

Variable magnetic field technology and permanent magnet characteristic by the request of electric traction motors

H. Nakai*

(Toyota Central R&D Labs., Inc.)

A traction electric motor of HV, PHV and EV is required high efficiency to reduce fuel consumption. While, to secure passengers space, the motor is also demanded downsizing. Since the motor is in the industrial products, low-cost is also required without doubt. The motor requests a several characteristic of a permanent magnet for fulfilling above 3 demands. In order to downsize the motor, firstly, we need a high magnetic flux density magnet (a strong magnet) and a magnet which is hard to demagnetize. The motor is often put in a small space for which it is easy to be filled with heat, for example, an engine compartment. The motor which uses a strong magnet can produce large torque, even though the motor is put in a small space. The motor is often cooled using by a transmission fluid to prevent temperature rise. Even if the motor is chilled using the fluid, the temperature is more than 100C. Therefore, the magnet which is hard to demagnetize in high temperature is desired in the motor. Almost traction motors use a Nd-Fe-B sintered permanent magnet in order to fulfil the demand of minimization and demagnetization. It is, however, a problem that the Nd-Fe-B magnet has high cost price. Reducing the cost of the Nd-Fe-B magnet is a 2nd request of the motor. In order to realize high efficiency which is a 3rd demand for the motor, we request high electrical resistance magnet and variable magnetic field magnet. Cyclical change of magnetic resistance caused by stator tooth make a magnetic flux change in a magnet placed in the motor. An eddy current occurred by the magnetic flux change makes loss in a magnet. High electrical resistance of a magnet avoids eddy current and reduces the loss. Reduction of the loss achieves increasing motor efficiency. Maximum torque of the motor determines a magnet force in many situations. However, the magnet force is often too strong to achieve high efficiency in high rotational speed and small load area. The efficiency in this area has great influence on fuel consumption of a vehicle. Therefore, variable magnetic field magnet is desired to improve efficiency. The strength of a Nd-Fe-B magnet is also fixed like other permanent magnets. The motor used in vehicle replaces a part of magnet torque with reluctance torque to carry out variable magnetic field. Reluctance torque is not, however, large enough to replace all magnet torque. So, last 10 years several studies which achieve variable magnetic field using not only reluctance torque but also new mechanisms have been done actively. As one kind of studies which achieve variable magnetic field, there is a motor which controls permanent magnetic force¹⁾. The advantage of this motor is that the structure is almost same with an ordinary IPM motor. The disadvantage is vibration occurred by pulse current which is used for controlling magnet force. Changing magnetic resistance method using mechanical way²⁾ is one of a variable magnetic field study. The advantage of this method is that the magnetic field can be accurately measured using a mechanical air-gap. The motor needs, however, a mechanical actuator. This actuator is a weak point. Other method controlling magnetic force has an electromagnet in addition to a permanent magnet. This method has ability changing magnetic force quickly because of an electromagnet. An electromagnet needs space bigger than a permanent magnet. Therefore, it is a problem to increase the size of the motor. There is a study solving this problem in order to achieve downsizing with high efficiency³⁾. The proposed motor in Fig. 1 constitutes a 3-DOF magnetic circuit with dust core. The circuit has one radial air-gap and two axial air-gaps to increase torque density. This motor settles an excited field coil of an electromagnet in the gap of a radial and an axial air-gap not to increase the size. Therefore, this motor can achieve variable magnetic field with downsizing. As mentioned as above, traction motor demands various performances to a magnet. A magnet that satisfies all performance has not yet been developed. Development of a higher-performance magnet will improve characteristic of the motor and realize restraint of the global warming.

References

- 1) K. Sakai et al., *IEEJ Transactions on Industry applications*, **Vol.131**, **No.1**, pp.53-60 (2011) (in Japanese).
- 2) H. Nakai et al., *JIASC2007*, **No.3-64**, pp.337-342 (2007) (in Japanese).
- 3) M. Namba et al., *IEEJ Transactions on Industry applications*, **Vol.135**, **No.11**, pp.1085-1090 (2015) (in Japanese).

