

# 電界による磁気秩序制御のための $\text{BiFe}_{1-x}\text{M}_x\text{O}_3$ ( $\text{M} = \text{Ga, Al}$ ) 粉体の合成

<sup>o</sup>五味 学、倉田憲治、沢村俊貴、横田壮司、\*壬生 攻  
(名古屋工業大学大学院 物質工学専攻、\*機能工学専攻)

Synthesis of  $\text{BiFe}_{1-x}\text{M}_x\text{O}_3$  ( $\text{M} = \text{Ga, Al}$ ) powder for magnetic order control by electric field

<sup>o</sup>M. Gomi, K. Kurata, T. Sawamura, T. Yokota and \*K. Mibu

(Dept. of Mater. Sci. Engng., and \*Engng. Phys. Electro. & Mecha., Nagoya Inst. of Tech.)

## まえがき

磁界を必要としない磁気冷凍法として電界による構造相転移に伴う磁気秩序制御の可能なマルチフェロイック材料の利用が考えられる。この材料には、磁気秩序温度を室温を挟んで大幅に変えるため、電界による1次構造転移が要求される。本研究では、このような材料として、Fe サイトを Ga および Al 置換した  $\text{BiFeO}_3$  (BFO)を取り上げた。従来、このような置換は高温高圧合成<sup>1)</sup>でしか可能でなかったが、我々は常温低压でこれを可能とする新しい手法を開発した<sup>2)</sup>。本発表では置換量と結晶相の関係、磁気特性について報告する。

## 実験

$\text{BiFe}_{1-x}\text{M}_x\text{O}_3$  ( $\text{M} = \text{Ga, Al}$ ,  $x=0 \sim 0.5$ ) 粉体は、各成分の硝酸塩を酢酸およびエチレングリコール中に溶解させた溶液を乾燥後、300°Cで硝酸塩を分解したものを前駆体として用いた。これを熱処理し、結晶性の粉体を得た。また、置換に伴う磁気秩序の変化をメスバウア一分光法により調べた。

## 結果

Fig. 1 は Ga 置換に伴う XRD 変化を示す。Ga 量  $x$  の増加とともに  $x=0.1 \sim 0.2$  で BFO の示す菱面体晶相 R (空間群 R3c) から擬正方晶相 T (空間群 Cm) へ転移した。従来、Ga 置換 BFO は高温高圧合成でのみ得られていたが、本手法では常温低压で  $x=0.4$  まで単相で得られることがわかった。一方、Al 置換では、 $x=0.2$  付近から T 相の生成が見られたが、 $x=0.35$  付近まで R, T 混相であり、それ以上の置換では異相の生成が観測された。

Fig. 2 は、これらの粉末の室温における Mössbauer スペクトルを示す。 $x=0$  では、反強磁性体 ( $T_N=643$  K) BFO に特有の非対称な 6 本の吸収ピークが観察される。Ga 置換により新たに成長した擬正方晶相による吸収ピークが中心付近に現れ、 $x=0.2$  以上では T 相のピークのみになった。これらの結果は、擬正方晶相が、室温では常磁性であることを意味する。T 相が低い秩序温度を持つことは、c 軸方向での Fe-O-Fe 間距離が著しく伸び、交換相互作用が減少したとして理解される。強誘電体でのこのような磁気的振舞いは、MPB 近傍で磁気的秩序—無秩序状態を R-T 相転移を介して電気的に制御可能であることを示唆している。

## 参考文献

- 1) A.A. Belik, D.A. Rusakov, T. Furubayashi, and E. Takayama-Muromachi, Chem. Mater., **24**, 3056 (2012).
- 2) J. Yan, M. Gomi, T. Yokota, and H. Song, Appl. Phys. Lett., **102**, 222906 (2013).

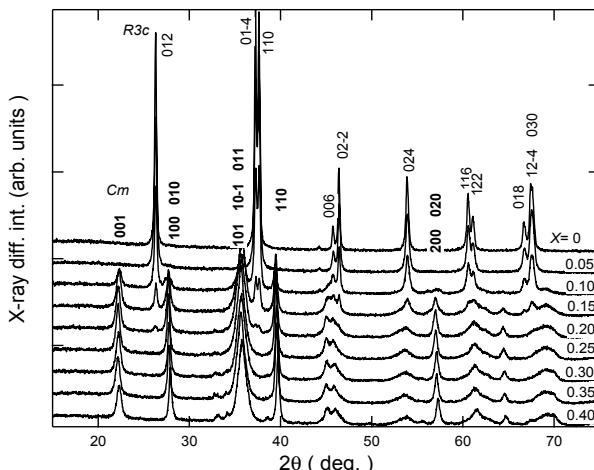


Fig. 1 XRD diagrams of  $\text{BiFe}_{1-x}\text{Ga}_x\text{O}_3$  powder at 300K.

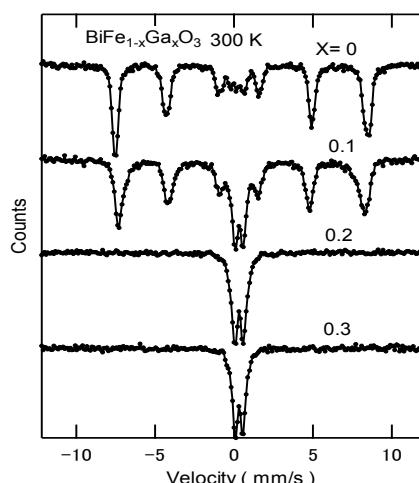


Fig. 2 Mössbauer spectra of  $\text{BiFe}_{1-x}\text{Ga}_x\text{O}_3$  powder measured at 300 K.

# 強磁性-強誘電性積層体の磁歪が電気磁気効果に与える影響

岩水大樹、籠宮功、柿本健一

(名古屋工業大学)

Influence of magnetostriction on magnetoelectric effect at ferromagnetic-ferroelectric laminated composites

H. Iwamizu, I. Kagomiya, K. Kakimoto

(Nagoya Institute of Technology)

## 緒言

電気磁気効果(ME効果)とは、外部印加磁場(電場)によって電気分極(磁気モーメント)が誘起される現象であり、新規高機能電子デバイスへの応用が期待されている。特に強磁性-強誘電積層体は常温で高いME効果を示すことが知られている。この積層体は磁性体層で生じた磁歪が誘電体層へ伝搬することによってME効果を発現するため、ME効果の大きさは試料に生じた磁歪の大きさや方向に大きく影響される。より効率よく積層体に磁歪を誘起できればME効果を増大でき、デバイス応用においても有利である。そこで本研究では、強磁性  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ -強誘電性  $\text{BaTiO}_3$  積層体に着目し、磁歪に大きな影響を与える要素である、①各層の積層数、および②外部磁場印加方向の2点が、積層体の磁歪とME効果に与える影響を調べた。

## 実験方法

$\text{CoFe}_2\text{O}_4$  粉末と  $\text{BaTiO}_3$  粉末をそれぞれスラリー化した後、テープキャスティング法でシート状に成形した。切りだしたシート10枚を一層として交互に積層し、両表面が磁性体層となるよう合計  $n$  層( $n=3, 5, 7$ )積層した。その後  $1270^\circ\text{C} \times 2\text{ h}$  の条件で共焼結し積層体試料を作製した。得られた積層体試料に直流磁場  $H$  と交流磁場  $h_0$  を積層面に垂直に印加し、積層面と平行な面に誘起された電気分極を、電圧としてロックインアンプにて検出することでME効果を測定した。測定条件は直流磁場強度を  $-3000 - +3000\text{ Oe}$ 、交流磁場強度を約  $0.7\text{ Oe}$ 、周波数を約  $600\text{ kHz}$  とした。また同一試料に  $H$ 、および  $h_0$  を異なる方向から印加し、磁場印加方向とME効果の大きさの関係について調べた。また、ひずみゲージを用いて試料の磁歪量を調べた。

## 実験結果

Fig.1に積層数の異なる試料でのME効果の測定結果を示す。層数が3層から5層に増える際にME電圧が増大しており、それ以降はほぼ一定の値を示した。また、ひずみゲージによる測定でも、同様に5層以降は一定の磁歪量を示した。これらのことから5層以上積層させることで、誘電体層に十分なひずみが伝搬し、ME効果が増大したと考えている。次に積層面に垂直な面を電極面とし、外部磁場( $h_0, H$ )の印加方向を変えてME効果を測定した結果をFig.2に示す。印加方向A, B, C, Dにおいて、同一試料にもかかわらず生じたME電圧が異なっており、本積層体は外部磁場に対して異方性を有していることが分かる。この異方性の原因として、磁性体層の磁歪量だけではなく磁歪方向と圧電特性の相関も関与していると考えており、当日は以上の観点から異方性が生じるメカニズムについて議論する。

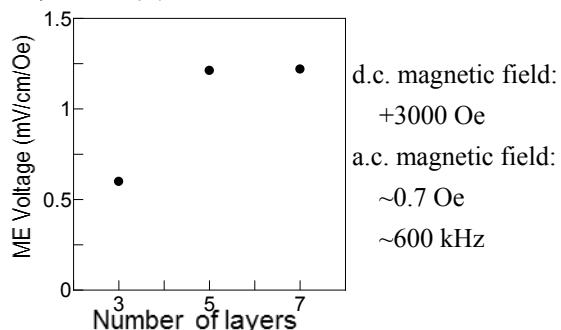


Fig.1 Difference in ME effect by  
Number of layers

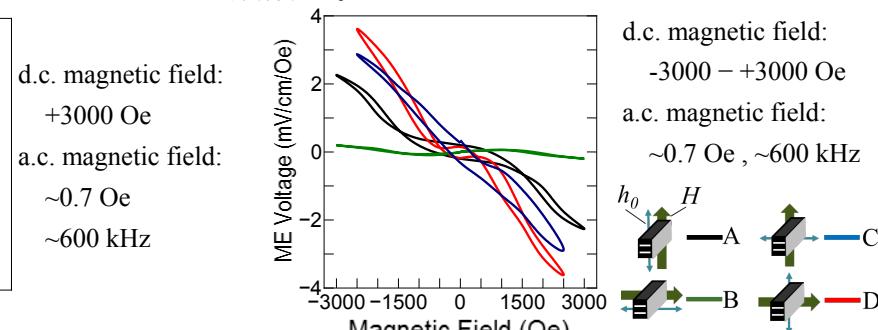


Fig.2 Relation between ME effect and the  
applying direction of magnetic field

# 内在する Au ナノ粒子の局在表面プラズモン共鳴下における CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> マトリックスの磁気異方性評価

西川祥子、佐藤徹哉

(慶大理工)

Evaluation of magnetic anisotropy of CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> matrix under localized surface plasmon resonance  
of Au nanocrystal

S.Nishikawa and T.Sato  
(Keio Univ.)

