル（以下PAGと略す）中に封入したものを測定試料とした。この測定試料をコイル中心上に磁性流体が位置するように固定した。発生した励磁音響波をマイクロフォンによって電気信号として検出し、アンプを用いて増幅し、デジタルオシロスコープによってPCに取り込んだ。この実験系を用いて各試料ごとにPAG表面からの磁性流体の深さ距離が異なる2つの場合で励磁音響波を測定し、発音遅延時間とPAG中の伝搬速度を算出した。

3. 結果と考察

図1に、各試料において交流磁場を印加してから音波が検出されるまでにかかった時間と、励磁音響波の媒質中の伝搬距離の関係を示す。発音遅延時間は図の直線のx切片から、媒質中の伝搬速度は直線の傾きからそれぞれ計算できる。表1にそれぞれの値を示す。これらの結果より、磁性粒子径が増加しても伝搬速度は変化しないが、発音遅延時間は短くなることが分かった。

表1. 各試料の発音遅延時間と伝搬速度

	M_{15}	M_{18}	M_{30}
発音遅延時間 (ms)	5.7	3.7	2.7
伝搬速度 (m/s)	7.7	7.1	7.7

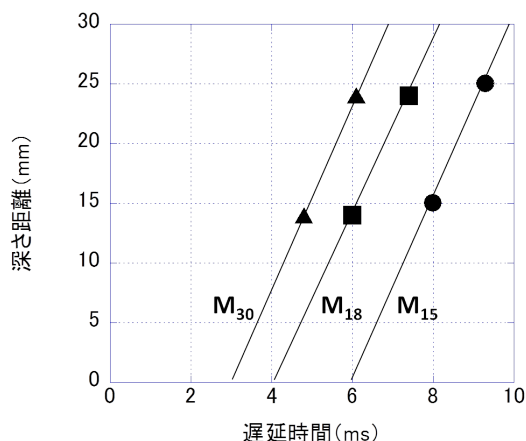


図1. 磁性粒子径を変化させたときの遅延時間と磁性流体の深さ距離の関係

参考文献

- 1) 掛川健司 ほか, 第32回日本磁気学会学術講演会概要集 (2008) 12pC-10
- 2) M.Tano et al: Extremely long signal delays from magnetic particles, *Mater. Lett.* Vol.98, pp51-54, 2013.

磁場中での磁気マーカー結合を用いた免疫検査法の開発

榊原達人、吉田敬、圓福敬二

(九州大学大学院システム情報科学府)

Immunoassay using binding reaction of magnetic marker under applied magnetic field

Tatsuhito Sakakibara, Takashi Yoshida, Keiji Enpuku (Kyushu University)

はじめに

本研究では磁気マーカーを用いた液相での免疫検査法の開発を行っている。磁気センサとして MR センサを用いたシステムを試作し、そのシステムを用いた磁気緩和測定法により、高分子ポリマーに固定したビオチンの検出を行った。これまでは結合マーカーから磁気信号を取り出すため、磁気マーカーに強い励起磁界を数回印加し測定していた。しかし、この励起磁界は未結合マーカー同士の凝集も発生させるため、感度悪化の原因にもなっていた。今回、反応磁界を印加しながら抗原抗体反応をさせることで、マーカーの磁気モーメントの向きをそろえながら抗原と結合させる方法を開発した。本方法を用いれば、強い励起磁界の印加回数を減らすことができ、マーカー同士の凝集をなくした信号の検出が可能であることを示した。

実験方法

磁気マーカーを結合するための抗原抗体反応を磁界を印加しながら行った。反応磁界としては、 $B_{re}=500\ \mu\text{T}$ 、 $1\ \text{mT}$ 、 $1.5\ \text{mT}$ を用いた。磁気緩和測定においては、測定前に励起磁界として $40\ \text{mT}$ を k 回印加した。また、MR センサシステムの雑音は $35\ \text{pT/Hz}^{1/2}$ であり、測定回数を $N=72$ 回で行った。

実験結果

反応磁界 B_{re} と励起磁界の印加回数 k の組み合わせとして、 $(B_{re}, k) = (0, 30\ \text{回}), (500\ \mu\text{T}, 30\ \text{回}), (1\ \text{mT}, 20\ \text{回}), (1.5\ \text{mT}, 5\ \text{回})$ とした実験結果を Fig.1 に示す。これより反応磁界をかけることによって、励起磁界の印加回数を減らしても信号を検出できることがわかった。また、反応磁界が大きいほど、少ない励起磁界回数で大きな信号を示すことがわかった。この結果は始めに述べた、抗原抗体反応中に磁界をかけることでマーカーの磁気モーメントの向きをそろえながら抗原と結合させるという現象が起きていることを実証している。

次に、Fig.1 の結果でポリマー数 5000 個の時の信号と 0 個の時の信号の割合を Table.1 に示す。ポリマー数 0 個の信号は未結合マーカーの凝集による信号や装置の雑音を示している。Table.1 に示される割合が大きいほど信号における雑音の影響が小さくなり、感度改善の指標として用いる事ができる。したがって、Table.1 より今回実験した条件の中では、反応磁界を $1.5\ \text{mT}$ とし、励起磁界回数を 5 回としたときが最もよい感度を示した。

まとめ

反応磁界と励起磁界回数を変化させ、免疫検査による信号の違いを検証した。今回行った実験の条件では反応磁界が $1.5\ \text{mT}$ で励起磁界回数が 5 回の時に最も良い感度を示した。今後は反応磁界や励起磁界回数の条件を細分化して、検証していく必要がある。

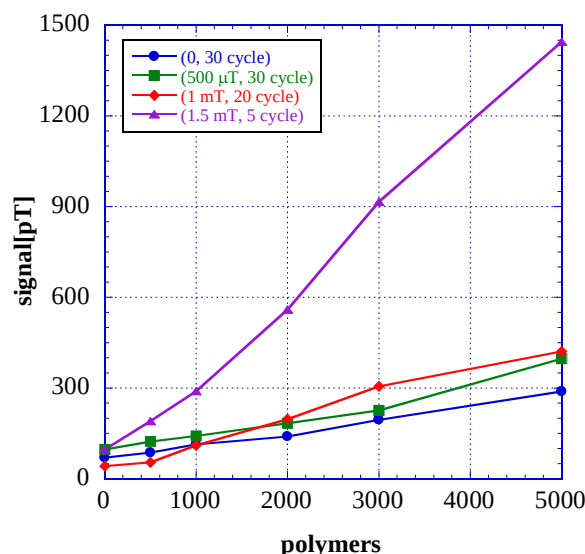


Fig.1 Detection of biotin coated polymer beads. Relationship between the number of polymer beads and the detected signal obtained under different conditions.

Table.1 Ratio of the measured signal between the case of 5000 and 0 polymers. The results are obtained under four conditions.

B_{re}	0	$500\ \mu\text{T}$	$1\ \text{mT}$	$1.5\ \text{mT}$
k	30 cycle	30 cycle	20 cycle	5 cycle
Ratio (5000/0)	4.1	4.1	10.0	14.9