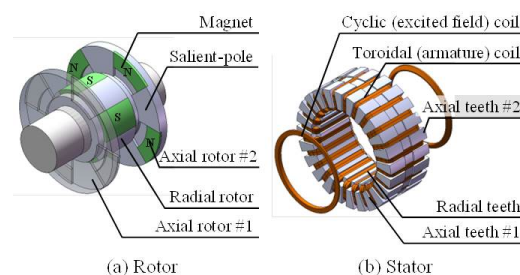


Fig. 1 3 air-gaps motor with excited field coils.

Development of Measurement Technique of Three-dimensional Demagnetization Distribution in Permanent Magnets for Motors

Y. Asano, S. Araki, A. Yamagiwa

(Technology Research Association of Magnetic Materials for High-Efficiency Motors (MagHEM))

It is important to estimate the demagnetization state in the magnets in Interior Permanent Magnet Synchronous Motors (IPMSMs), which are often used for consumer electronics and HEV traction motors. However, the distribution of demagnetization in permanent magnets for these motors is not uniform due to the difference of coercivity of local parts in the magnet material and the difference of the working point of local parts in the magnet caused by the variation of magnetic circuit in a motor. So, it was necessary to estimate the demagnetization distribution in the magnet by FEA, because there were not techniques to measure that. Therefore, we develop a method to evaluate the three-dimensional demagnetization state including the inside the magnet by cutting the magnet into the cubes, as shown in Fig. 1, and measuring the B-H characteristics of each magnet cube using Vibrating Sample Magnetometers (VSM), as shown in Fig. 2. At first we lock the motor rotation in high temperature environment, and an electric current is applied into a coil to hang opposing magnetic field. Next, magnets are taken out from the motor. Then, we cut the magnet into the cubes without demagnetizing anymore. Finally, we measure the B-H characteristics of each magnet cube shown as in Fig. 3 and , formula[1] and calculate demagnetizing ratio distribution.

$$\text{Demagnetizing ratio}[\%] = (B_1 - B_2) / B_1 \times 100 \quad [1]$$

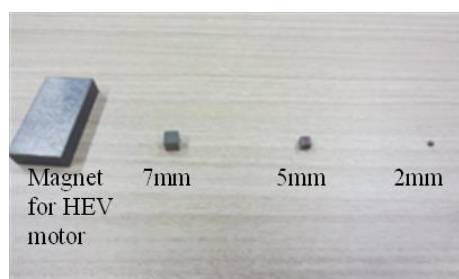


Fig.1. Magnet cut into cubes



Fig. 2. Vibrating Sample Magnetometers VSM

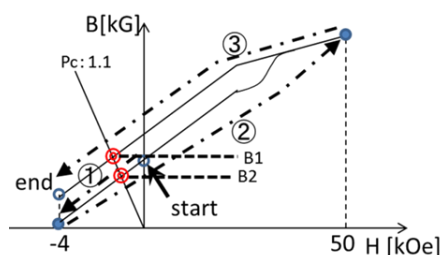


Fig.3. Calculation method of demagnetizing ratio

Reference

- 1) S. Araki, Y. Asano, A. Yamagiwa, "Development of Measurement Technique of Three-dimensional Demagnetization Distribution in Permanent Magnets for Motors (Part 1)" The paper of joint Technical Meeting on Rotating Machinery, Linear Drive and Home and Consumer Appliances, IEE Japan, RM-15-083/LD-15-034/HCA-15-036(2015)

Grain size refinement of Nd-Fe-B sintered magnets

Y. Une, H. Kubo, T. Mizoguchi, T. Iriyama and M. Sagawa

(Intermetallics Co., Ltd. (Technology Research Association of Magnetic Materials for High-Efficiency Motors / Nagoya Branch), Creation-Core Nagoya 101, 2266-22 Anagahora, Shimo-shidami, Moriyama-ku, Nagoya, Aichi 463-0003, Japan)

High remanence and large coercivity are required for Nd-Fe-B magnets in high-efficiency motors such as traction motors for EV or HEV. The addition of Dy is the most common way to increase the coercivity of Nd-Fe-B magnets. The problem of the Dy addition is the reduction of the remanence or the rise of material cost. Accordingly, efforts to reduce Dy use have been undertaken all over the world. One of the important idea to reduce the Dy use is a grain size refinement of $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ crystal. Also, optimizing the grain boundary structure is necessary to achieve the large coercivity. We have been challenging the grain size refinement of Nd-Fe-B sintered magnets since 2007.