## はじめに

金属ナノ粒子の局在表面プラズモン共鳴 (LSPR) に伴って発生する局在増強電場は、周囲の媒質の磁気光学効果を増大させる働きがあることが報告されている。<sup>1)</sup> 磁気光学効果の増大は、局在増強電場がスピン軌道相互作用に影響を及ぼすことに起因するものと考えられるが、その詳細は未だ明らかではない。<sup>2)</sup> 本研究では Au ナノ粒子の LSPR に伴って発生する局在増強電場によるスピン軌道相互作用の変調を利用して CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の磁気異方性の変化を観測することを目指す。

## 実験方法

Au ナノ粒子は以下の二通りの方法で作製した。まず、石英基板上に Au を蒸着し、アニールすることにより粒成長させた。次に、電子線リソグラフィーを用いて Au ナノ配列を作製した。どちらのサンプルにおいても、その上から高周波マグネットロンスパッタで CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> を堆積させ、アニールにより結晶化させた。このようにして作製したサンプルについて、吸収スペクトルとファラデー効果の測定を行った。さらに、ファラデー効果の磁場依存性の測定を行い、LSPR による CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の磁性への影響を調べた。

## 結果・考察

図 1(a)に粒成長法により作製したサンプルについて、ファラデー効果の磁場依存性を測定波長を変えて測定した結果を示す。(b) は Au ナノ粒子が埋め込まれた CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> サンプルの他に CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> のみのサンプルも用意し、それぞれの測定結果から保磁力の値の変化をプロットしたものである。

これにより、Au ナノ粒子を含むサンプルは、含まないサンプルと比較して 640 nm 付近で保磁力が減少傾向にあることが分かった。この波長は作製したサンプルの LSPR 波長と一致することから、LSPR により CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> のスピン軌道相互作用の変調を介し、磁気異方性が変化したことを示唆する。しかし、磁化測定では保磁力の変化を観測することができなかった。これは、磁気的に保磁力の変化を観測するには局在増強電場が十分でなかったためであると考えられる。

そこで今回は電子線リソグラフィーを用いて Au ナノ配列を作製した。粒径分散を抑え、LSPR 波長における効果を増大させることで、磁化測定による保磁力の変化を観察することを目指す。

## 参考文献

- 1) S.Ozaki. et al., J. Appl. Phys. 106, 123530 (2009).
- 2) S.Tomita. et al., Phys. Rev. Lett. **96**, 167402 (2006).

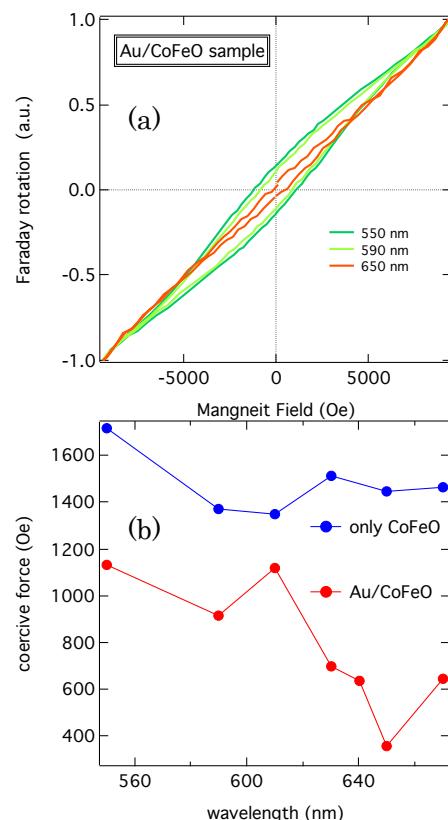


図 1. Au/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> サンプルのファラデー効果温度依存性 (a) と測定波長による保磁力の変化 (b)

# 鉄置換したヒボナイトの作製と磁気特性

名雲洋海、渡邊剛\*、柿崎浩一、神島謙二  
(埼玉大、\*理研)

Synthesis and magnetic properties of Fe substituted hibonite  
H. Nagumo, K. Watanabe\*, K. Kakizaki, K. Kamishima  
(Saitama Univ., \*RIKEN)

## 1. 緒言

六方晶 M 型フェライト  $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$  は、高保磁力永久磁石材料として用いられている。この  $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$  とヒボナイトと呼ばれる  $\text{CaAl}_{12}\text{O}_{19}$  の構造はよく似ている。

しかし、ヒボナイトの Al を Fe で置換したという報告は、ほとんどない<sup>1)</sup>。Ca, Al, Fe という地殻に多く含まれている元素から M 型フェライトのような磁気特性を示す材料を作製することは、資源戦略の意味でも有用である。そこで本研究では  $\text{CaAl}_{12}\text{O}_{19}$  の Al を Fe で置換した材料を作製し、その磁気特性を調べた。

## 2. 実験方法

出発原料に  $\text{CaCO}_3$ ,  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  を用いて粉末冶金法により試料を作製した。これらの粉末を目的の化学量論組成になるように秤量し、湿式混合、仮焼成、乳鉢粉碎、遊星ボールミル粉碎を経て原料粉を準備した。この原料粉を成型し、電気炉中で 5 時間本焼成して試料を作製した。

作製した試料の構造を粉末 X 線回折法により解析し、磁気特性は振動試料型磁力計(VSM)を用いて測定した。

## 3. 結果および考察

図 1 は 1300°C で本焼成した試料の X 線回折図を示す。 $\text{Fe}^{3+}$  のイオン半径が  $\text{Al}^{3+}$  のイオン半径よりも大きいため、 $\text{Fe}^{3+}$  イオンの置換量に応じて、母物質の  $\text{CaAl}_{12}\text{O}_{19}$  のピークよりも低角度側へずれた。 $x=0, 1$  ではヘマタイト相が主相となり、 $x \geq 2$  ではヒボナイト相が主相となった。

図 2 は 1300°C で本焼成した試料の飽和磁化と保磁力の組成依存性を示す。保磁力の値は  $x=3$  で最大となった。

図 3 は、1300°C で本焼成した試料のキュリー温度の組成依存性を示す。また、M 型フェライト  $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$  のキュリー温度は約 450°C である<sup>2)</sup>。 $\text{Fe}^{3+}$  イオンが存在するところに  $\text{Al}^{3+}$  イオンが置換され、超交換相互作用が小さくなり、キュリー温度が低下した可能性がある。

以上より、Fe 置換した  $\text{CaAl}_{12}\text{O}_{19}$  の作製に成功した。

## 4. 参考文献

- 1) J. B. MacChesney et al., Int. Conf. Ferrites, Kyoto (1970) 158
- 2) 近角聰信, 強磁性体の物理(上), 裳華房 (1978) 230

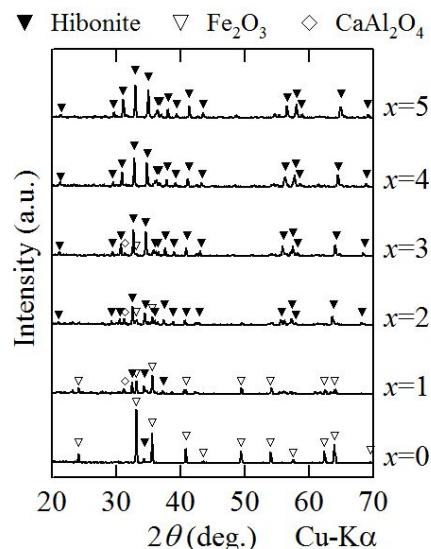


図 1 :  $\text{CaAl}_x\text{Fe}_{10-x}\text{O}_{19-\delta}$  の X 線回折図

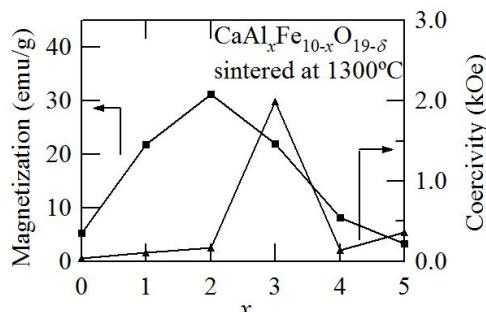


図 2 :  $\text{CaAl}_x\text{Fe}_{10-x}\text{O}_{19-\delta}$  の飽和磁化  
および保磁力の組成依存性

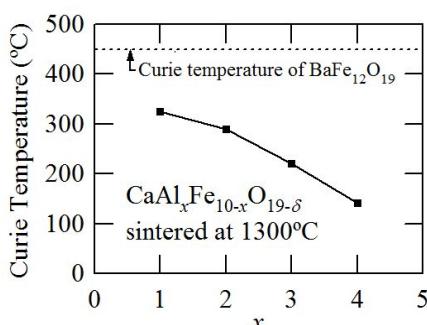


図 3 :  $\text{CaAl}_x\text{Fe}_{10-x}\text{O}_{19-\delta}$  の  
キュリー温度の組成依存性

## 電界による磁気秩序制御のための $\text{BiFe}_{1-x}\text{M}_x\text{O}_3$ ( $\text{M}=\text{Ga, Al}$ ) エピタキシャル薄膜

°五味 学、小寺大喜、京兼広和、熊谷卓哉、横田壮司  
(名古屋工業大学大学院 物質工学専攻)

$\text{BiFe}_{1-x}\text{M}_x\text{O}_3$  ( $\text{M}=\text{Ga, Al}$ ) epitaxial thin films for magnetic order control by electric field

°M. Gomi, D. Kodera, H. Kyoukane, T. Kumagai, and T. Yokota  
(Dept. of Mater. Sci. and Engng., Nagoya Inst. of Tech.)