From 2007 to 2012, we had developed under "Rare Metal Substitute Materials Development Project" commissioned by the New Energy and Industrial Technology Development Organization (NEDO). In this project, we obtained fine powder with average particle size of around 1 μm using a helium jet-milling¹⁾. We fabricated the fine grained Dy-free Nd-Fe-B magnets using this powder with coercivity of around 20 kOe; about 40% of Dy can be saved by this technique.

Then, from 2012 to now, we have been challenging to develop the new production process for the further grain size refined Dy-free Nd-Fe-B sintered magnets under "Future Pioneering Projects / Development of magnetic material technology for high-efficiency motors" commissioned by NEDO.

The sub-micron grained sintered magnet was developed using both HDDR process and helium gas jet-milling²⁾. This magnet (HDDR sintered magnet) had a better temperature coefficient of coercivity than the conventional sintered magnet. However, the coercivity at room temperature is around 13 kOe which is rather lower than we expected³⁾. It can be seen that the HDDR sintered magnet has thinner Nd-rich grain boundary phase with around 1 nm than that of conventional magnet (thickness: 2 nm). We have been trying to expand the grain boundary phase of the HDDR sintered magnets by various methods such as the grain boundary diffusion (GBD) technique. One of the results is shown in Fig.1.

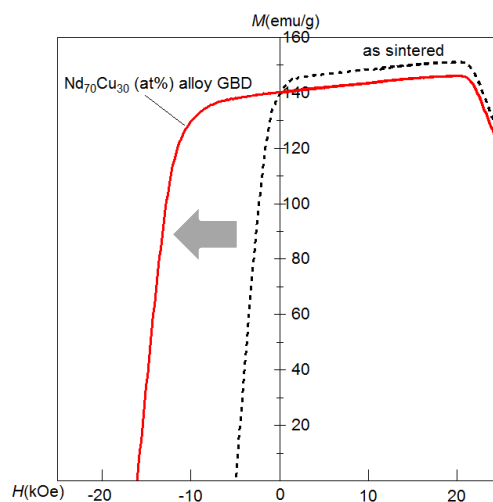


Fig.1 GBD for the HDDR sintered magnets

References

- 1) Y. Une and M. Sagawa, J. Jpn. Inst. Met. **76**, 12 (2012) (in Japanese)
- 2) M. Nakamura, M. Matsuura, N. Tezuka, S. Sugimoto, Y. Une, H. Kubo, and M. Sagawa, Appl. Phys. Lett. **103** (2013) 022404.
- 3) Y. Une, H. Kubo, T. Mizoguchi, T. Iriyama, M. Sagawa, M. Nakamura, M. Matsuura, and S. Sugimoto, The 38th Annual Conference on MAGNETICS in Japan (2014), 2pB-2

Newly developed (R,Zr)(Fe,Co)_{12-x}Ti_x-N_y compounds for permanent magnets (y=1.3 for R=Nd, y=0 for R=Sm)

K. Kobayashi, S. Suzuki, T. Kuno and K. Urushibata

(Shizuoka Institute of Science and Technology, Toyosawa 2200-2, Fukuroi, Shizuoka 437-8555, Japan)

(R_{0.7-0.8}Zr_{0.3-0.2})(Fe_{0.75}Co_{0.25})_{11.5}Ti_{0.5} (R = Nd and Sm) alloys for permanent magnet materials were prepared by strip-casting. The homogeneity of the elements detected using electron-probe micro-analysis (EPMA) was fairly good. The occupation sites of the substituted elements, i.e. Zr in R sites, Ti in Fe(8i) sites and Co in Fe(8j) and Fe(8f) sites, were revealed by using spherical aberration-corrected scanning transmission electron microscopy (Cs-STEM). The stabilization of ThMn₁₂ structure at a low Ti content of Ti_{0.5} mainly originated from the substitution of R sites with Zr. The nitrogenated R = Nd alloy, (Nd_{0.7}Zr_{0.3})(Fe_{0.75}Co_{0.25})_{11.5}Ti_{0.5}N_{1.30} compound, showed good magnetic properties of $J_s = 1.67$ T and $H_a = 5.25$ MA/m at room temperature (RT). The R = Sm alloy, (Sm_{0.8}Zr_{0.2})(Fe_{0.75}Co_{0.25})_{11.5}Ti_{0.5}, also had $J_s = 1.58$ T and $H_a = 5.90$ MA/m at RT. The values in the R = Sm alloy were still $J_s = 1.50$ T and $H_a = 3.70$ MA/m at 473 K, and were higher than those of Nd₂Fe₁₄B phase at the temperature [1]-[6]. Because the R = Sm alloy is a Dy-free and N-free powder, it is a promising candidate as a material for sintered magnets (4).

For the measurement of magnetic properties of the samples, physical properties measurement system-vibrating sample magnetometer (PPMS-VSM) under a maximum applied field of 9 T was employed. Especially, the J_s and H_a , i.e. K_1 , was calculated from the magnetization curve using the law of approach to saturation (LAS) method. The sample powder consisted of secondary grains composed of isotropic agglomerated primary grains of about $5 \times 5 \sim 20$ μm . The sample powder was mixed in epoxy resin, then the magnetically isotropic sample. The analysis was performed by using the following equation [7], [8].

$$dJ(H)/dH = J_s (8/15) (K_1^2/J_s^2) (1/H^3)) + \chi_0 \quad (1)$$

Here, $J(H)$ is the measured polarization under applied field H , J_s is the saturation polarization, and K_1 is the first-order anisotropy constant. Equation (1) was applied to the measured polarization under a high field of 6-9 T, and the plots between $dJ(H)/dH$ and $1/H^3$ are used to calculate J_s and K_1 values. This method was used to obtain the results in our previous studies [1]-[4]. In the study [4], however, we compared the results obtained using above equation (1) with those using $J(H)$ vs $1/H^2$ plots, and employed the latter method for the stability of obtained values. As mentioned above, the comparatively high magnetic properties in R=Nd nitrogenated compound and R=Sm alloy were measured using the LAS method.

Evaluating the α -(Fe,Co) phase concentrations in the samples is important for calculating precise J_s . We determined the volume fractions of the phase using two methods. First, we compared the largest XRD peak height of the α -(Fe,Co) phase around $2\theta=44.5^\circ$ with that of the main ThMn₁₂ phase of around $2\theta=42.4^\circ$. The ratios of peak heights corresponded to the volume fractions of the phases. This method included the error from the crystallinity of each phase in the samples and the local distribution of the phases in the sample particles. Second, we obtained the volume fractions directly, through measuring the surface area fractions of the α -(Fe,Co) phase on the polished surface of electron back-scattering diffraction (EBSD) image of the sample particles. Each phase was clearly distinguished in this method, however, there were errors arising from the difference in the particles observed. Although numerous observations are required for this method, the number of observations was limited for some particles in the experiments.

The above J_s values of samples were corrected using XRD data those for eliminating the contribution from α -(Fe,Co) phases. The obtained values were indicated in Fig.1. The values (a) were shown in our previous papers [1]-[4], and those of (b) were newly obtained in our recent measurements.

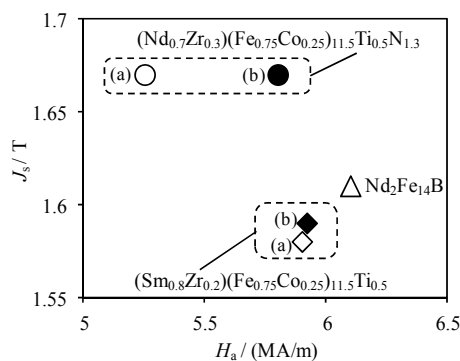


Fig. 1 Results of the LAS method using PPMS-VSM (at RT)