### まえがき

最近、磁気熱量効果を利用した室温磁気冷凍技術が注目され、大きなエントロピー変化が期待できる1次磁気相転移を示す金属材料を中心に盛んに研究されているが、磁気冷凍には強力な磁界によるスイッチが必要となる。我々は、このような磁界を必要としない磁気冷凍法として電界による構造相転移に伴う磁気秩序制御の可能なマルチフェロイック材料の利用を考えている。本研究では、このような材料として、FeサイトをGaおよびAl置換した  $\text{BiFeO}_3$  エピタキシャル薄膜の結晶相とモルフォトロピック相境界(MPB)の存在について検討した。

### 実験

エピタキシャル薄膜は、 $\text{Bi}_{1.15}\text{Fe}_{1-x}\text{M}_x\text{O}_3$  ( $\text{M}=\text{Ga, Al}$ ,  $x=0 \sim 0.5$ ) ターゲットを用いた RF マグネットロンスパッタ法により、(001)  $\text{SrTiO}_3$  (STO) 基板上に、基板温度  $350 \sim 450^\circ\text{C}$ 、 $\text{Ar}/\text{O}_2=4/1$ 、1 Pa にて作製した。結晶構造は XRD、逆格子マッピングにより評価した。

### 結果

Fig.1 は、 $450^\circ\text{C}$ で成長させた  $\text{BiFe}_{1-x}\text{Ga}_x\text{O}_3$  膜の XRD 図である。 $x=0$  では BFO 菱面体晶相 R の[001]ピークが観察されるが、 $x$  の増加とともに  $39^\circ$ 付近に擬正方晶 T 相の[001]ピークが急速に成長する。 $x=0.2$  では、T 相のみがきれいに成長している。この相は、逆格子マッピングにより、厳密には c 軸が若干 a 軸方向に傾いた単斜晶(Mc)であることが明らかとなった。このような T 相は、従来、応  $\text{LaAlO}_3$  等の格子定数の小さな基板を用いて圧縮応力誘起で生成することが知られていたが<sup>1)</sup>、Ga 置換によりそのような制約はなくなった Fig.2 は Ga 置換に対する作製相図を示す。 $x=0.1$  付近に MPB を持ち、 $x=0.4$  以上では Ga 置換による構造不安定性のため異相の生成が始まる。

### 参考文献

- 1) R.J. Zeches, et al., Science, 326, 977 (2009).

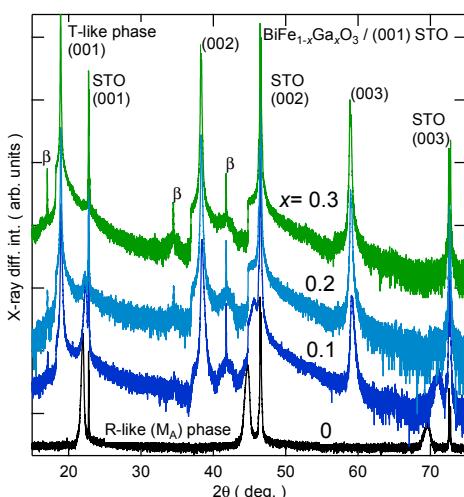


Fig. 1 XRD spectra of  $\text{BiFe}_{1-x}\text{Ga}_x\text{O}_3$  epitaxial thin films grown on (001)  $\text{SrTiO}_3$  at  $450^\circ\text{C}$ .

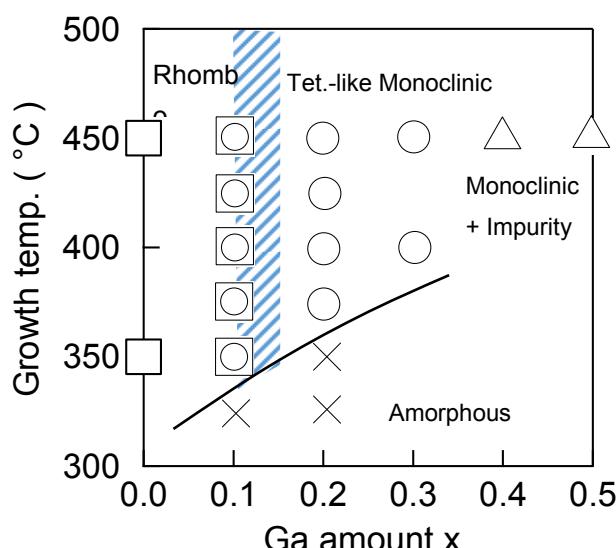


Fig. 2 Preparation phase diagram of  $\text{BiFe}_{1-x}\text{Ga}_x\text{O}_3$  epitaxial thin films grown on (001)  $\text{SrTiO}_3$

## 残留応力により生成された磁区のモンテカルロ法解析

寺島顕一、山口克彦、内一哲哉\*、高木敏行\*  
(福島大、\*東北大)

Analysis of magnetic domain by residual stress using Monte Carlo method

K. Terashima, K. Yamaguchi, T. Uchimoto\*, T. Takagi\*  
(Fukushima Univ. \*Tohoku Univ.)

### はじめに

本来、オーステナイト系ステンレス鋼は非磁性材料だが、経年劣化や歪みによって磁性を持つ。また、局所的な劣化を検出するために磁気的非破壊検査(NDE)の新規手法として、磁区観察顕微鏡とマイクロ磁気光学効果( $\mu$ -MOKE)磁力計を組み合わせた  $\mu$ -Kerr 顕微鏡が開発された。Fig. 1 (a)は鏡面研磨を施した SUS304 の磁区観察像であり、結晶粒毎の磁区が明確に確認できた。また、磁区毎にスポットを当て磁化測定を行うと、磁気特性に差が見られた。これは結晶粒毎に磁気異方性を持っている為と考えられる。本研究では、ブロック毎に異方性の向きが異なるクラスターに対してモンテカルロ(MC)シミュレーションを行い、磁区観察像と磁気異方性の関係について検証した。

### 手法

計算に用いた磁気クラスターは、 $40 \times 50 \times 5$  に配置されたスピニベクトルで構成され、 $10 \times 10 \times 5$  のブロックに分けられる。セルはそれぞれ異なる向きの磁気異方性を持っており、Fig. 1 (b)は各ブロックの一軸磁気異方性の向きを表している。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、第二項が一軸磁気異方性、第三項が印加磁場を与える。 $S_i$  は  $i$  番目のスピニベクトルであり、 $|S_i|=1$  とした。 $S_{easy}$  はブロック毎の容易軸方向の単位ベクトルを表し、交換相互作用は同一セルに配置されたスピニ間でのみ作用するものとした<sup>1)</sup>。

$$H = -J \sum_{near} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j - K \sum_i (\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_{easy})^2 + B \sum_i \mathbf{S}_i \quad (1)$$

### 結果

クラスターに対して面内方向に印加磁場を与えヒステリシスカーブの計算を行った結果、各ブロックの磁気特性が異なることが確認できた。また、減磁曲線のうち、磁場が 0.22 と -0.22 の時のスピニ状態を確認すると、各スピニはセル毎に異なる向きをとっていた。これらの結果は各ブロックのもつ磁気異方性に起因したものである。Fig. 1 (c)には前述した 2 つのスピニ状態の差をとったものを示した。セル毎に陰影が表れるることは、磁区観察による結果と一致している。以上のことから、本シミュレーションで用いたモデルは妥当であり、磁区観察像における陰影は、結晶粒毎に方向が異なる磁気異方性に起因するものであるといえる。

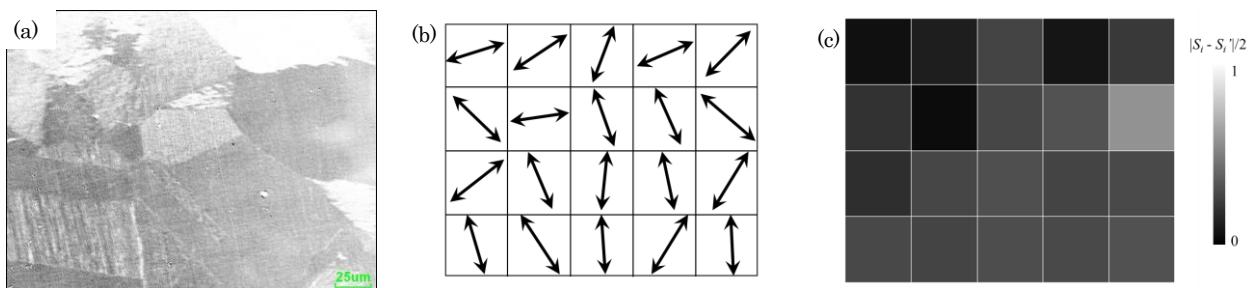


Fig.1 (a) Magnetic domain observation of SUS304. (b) The easy axis of magnetization for each block. (c) Differential image of  $|S_i - S_i'|$  between  $B=0.22$  and  $B=-0.22$ . The white colour represents that  $|S_i - S_i'|/2 = 1$  and the black colour is  $|S_i - S_i'|/2 = 0$ .

### 参考文献

- 1) K. Yamaguchi, K. Suzuki, O. Nittono, T. Uchimoto, T. Takagi, *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 47, 2011, pp. 1118-1121.