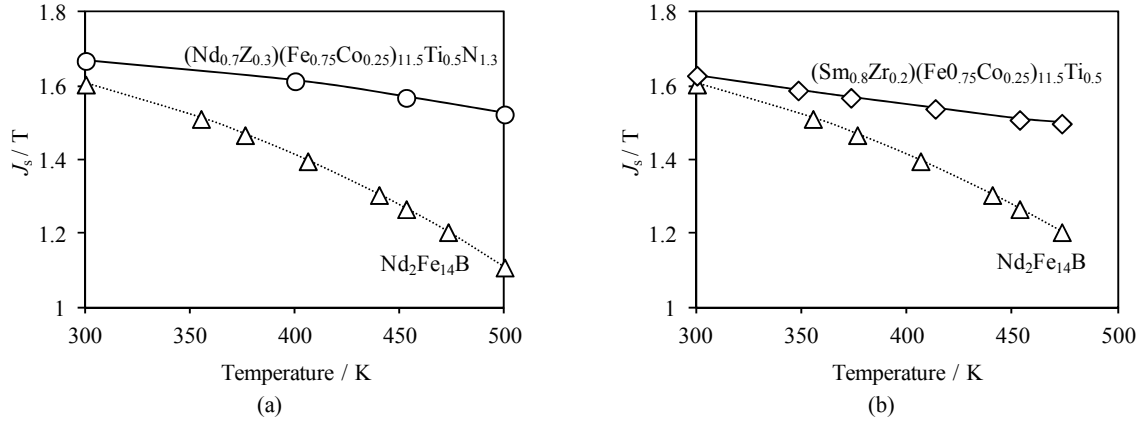


Fig. 2 Temperature dependences of J_s in R=Nd compound (a) and in R=Sm alloy (b) with those in $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ phase [6].

The Curie temperature (T_c) of the alloys was measured also using the PPMS-VSM with an maximum applied field of about 9 T. T_c of $(\text{Nd}_{0.7}\text{Zr}_{0.3})(\text{Fe}_{0.75}\text{Co}_{0.25})_{11.5}\text{Ti}_{0.5}\text{N}_{1.30}$ compound is more than 840K that is sufficiently higher than that of an Nd-Fe-B magnet of about 584 K [5], [6]. The temperature dependences of J_s (Fig. 2) and H_a of the alloys showed that the J_s and H_a values at 473 K of $(\text{Nd}_{0.7}\text{Zr}_{0.3})(\text{Fe}_{0.75}\text{Co}_{0.25})_{11.5}\text{Ti}_{0.5}\text{N}_{1.30}$ compound and $(\text{Sm}_{0.8}\text{Zr}_{0.2})(\text{Fe}_{0.75}\text{Co}_{0.25})_{11.5}\text{Ti}_{0.5}$ alloy (T_c estimated to be 880K) were higher than those of Nd-Fe-B (the figure for H_a exists in ref.[4]). As mentioned above, $(\text{Sm}_{0.8}\text{Zr}_{0.2})(\text{Fe}_{0.75}\text{Co}_{0.25})_{11.5}\text{Ti}_{0.5}$ has still $J_s = 1.50$ T and $H_a = 3.70$ MA/m at 473K, and we would like to insist again that the alloy is Dy-free and N-free, therefore, it is a promising candidate for permanent magnet material for high-temperature applications.

Acknowledgement

This report is based on results obtained from the pioneering program “Development of magnetic material technology for high-efficiency motors” (2012–) commissioned by the New Energy and Industrial Technology Development Organization (NEDO).

References

- [1] S. Suzuki, T. Kuno, K. Urushibata, K. Kobayashi, N. Sakuma, K. Washio, M. Yano, A. Kato, A. Manabe, J. Magn. Mater. vol.401 (2016) p.259-268.
- [2] S. Suzuki, T. Kuno, K. Urushibata, K. Kobayashi, N. Sakuma, K. Washio, H. Kishimoto, A. Kato and A. Manabe, AIP Advances 4 (2014) 117131.
- [3] N. Sakuma, S. Suzuki, T. Kuno, K. Urushibata, K. Kobayashi, M. Yano, A. Kato and A. Manabe, AIP Advances 6 (2016) 056023.
- [4] T. Kuno, S. Suzuki, K. Urushibata, K. Kobayashi, N. Sakuma, M. Yano, A. Kato and A. Manabe, AIP Advances 6 (2016) 025221.
- [5] M. Sagawa, S. Fujimura, N. Togawa, H. Yamamoto, and Y. Matsuura, J. Appl. Phys. 55 No.6 (1984) p.2083-2087.
- [6] S. Hock, Ph.D. thesis, Ph.D thesis, Universität Stuttgart (1988).
- [7] H. Kronmüller and M. Fähnle, Micromagnetism and the Microstructure of Ferromagnetic Solids, Cambridge (2003) p.174.
- [8] G. Hadjipanayis, D.J. Sellmyer, and B. Brandt, Phys Rev., B 23 No.7 (1981) p.3349-3354.