## L<sub>1</sub><sub>0</sub>-FePt, CoPt 合金の磁気異方性に与えるスピン揺らぎの影響

小林尚史, 兵頭一茂, 佐久間昭正  
(東北大)

First principles study for the effect of spin fluctuation on the crystalline magnetic anisotropy in L<sub>1</sub><sub>0</sub>-type ordered alloys

N. Kobayashi, K. Hyodo, and A. Sakuma  
(Tohoku Univ.)

### はじめに

$K_u$  の温度依存性の一つの起源として, 強磁性体中のスピンの熱揺らぎが挙げられる. 絶対零度において磁化容易軸方向を向いている各サイトの磁気モーメントは, 温度が上昇するとそれぞれ異なる方向を向くようになり, 結果として平均の磁気モーメントが小さくなる. このようにスピンの熱揺らぎは磁気モーメントの減少として観測される. そこで本研究では  $K_u$  の温度依存性の起源とされているスピン揺らぎの大きさを変化させた場合の,  $K_u$  の値を理論的に調べることで,  $K_u$  の温度依存性に関する理解を得ることを目的とした.

計算対象は, 磁気異方性定数  $K_u$  が高い FePt, CoPt とした. これらの合金は L<sub>1</sub><sub>0</sub> 構造と呼ばれる Fe(Co) と Pt が交互に層状に重なった結晶構造を有している.

本研究では熱揺らぎによって磁気モーメントが取り得る方向を, 2 つの方向に限った上で, スピン揺らぎを  $(\text{Fe}\uparrow)_{1-X}(\text{Fe}\downarrow)_X\text{Pt}$  (スピン↑, ↓ 状態の原子比率  $X$ ) のようにスピン状態の不規則性として表現した.

計算は第一原理バンド計算手法の強結合線形マフィンティン軌道 (TB-LMTO) 法<sup>1)</sup> を用いて行った. また, 2 方向の鉄原子スピンの不規則性の計算には, コヒーレントポテンシャル近似 (CPA) を用いた.

### 結果および考察

Fig.1(a), (b) はそれぞれ FePt, CoPt における  $M$  の  $X$  依存性,  $K_u$  の  $X$  依存性のグラフである. Fig.1 から FePt, CoPt いずれの場合もスピン揺らぎ  $X$  の増大とともに  $K_u$  が単調減少する傾向を示しており, 磁気異方性がスピンの空間的ゆらぎと密接に関係していることが理解される. このことは, 温度上昇に伴う結晶磁気異方性定数の低下がスピン揺らぎに基づくものであることを示唆している.

また, 双方の材料について  $K_u$  が  $M_s$  の  $\alpha$  乗に比例すると仮定し, 二つのグラフからフィッティングによって  $\alpha$  を求めたところ, FePt では  $\alpha \approx 2.2$ , CoPt では  $\alpha \approx 1.9$  という結果が得られた. FePt に関しては, 岡本ら<sup>2)</sup> による実験で, 磁気異方性定数は磁気モーメントの 2.1 乗に比例するという結果が得られており, 本研究の計算結果が, 実験の傾向をよく再現していることが判明した. この結果は, Callen-Callen<sup>3)</sup> による現象論において磁気異方性定数は磁気モーメントの 3 乗に比例するという結果になっていることと比較して, 非常によい精度であることが分かる.

### References

- 1) I. Turek, V. Drchal, J. Kudrnovský, M. Söb, and P. Weinberger, *Electronic Structure Of Disordered Alloys, Surface and Interfaces*, Kluwer, Boston, USA, (1997).
- 2) S. Okamoto, N. Kikuchi, O. Kitakami, T. Miyazaki, and Y. Shimada, Phys. Rev. B **66**, 024413 (2002).
- 3) H. B. Callen and E. Callen, J. Phys. Chem. Solids. **27**, 1271 (1966).

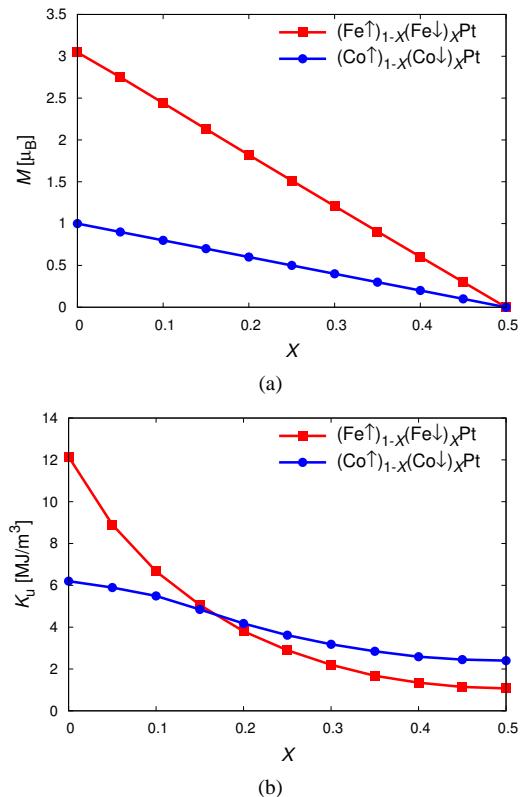


Fig. 1 Calculated magnetic moments (a) and anisotropy constants (b) of FePt and CoPt as a function of  $X$ .

# Nd-Fe-B 薄膜磁石垂直磁気異方性の基板温度依存

王 斯遠 馬闡 劉 小晰

信州大学

The Dependence of Crystal Orientation on deposition temperature of Nd-Fe-B thin films

Siyuan Wang Chuang Ma Xiaoxi Liu

Shinshu University

## 1. はじめに

情報化社会が進み、高容量の記録媒体の実現のために高記録密度の記録媒体が要求される。高記録密度の実現のため垂直磁気異方性でなければならないため、本研究では、Nd-Fe-Bに着目し、垂直磁気異方性の基板温度依存を研究テーマとし、試料の作製及び特性評価を行った。

## 2. 実験方法

対向ターゲット式スパッタリング装置(FTS : Facing Targets Sputtering)とDC マグネトロンスパッタリング装置を用いて、薄膜を作製した。スパッタ時の真空到達圧力は $1.8 \times 10^{-6}$ Torrとした。W/Nd-Fe-B/W/Tiの薄膜を熱酸化シリコン(SiO<sub>2</sub>/Si)基板上に作製した。薄膜形成後に真空熱処理装置を用いて、20分で650°Cまで加熱し、5分間真空熱処理後自然冷却させた。その時の真空到達圧力は $9.0 \times 10^{-7}$  Torrとした。真空熱処理を施した試料を振動試料型磁力計(以下VSM : Vibrating Sample Magnetometer)で初期磁化曲線およびヒステリシスループによる磁気特性を測定した。その時の最大印加磁場は24kOeとした。

## 3. 実験結果

Fig.1 (a)から(d)までは基板加熱をそれぞれ100°C、200°C、300°C、400°Cで、W/Nd-Fe-B/W/Ti 四層膜を20nm/50nm/20nm/5nm 作製し、真空熱処理を施した試料のヒステリシスループを示す。この4枚の試料を比較すると、磁性層を300°Cと400°Cで製膜した試料から、Nd-Fe-Bの垂直磁気異方性が温度に依存していることが分かった。

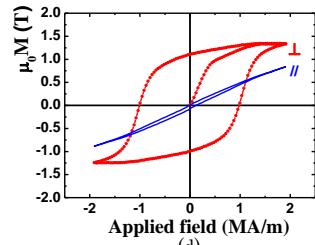
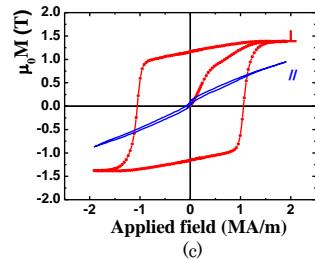
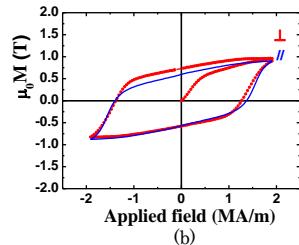
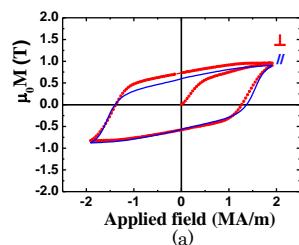


Fig.1 磁性層成膜温度で(a)は 100°C、(b)は 200°C、(c)は 300°C、(d)は 400°C

# Tb<sub>23</sub>Co<sub>77</sub> 垂直磁化膜のミクロスコピックな磁化過程の観察

安居院あかね、櫻井浩<sup>1</sup>、鈴木宏輔<sup>1</sup>、田久保翔太<sup>1</sup>、劉小晰<sup>2</sup>

(原子力機構、群馬大院理工<sup>1</sup>、信州大院工<sup>2</sup>)

Microscopic magnetization curves of Tb<sub>23</sub>Co<sub>77</sub> film

Akane Agui, Hiroshi Sakurai<sup>1</sup>, Kousuke Suzuki<sup>1</sup>, Syouta Takubo<sup>1</sup>, Xiaoxi Liu<sup>2</sup>

(JAEA, Gumma univ.<sup>1</sup>, Sinsyu univ<sup>2</sup>)

## はじめに

我々はこれまでに、高輝度放射光を持つ板磁気コンプトン散乱の印加磁場依存性からスピニ選択磁化測定を提案している全磁化測定と組み合わせることで、全磁化曲線をスピニ成分の磁化曲線(SSMH)、軌道成分の磁化曲線(OSMH)に分ける手法、さらにモデルフィッティングを利用して、スピニ成分を構成元素別にした磁化曲線(ESMH)を得る手法を確立している<sup>1,2)</sup>。本研究は Tb<sub>23</sub>Co<sub>77</sub> 膜についてこれらミクロスコピックな磁化曲線を測定したので報告する。

## 測定方法

磁気コンプトン散乱測定は大型放射光施設 SPring-8・BL08W で行った。RF スパッタリング法でアルミ箔の上に Ti (30nm)/Tb<sub>23</sub>Co<sub>77</sub> (200nm) を 10 層、成膜したものを Tb<sub>23</sub>Co<sub>77</sub> 膜試料とした。全磁化曲線は SQUID で測定した。測定はともに、室温で行い、印加磁場は膜面に垂直に印加した。

## 測定結果

図 1 に Tb<sub>23</sub>Co<sub>77</sub> 膜の磁化曲線を示す。太線、◆、◇はそれぞれ全磁化曲線、SSMH、OSMH である。スピニ成分と軌道成分の比を図 2 に示す。全磁化、スピニ成分、軌道成分の保持力は一致していることが分かる。全磁化に対し、スピニ成分は同じ向き、軌道成分は反対向きである。スピニ成分と軌道成分はフェリ的な関係にある。図 2 にスピニ成分と軌道成分の比を示す。スピニ成分と軌道成分の向きが逆なため、比の値はマイナスになっている。スピニ成分も軌道成分も明瞭なヒステリシスを示しているが、磁化反転に関わらず比の値はほぼ一定である。また値の絶対値は 1 より大きく、全磁化の発現は全磁場領域でスピニ成分が支配的であることが分かる。

これまで我々は組成比の異なる垂直磁化膜についてミクロスコピックな磁化曲線について報告してきた<sup>3)</sup>。それではスピニと軌道の成分の比は、磁化反転前後で異なり複雑な変化を示した。これらの結果と比較すると保持力が大きいとき、SSMH と OSMH は安定した磁化反転を示し、保持力が小さいと互に拮抗し複雑な挙動を示すようになると考えている。

## 参考文献

1) A. Agui et. al., Appl. Phys. Express, 4 (2011) 083002.

2) A. Agui et. al., J. Appl. Phys. 114 (2013) 183904.

3) S. Tabubo et. al, 磁気学会(2015).

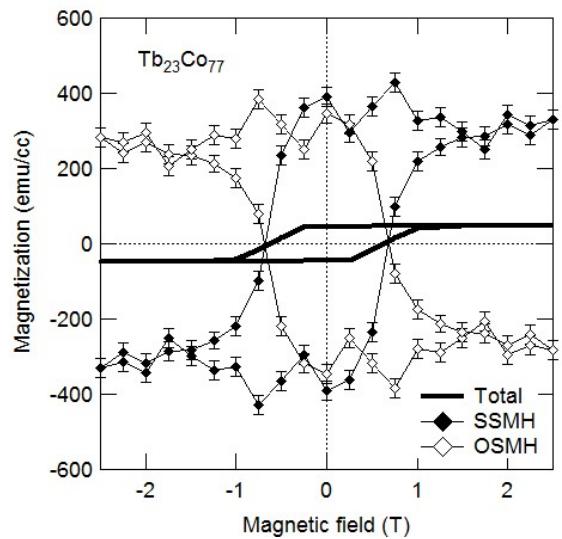


図 1: Tb<sub>23</sub>Co<sub>77</sub> 膜の磁化曲線。太線: 全磁化。  
●: スピニ成分。○: 軌道成分。

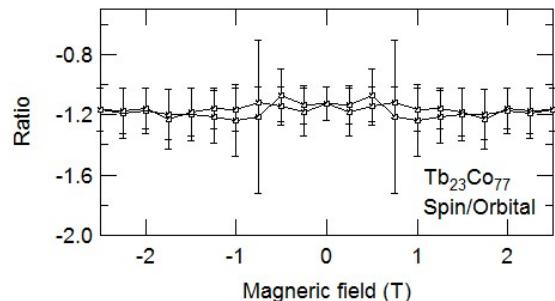


図 2: スピニ成分と軌道成分の比。

## 基板による応力の $\text{Nd}_{0.5}\text{Bi}_{2.5}\text{Fe}_4\text{GaO}_{12}$ 薄膜の磁気異方性への影響

箸中 貴大, 佐々木 敦真, 石橋 隆幸 (長岡技科大)

谷山 智康 (東工大)

The effect of strain induced by substrates on magnetic anisotropy in  $\text{Nd}_{0.5}\text{Bi}_{2.5}\text{Fe}_4\text{GaO}_{12}$  thin films

T. Hashinaka, M. Sasaki, T. Ishibashi (Nagaoka Univ. of Tech.)

T. Taniyama (Tokyo Inst. of Tech.)

**1. はじめに** これまでに我々は、有機金属分解(MOD)法を用いて作製した磁気光学特性に優れた  $\text{Nd}_{0.5}\text{Bi}_{2.5}\text{Fe}_4\text{GaO}_{12}$  (Bi2.5-NIGG) の磁気異方性について報告した[1]。今回は、Bi2.5-NIGG 薄膜と基板との格子不整合や熱膨張係数差に起因する薄膜中の残留応力が磁気異方性に及ぼす影響について調べた結果について報告する。

**2. 実験方法**  $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$  (GGG) (100) 基板上に、MOD 法により Bi2.5:NIGG 薄膜を作製した。用いた MOD 溶液は、高純度化学研究所製  $\text{Nd}_{0.5}\text{Bi}_{2.5}\text{Fe}_4\text{GaO}_{12}$  膜用溶液 NdBiFeGa-04(0.5/2.5/4/1)である。薄膜は MOD 溶液の塗布(3000 rpm、60 秒)、乾燥(100°C、10 分)、仮焼成(450°C、10 分)を 5 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。そして、同じ工程をもう一度繰り返し、厚さを 0.4 μm とした。また、残留応力の影響を調べるために、GGG 基板を研磨により厚さを 0.1 mm まで薄くした試料についても評価を行った。

**3. 結果及び考察** Fig. 1 に Bi2.5-NIGG 薄膜の XRD 測定結果を示す。800 回折線の位置および逆格子マッピング測定の結果から Bi2.5-NIGG 薄膜と GGG 基板との格子不整合による歪みは緩和していることがわかった。一方、熱膨張係数の差による引っ張り応力が生じていることがわかった。Fig. 2 に波長 524 nm における Bi2.5:NIGG 薄膜のファラデーヒステリシスを示す。結晶磁気異方性における磁化容易軸は <111> であるが、薄膜中の残留応力により(100)基板上でも垂直磁気異方性が得られた。一方、基板を 0.1 mm まで研磨した試料では、回折ピークが基板、薄膜とともに低角側にシフトし、薄膜中の応力が低減していることが予想される。さらにヒステリシスに見られる保磁力の減少も、残留応力の減少を示唆している。

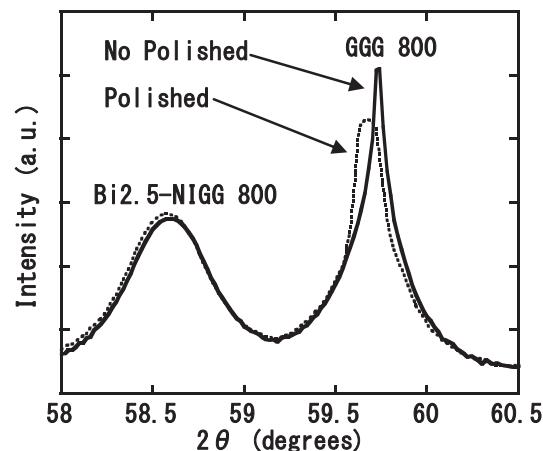


Fig. 1 X-ray diffraction patterns of the Bi2.5-NIGG film on GGG (100)

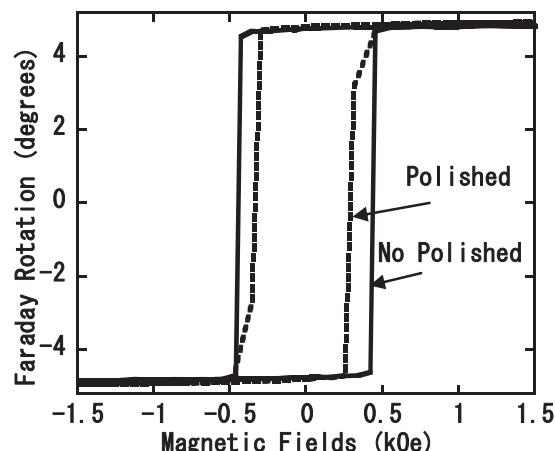


Fig. 2 Faraday hysteresis loops of the Bi2.5-NIGG film on GGG (100)

**謝辞** 試料を研磨して頂いた㈱山口製作所に感謝いたします。この研究の一部は、東工大応セラ研共同利用研究および(独)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] M. Sasaki, G. Lou, T. Ishibashi, T. Kato and S. Iwata, IEICE Technical Report, Vol. 114, No. 505, MAG-15-36 (2015)

## 層状化合物強磁性体 $ACo_2X_2$ の磁気異方性

今井正樹, 菅野誉, 道岡千城, 楊金虎\*, 陳斌\*, 植田浩明, 吉村一良  
(京大院理, \*杭州師範大物理)

Magnetic anisotropy in ferromagnetic layered compounds  $ACo_2X_2$

M. Imai, T. Kanno, C. Michioka, J. Yang\*, B. Chen\*, H. Ueda, and K. Yoshimura  
(Kyoto Univ., \*Hangzhou Normal Univ.)

### はじめに

$ThCr_2Si_2$ 型構造の  $3d$  遷移金属化合物は鉄系超伝導体の発見<sup>1)</sup>以来精力的に研究が行われている。Fig. 1 に示すように、これらの層状化合物は  $T=$ 遷移金属イオンに  $X=$  ニクトゲン、カルコゲンが四面体配位し、それらが稜共有して  $T_2X_2$  摘二次元面を形成し、 $A$  層と交互に積層している。 $T=Fe, Ni$  では超伝導が発現する一方で、 $Co$  では面内に強磁性相互作用がはたらき磁気秩序を示す。例えば、 $ACo_2Se_2$  ( $A=K, Rb, Cs$ ) はいずれも  $Co$  モーメントが  $ab$  面内で強磁性的にそろい、 $A=K, Rb$  では面間も強磁性的にそろう強磁性体であり、 $A=Cs$  では面間に反強磁性相互作用がはたらく反強磁性体である<sup>2)</sup>。さらに  $ACo_2P_2$  ( $A=$ アルカリ土類金属、希土類金属) でも面内に強磁性相互作用がはたらいており  $A=Ca$  では面内強磁性の A 型の反強磁性秩序を示し<sup>3)</sup>、 $A=Sr$  では基底状態では磁気秩序を示さないが、磁場の印加により強磁性体となる遍歴電子メタ磁性転移を示す<sup>4)</sup>。そして  $A=La$  では  $KCo_2Se_2$  と同様に強磁性磁気秩序を示す<sup>5), 6)</sup>。

今回我々はこれらの層状コバルト化合物の強磁性状態における磁気異方性について発表を行う。

### 実験方法

$ACo_2Se_2$  ( $A=K, Rb, Cs$ ),  $KCo_2(Se_{1-x}S_x)_2$ ,  $LaCo_2P_2$  の単結晶の育成を行い、得られた単結晶に  $a$  軸および  $c$  軸方向に磁場を印加し SQUID 磁束系による磁化測定を行った。

### 実験結果

いずれの単結晶試料でも強磁性転移温度以下では  $ab$  面を容易軸とする強い磁気異方性が見られた。 $LaCo_2P_2$  では磁気困難軸の  $c$  軸方向に磁場をかけた場合、温度 2 K の状態では飽和させるのに 50 kOe 磁場を必要とした。さらに  $ACo_2Se_2$  ( $A=K, Rb, Cs$ ),  $KCo_2(Se_{1-x}S_x)_2$  では異方性が強く、飽和させるにはさらに大きな磁場が必要である。これらの強磁性金属としては大きな磁気異方性は、層状の結晶構造や  $Co$  イオンのスピン-軌道相互作用に起因していると考えられる。

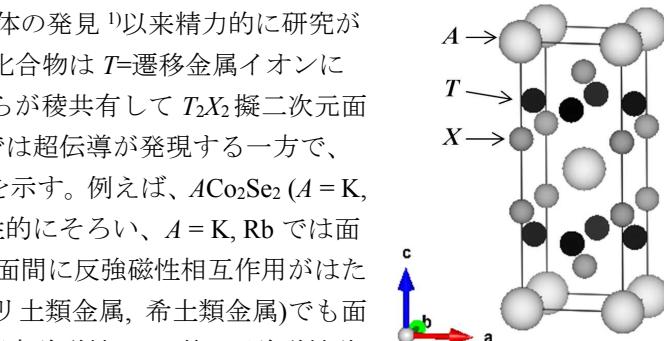


Fig. 1 The crystal structure of  $AT_2X_2$ .

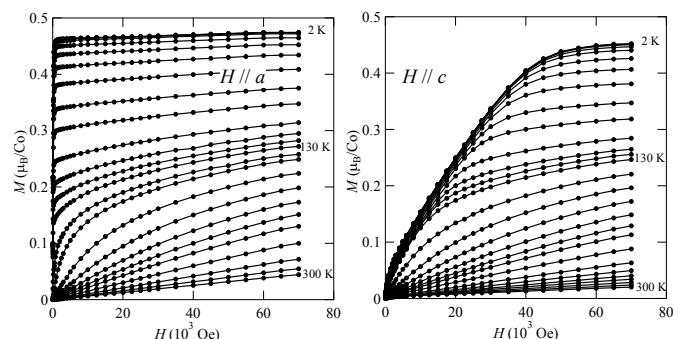


Fig. 2 Magnetization curves of  $LaCo_2P_2$ .

### 参考文献

- 1) M. Rotter, M. Tegel, D. Johrendt: *Phys. Rev. Lett.* **101**, 107006 (2008).
- 2) J. Yang, B. Chen, H. Wang, Q. Mao, M. Imai, K. Kazuyoshi, and M. Fang: *Phys. Rev. B*, **88**, 064406 (2013).
- 3) M. Reehuis, W. Jeitschko, G. Kotzyba, B. Zimmer, and X. Hu: *J. Alloys Compd.* **266**, 54 (1998).
- 4) M. Imai, C. Michioka, H. Ohta, A. Matsuo, K. Kindo, H. Ueda, and K. Yoshimura: *Phys. Rev. B*, **90**, 014407 (2014).
- 5) M. Reehuis, C. Ritter, R. Ballou, and W. Jeitschko: *J. Magn. Magn. Mater.* **138**, 85 (1994).
- 6) M. Imai, C. Michioka, H. Ueda, and K. Yoshimura: *Phys. Rev. B*, **91**, 184414 (2015).

# 非線形共役勾配法を用いた永久磁石の マイクロマグネティクスシミュレーションの高速化

田中智大、古屋篤史、上原裕二、清水香壱、藤崎淳、安宅正、大島弘敬\*、  
Norbert Požár\*\*、小俣正朗\*\*

(富士通株式会社、\*株式会社富士通研究所、\*\*金沢大学)

## The Nonlinear Conjugate Gradient Method: An Energy Minimization Algorithm for the Speedup of Micromagnetic Simulation of the Permanent Magnets

T. Tanaka, A. Furuya, Y. Uehara, K. Shimizu, J. Fujisaki, T. Ataka, H. Oshima\*, N. Požár\*\*, S. Omata\*\*  
(Fujitsu Limited, \*Fujitsu Laboratories Limited, \*\*Kanazawa Univ.)

### はじめに

マイクロマグネティクスシミュレーションでは LLG 方程式を時間発展に従って解く手法（以下、陽解法と呼ぶ）が一般的であるが、エネルギー最小化手法の一つである最急降下法を用いて高速に磁化反転過程を計算する手法が報告されている[1]。今回我々は、最急降下法より効率的なエネルギー最小化手法とされている非線形共役勾配法を用いて陽解法との計算速度及び計算精度の比較を行った。発表では永久磁石の磁化反転過程のシミュレーションを例に、非線形共役勾配法と陽解法それぞれにおける計算速度と計算精度についての比較を報告する。

### 計算方法

系の全エネルギーは異方性エネルギー、静磁界エネルギー、交換結合エネルギー、ゼーマンエネルギーからなる。非線形共役勾配法では、各ステップにおいて有効磁界による各磁化の勾配方向  $\mathbf{g}^{\text{now}}$  に、以下の式で表される補正を加えて探索方向  $\mathbf{d}^{\text{now}}$  を得る。

$$\mathbf{d}^{\text{now}} = \mathbf{P}(-\mathbf{g}^{\text{now}} + \beta \mathbf{d}^{\text{old}})$$

ここで  $\beta$  は前のステップでの勾配方向等により決まるパラメータ、 $\mathbf{d}^{\text{old}}$  は前のステップで使用した探索方向、 $\mathbf{P}$  は磁化ベクトルの法線方向への射影演算子である。 $\mathbf{d}^{\text{now}}$  に沿って磁化を動かしてエネルギーの最小化を繰り返すことにより、補正がない場合に比べて少ない反復回数での収束が可能になる。本計算では、外部磁界を変化させ、各外部磁界ごとにエネルギー最小化を行い定常状態を求めて磁化反転過程を計算した。計算に使用したモデルは一辺 34nm の Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B の多結晶構造であり、メッシュサイズは 1nm<sup>3</sup> である (Fig.1)。青色の部分は Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 結晶粒であり、黄色の部分は粒界層である。粒界層は軟磁性とした。

### 結果

Table 1 に非線形共役勾配法と陽解法での計算結果の比較を示す。保磁力は両手法で同じ値が得られている。さらに、非線形共役勾配法を使用した場合は陽解法に比べて高速になることがわかる（約 24 倍）。以上のことからマイクロマグネティクスシミュレーションにおいて非線形共役勾配法の優位性が確認された。

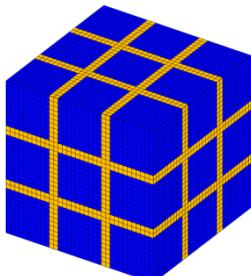


Fig.1: The structure of multi-grain permanent magnets.

Method	Coercivity [A/m]	#Evaluations	CPU-time [sec]
LLG	$4.11 \times 10^6$	148344	40699
Present	$4.11 \times 10^6$	3375	1647

Table 1: The comparisons between solving the LLG equation explicitly and the present nonlinear conjugate gradient method are shown. #Evaluation represents the number of evaluations of the magnetostatic potential.

### 参考文献

- 1) Exl, Lukas, et al. *Journal of Applied Physics* 115.17 (2014): 17D118.

# LLG 方程式を用いた磁化反転時間と磁化反転確率の計算

秋田谷尚紀, 村岡裕明, Simon Greaves

東北大学電気通信研究所

Calculation of Magnetization Reversal Times and Probabilities Using the LLG Equation

Naoki Akitaya, Hiroaki Muraoka, Simon Greaves

RIEC, Tohoku University

## まえがき

ハードディスクドライブ(HDD)の大容量化に伴い, 転送レートの向上も求められている。すでに HDD の転送レートは 1Gbps を超えており, これ以上の向上には記録磁化の反転時間を検討しておく必要がある。磁化反転時間はダンピング定数に大きく依存するが, HDD の記録媒体のダンピング定数は 0.01 から 0.05 と小さいため, 反転が整定するのに時間がかかり, 歳差運動も激しい。そこで, ダンピング定数の磁化反転時間依存性についてマイクロマグネティックシミュレーションにより調べる。

## 計算方法

ここでは LLG 方程式によるシミュレーション[1]を行った。最初に直方体の粒子をモデリングし, ダンピング定数を変化させて磁化反転時間を計算した。ダンピング定数は 0.01 から 0.1 まで変化させた。主な計算条件を表 1 に示す。次に, 同じモデルで初期状態が上向きの磁化に短時間だけ下向きの磁界パルスを印加し, 印加が終了してから上下どちらに収束するかを調べて, 磁界パルスを印加したときの反転確率についてシミュレーションを行った。

## 結果と考察

Fig.1 にダンピング定数の大きさによる反転時間への影響を示す。ダンピング定数が小さくなると反転時間が長くなつた。特に, HDD で使われている記録媒体のダンピング定数である 0.01 から 0.05 までの反転時間の増加が著しく, 0.01 のときには約 500 ps と非常に長くなつた。

Fig.2 にダンピング定数が 0.01 のときの磁界パルスによる反転確率を示す。横軸が印加した時間, 縦軸が反転確率となっている。Fig.1 からダンピング定数が 0.01 のときの反転時間は約 500 ps となっているが, Fig.2 では 300 ps 以下の領域でも粒子が反転している。これは, 印加磁界に角度があることから容易軸方向にも振動しながら歳差運動しているため, 磁化が下向きを向いているときに印加磁界がなくなるとそのまま下向きに収束し, 短時間の磁界パルスでも反転できたと考えられる。

以上より, 斜めに磁界パルスを印加することでダンピング定数が小さい媒体でも反転時間を短くすることができると考えられる。

## 参考文献

- 1) S.Greaves, "Micromagnetic Simulations of Magnetic Recording Media", High Performance Computing on Vector Systems 2007, pp.229-244(2008)

Table.1 Calculation Conditions

モデル	7 nm × 7 nm × 10 nm
異方性磁界定数	5.0 × 10 <sup>6</sup> erg/cm <sup>3</sup>
飽和磁化	500 emu/cm <sup>3</sup>
印加磁界	20 kOe
印加磁界の角度	30 degree
温度	4.2 K

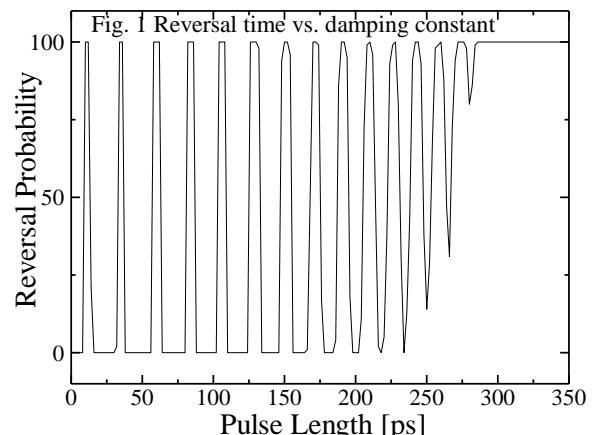
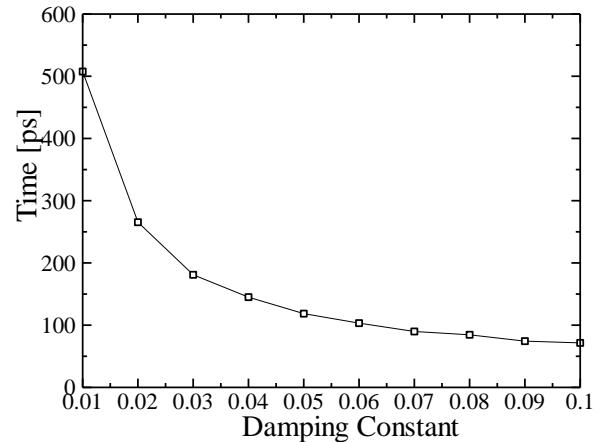


Fig. 2 Reversal probability vs. pulse length

## ナノ Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> 粒のヒステリシス損シミュレーションと ハイパーサーミアへの適用性

小畠修二、米田守重\*  
(電機大理工, \*日本電子専門)

Hysteresis loss simulations of Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> nanoparticles and adaptability for hyperthermia  
S. Obata and M. Yoneda  
(Tokyo Denki University, \*Japan Electronic College)

### はじめに

近年、ナノ磁性体の磁化特性の研究が飛躍的に進み、多くの実験結果が示されている。ナノ磁性は形状依存性を持ち、バルク磁性とは異なる様々な特徴を有することが明らかにされた。磁性アルブミンなども製造され、ナノ磁性体の人体への挿入が可能と成って、ヒステリシス損による癌の温熱療法が盛んに検討されている。しかしながら、こうしたヒステリシス損を求める計算理論は長らく存在せず、理論的な裏付けは皆無であった。本発表では、磁気双極子モーメント相互作用に基づき<sup>1)</sup>、ナノ磁性体のヒステリシス特性のシミュレーションを行い、ナノ Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> ヒステリシス損による癌の温熱療法の適用性を理論的に検討する。

### 計算理論

一般的スピン系の相互作用エネルギーは演算子@と磁気双極子モーメント  $\mu$  を用いて

$$\hat{H} = \sum_{i>j} (J_{ij} \mu_i @ \mu_j + W_{ij}) - (\sum_i \mu_i) \cdot \mathbf{H} \quad \cdots \quad (1)$$

と表され、磁気双極子モーメント間相互作用エネルギー  $W_{ij}$  は2点間の位置ベクトルを  $d_{ij} \mathbf{e}_{ij}$  として

$$W_{ij} = \frac{1}{4\pi\mu_0 d_{ij}^3} \{(\mu_i \cdot \mu_j) - 3(\mu_i \cdot \mathbf{e}_{ij})(\mu_j \cdot \mathbf{e}_{ij})\} \quad \cdots \quad (2)$$

と表される。演算子@にはハイゼンベルグモデル、イジングモデル、X-Y モデルなど様々な演算形式が有るが、本研究では古典スピン系とする。 $J_{ij}$  は分子結合に於ける電子の静電場のエネルギーで形成され、量子化した分子軌道の電場エネルギーから固有状態として定まる。その為、スピン結合のエネルギーを与えるが磁場に対するヒステリシス特性は持たない。 $W_{ij}$  と  $\mu_i \mathbf{H}$  は磁場のエネルギーで、 $W_{ij}$  は古典磁気双極子によるエネルギーを表す。ヒステリシス損は外部磁場と磁気モーメント磁場の為すエネルギーとして磁性体により消費され、熱エネルギーに変換される。この様に磁性に直接関わるエネルギーは  $W_{ij}$  となり、ヒステリシスは  $W_{ij} - \mu_i \mathbf{H}$  で決定される。従って、ヒステリシス特性だけを論ずるならば  $W_{ij} - \mu_i \mathbf{H}$  だけで良く、ヒステリシス損はこの項だけで求まる。エネルギー消費はこのシミュレーションのヒステリシス損から求める。

### 計算方法

計算は外場  $\mathbf{H}$  の変化ごとに全空間の  $W_{ij}$  について  $\mu_i$  のモーメント方位を変え、最小状態を選択する。全スピンについてエネルギー計算を繰り返し行い、変化が無くなるまで繰り返し、基底状態を求める。系全体のエネルギーを決定する。 $J_{ij}$  による磁化はキューリー温度  $T_C$  に関わるがヒステリシス特性には大きく関わらないので Fig.1 では省いた。

1) Shuji Obata: Materials Transactions, 55 (2014) 1591-8.

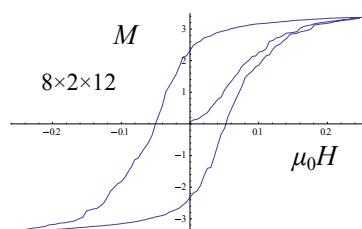


Fig.1 M-H curve of nano-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>

# ハイパーサーミアの為のナノ $\text{Fe}_3\text{O}_4$ のヒステリシス計算法

米田守重、小畠修二\*

(日本電子専門学校、\*電機大理工)

Hysteresis calculation method in nano  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  for hyperthermia

M.Yoneda, S.Obata

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

## はじめに

最近、癌治療の手法として、癌細胞に磁性体を Implant して、交流磁場中の印加による誘導加熱で熱死させる磁性ハイパーサーミアに関する研究が注目されている。本講演では、誘導加熱過程について、使用する磁性ナノ粒子として、フェリ磁性体である  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  (マグネタイト) を想定した磁気ヒステリシス損の計算手法を理論的に検討し、その計算機シミュレーション結果について報告する。

## シミュレーション手法と結果

$\text{Fe}_3\text{O}_4$  ナノ粒子は粒子合成が簡便で、粒子径の制御が容易であること、高い生体適合性を有していること等から、磁性ハイパーサーミア用 Implant 磁性体として用いられている。粒子径が約 20 nm 程度で超常磁性になることが知られ、交流磁場中で磁気モーメントの緩和遅れが生じることで、磁気ヒステリシス損が生じ、磁気エネルギーが熱に変換されると考えられている。磁気モーメントの緩和機構としては、Brown 緩和機構と Néel 緩和機構の二種類が存在することが知られている。我々は、独自に開発したシミュレーションの手法である Retarded Trace method<sup>1,2)</sup>を用い、 $\text{Fe}_3\text{O}_4$  ナノ粒子に交流磁場を印加した場合の磁化のシミュレーションを行った。以下の図 1 と図 2 は、温度が  $T=300[\text{K}]$  で、印加磁場の周波数がそれぞれ  $2[\text{kH}]$  と  $10[\text{kH}]$  の場合に結果を示している。

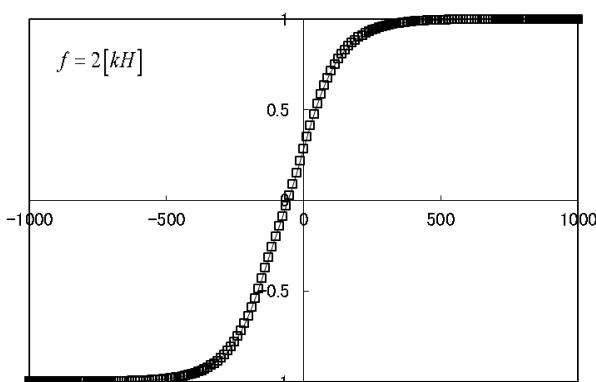


図 1

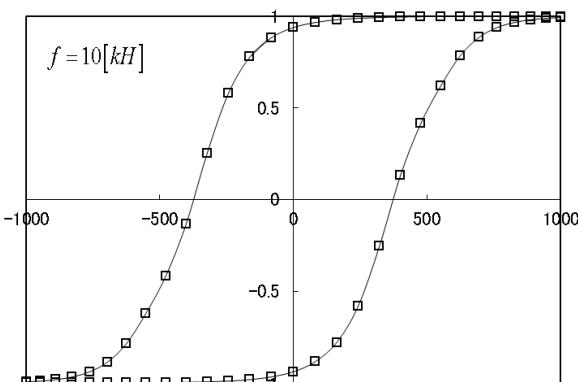


図 2

本講演でこのモデルをシミュレーションの手法として、一般化された Retarded Trace method を用い、温度、周波数、緩和時間等の各種条件及び、様々なナノ粒子内部とナノ粒子間の相互作用の各種パラメータによる磁化過程のシミュレーション結果について報告する予定である。

## 参考文献

- 1) S. Obata. Journal of the Magnetics Society of Japan 36(3), 161-168, 2012
- 2) S. Obata. IEEJ Transactions on Fundamentals and Materials, Vol.131(2011)No.10 P 838-845

# マイクロマグネティック計算に依拠した渦電流発熱計算

吉田 和悦、赤城 文子  
(工学院大学)

Calculation method of eddy-current heat embedded in micromagnetic simulator  
K. Yoshida, F. Akagi  
(Kogakuin Univ.)

## はじめに

導電性強磁性体の磁化変化に伴い生じる渦電流はその磁化過程に影響を与えることが知られている。一方近年、電気自動車の分野ではロータ部に用いられる永久磁石内部に生じる渦電流による発熱量を評価することが一つの課題となっている。本発表では、先に開発したマイクロマグネティックシミュレータに渦電流を導入し、そこから生じる熱量と昇温過程を計算することを試みた。

## 計算方法

磁束密度の時間変化により生じる電場  $\vec{E}_1$  をビオサバールの式を変形した式(1)から求める。この解では対象領域の表面で電場が法線成分をもつため、表面に  $\frac{2}{\epsilon_0} \cdot \frac{\partial E_1}{\partial n}$  の量をもつ電荷を分布させたときに生じる電場  $\vec{E}_2$  を計算し、 $\vec{E} = \vec{E}_1 + \vec{E}_2$  をもって境界条件を満たす電場とした<sup>1)</sup>。渦電流  $\vec{J}$  は式(2)のオームの法則から求め、再度ビオサバールの式を用いて渦電流磁界を計算し、LLG 方程式の実効磁界に加えた。このとき発生するジュール熱  $q$  と昇温温度  $T_{rise}$  は式(3),(4)により計算できる。式中  $\sigma$  と  $C$  はそれぞれ導電率と比熱を表す。ビオサバールの式は差分法では重畳の理が成り立つので、高速フーリエ変換を適用して計算の高速化を図った。

## 計算結果

図 1 に導電性強磁性体を断熱環境中で 1 秒間高周波磁界に曝したときの上昇温度  $T_{rise}$  の周波数依存性を示す。図に示すように温度  $T_{rise}$  と周波数  $f$  との間には、破線で示した  $\log T_{rise} \propto 2 \times \log f$  の関係がおおむね成り立っているように見てとれる。この両者の関係を数値で比較したのが、表 1 である。表には、計算から求めた昇温温度  $T_{rise}$  と、 $f=5$  MHz における昇温温度を基準として温度が周波数の 2 乗に比例すると仮定したときの予想温度を  $T_{pros}$  を記した。表に示した  $T_{pros}$  と  $T_{rise}$  とのずれを示す、deviation (=1 -  $T_{rise}/T_{pros}$ ) は周波数が高くなるにつれて大きくなる。これは、高周波になるにつれ磁化が磁界変化についていけず、式(1)に示した磁束の時間微分値が減少するためである。このように本シミュレータでは微細領域における磁化の時間変化を忠実に反映して渦電流熱を計算することが可能であり、一般的に解析的な計算が困難な、磁壁移動による磁化過程にも適用することが可能である。

## 参考文献

- 1) Edward Della Torre and Jason G. Eicke, *IEEE Trans. Magn.* **33**, 1251(1997).

$$\vec{E}_1 = \frac{1}{4\pi} \int \frac{-\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \times \vec{r}}{|\vec{r}|^3} dv \quad (1)$$

$$\vec{J} = \sigma \vec{E} \quad (2)$$

$$q = \frac{1}{\sigma} |\vec{J}|^2 \quad (3)$$

$$q = CT_{rise} \quad (4)$$

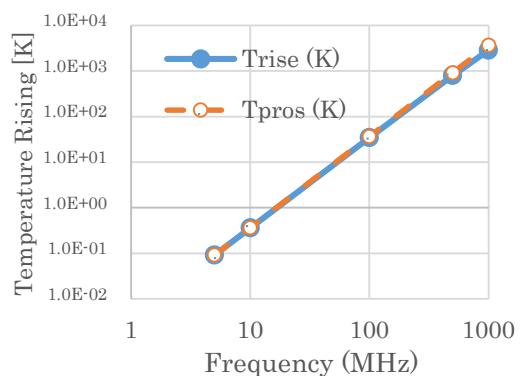


Fig.1 Relationships between temperature rising and frequency.  
Amplitude of field = 50 kA/m,  
Ku=5k J/m<sup>3</sup>, Ms= 1.0 T

Table 1 Deviation from the square of frequency.

Frequency [MHz]	Trise [K]	Tpros [K]	Deviation
5	0.09	0.09	0
10	0.36	0.37	0.02
100	34.3	36.5	0.062
500	878.8	913.3	0.137
1000	2833.0	3653.2	0.225

## 磁石内部の磁化反転過程における反磁場の効果

塚原宙、井波暢人、岩野薫、三俣千春<sup>1</sup>、小野寛太  
(高工ネ研, <sup>1</sup>物材機構)

Theoretical study of dipole field effects for reversal process within permanent magnet

H. Tsukahara, N. Inami,, K. Iwano, C. Mitsumata<sup>1</sup>, K. Ono  
(KEK, <sup>1</sup>NIMS)

### はじめに

高保磁力と大きな磁化を併せ持った永久磁石の開発には保磁力機構の詳細な解明が不可欠である。保磁力機構の解明には磁石内部も含めた磁化の情報が重要であり様々な研究がなされている。しかしながら Kerr 顕微鏡などの観測では磁石内部の磁化を直接観察する事は難しく、有限要素法を用いたマイクロマグネティクスシミュレーションにおいてもシミュレーションモデルの大きさの制限から磁石内部の磁化ダイナミクスを正確に計算する事は困難である。我々は周期境界条件を用いた有限差分法により磁石内部のマイクロマグネティクスシミュレーションを実行し、磁化反転の様子を磁気的エネルギーの変化も含め詳細に調べた。

### 計算手法

平均の厚みおよび結晶粒径が 32nm および 160nm の扁平粒子を  $z$  軸方向 (Fig. 1 (c) 参照) に積み重ね、ナノサイズの粒子からなる磁石のモデルを作成した。また各粒子毎に容易軸方向に揺らぎを与え、粒子内および粒子間で異なる交換スティフネス係数を設定し粒子内および粒子間交換相互作用を区別した。磁化ダイナミクスは Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式を周期境界条件下で解く事により求めた。また粒子の自己相互作用を防ぐために粒子の大きさに比べ非常に大きな周期系でシミュレーションを実行する必要があるため KEK のスーパーコンピュータを使用して計算した。シミュレーションでは Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B を想定し、飽和磁化 1281 emu/cm<sup>3</sup>、磁気異方性定数  $4.0 \times 10^7$  erg/cm<sup>3</sup> およびギルバートダンピング定数 1.0 を用いた。また交換スティフネス定数は粒子内および粒子間交換相互作用に対して  $7.7 \times 10^{-7}$  erg/cm および  $7.7 \times 10^{-9}$  erg/cm を用いた。容易軸は平均で  $z$  軸から 11.6 °傾いている。

### 結果

シミュレーション結果から計算された  $z$  軸方向の磁化  $m_z$  の平均値を Fig. 1 (a) に、着磁状態からの各エネルギーの変化を Fig. 1 (b) に外部磁場の関数として示す。外部磁場の大きさが小さくなると各粒子の磁化が容易軸方向に傾くため異方性エネルギーは減少するが、保磁力近傍では急激に値を増す。これに対し反磁場エネルギーは保磁力に近づくと徐々に値を下げ、保磁力で不連続に値を下げる。保磁力での磁化的状態を Fig. 1 (c) に示す。磁化は粒子内ではほぼ同じ向きを向いており  $m_z$  の符号が同じ粒子同士が領域を作り interaction domain が形成されている [1]。

### 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」の支援を受けて行われたものである。スーパーコンピュータシミュレーションは、高エネルギー加速器研究機構 (KEK) の大型シミュレーション研究 (課題番号 14/15-01) により行われた。

- [1] J. Thielsch, H. Stopfel, U. Wolff, V. Neu, T. G. Woodcock, K. Güth, L. Schultz, and O. Gutfleisch, J. Appl. Phys. **111** 103901 (2012).

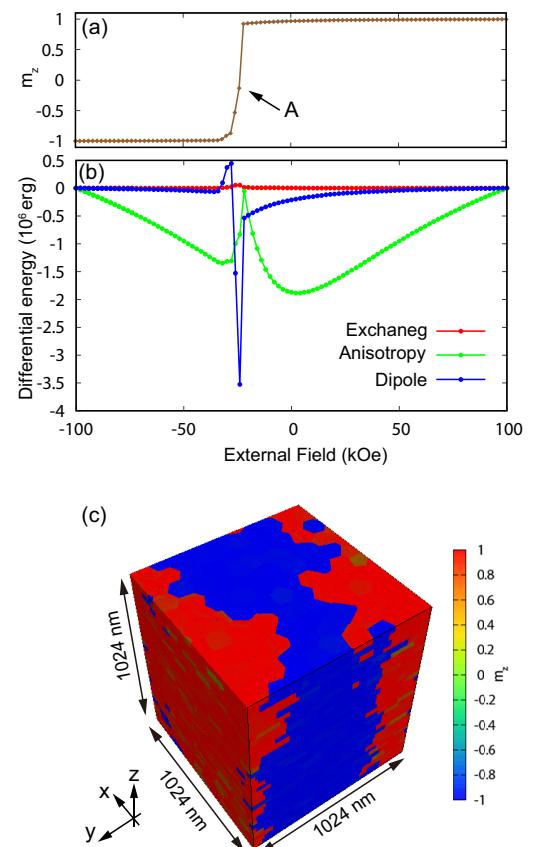


Fig 1: (a) The averaged  $m_z$  and (b) the differential energy as a function of the external field. (c) The magnetization at A which is located near the coercivity shown in (a).