Research trends for the high-performance La-Co substituted M type ferrite magnets

Yoshinori Kobayashi
Hitachi Metals, Ltd.

1. Introduction

The hexagonal Sr-M type ferrite magnet has been widely used in applications such as the motor for car electrical equipments and for air conditioners and refrigerators. Recently, the magnetic properties of ferrite magnet has been improved by substituting La and Co for Sr and Fe atoms, respectively. The La-Co substituted M-type ferrites (Sr-La-Co M-type ferrite and Ca-La-Co M-type ferrite, to which we will refer as 'SLC-M' and 'CLC-M' hereafter)¹⁾⁻³⁾ are known to have the higher magnetic crystalline anisotropy compared with Sr-M type ferrite. In this study, the occupation sites of cobalt ions in the La-Co substituted M-type ferrite compound were analyzed by the neutron diffraction, the extended X-ray absorption fine structure (EXAFS) and the X-ray magnetic circular dichroism (XMCD) to understand the relationship between the local structure and the improvements of magnetic characteristics in the La-Co substituted M-type ferrite, and furthermore, microstructure of CLC-M sintered ferrite magnets were analyzed by Spherical Aberration Corrected Scanning Transmission Electron Microscopy (Cs-STEM) to get guiding principles for improving magnetic property.

2. Cation distribution analysis of La-Co M-type ferrites by neutron diffraction, EXAFS and XMCD^{4), 5)}

We investigated the site distribution of the cobalt ions in SLC-M ($\text{Sr}_{0.7}\text{La}_{0.3}\text{Co}_{0.3}\text{Fe}_{11.3}\text{O}_{19}$) and CLC-M ($\text{Ca}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{Co}_{0.3}\text{Fe}_{10.1}\text{O}_{19}$, $a \approx 19$) by neutron diffraction and EXAFS measurements. Fig. 1 shows the one half of unit cell for Sr-M ($\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$, space group: $P6_3/mmc$). The five different sublattices for the ferric ions are denoted using Wyckoff's notation as follows: 12k, 2a, 4f₂ (octahedral sites), 4f₁ (tetrahedral site) and 2b (bipyramidal site). In this study, we estimated the local structure on the assumption that cobalt ions simultaneously occupy some of the five ferric ion sites. It was suggested that cobalt ions are partitioned in the 2a, 4f₁ and 12k sites in the ratio of 1:2:2 for SLC-M. Meanwhile, it was suggested that cobalt ions are partitioned in the 2a, 4f₁ and 12k sites in the ratio of 2:6:2 for CLC-M.

Fig. 2 shows the X-ray absorption near edge structure (XANES) spectra and the XMCD spectra at the Fe K-edge for Sr-M, SLC-M and CLC-M. The ferric ions at the tetrahedral site (A site) of the spinel ferrite give a pre-edge peak around $E \approx 7.11$ keV in the XANES spectrum⁶⁾. The pre-edge peak is observed in the XANES spectra at the Fe K-edge for Sr-M, SLC-M and CLC-M. The M type ferrite has a ferrimagnetic structure, that is, eight ferric ions with the up-spin at 2a, 2b, 12k and four ferric ions with the down-spin at 4f₁, 4f₂ exist in a unit cell. The pre-edge peak originates from the ferric ions of the down spin at the tetrahedral site, 4f₁. The intensity of the XMCD spectrum peak at the pre-edge peak is smaller for CLC-M than for Sr-M and SLC-M. This suggests that the contributions of the ferric ions in the down spin site to a magnetic moment decreases, suggesting that the ferric ions at the tetrahedral site 4f₁ is replaced by more elements of a smaller or no magnetic moment for CLC-M compared to Sr-M and SLC-M.

3. Microstructural analysis of Ca-La-Co M-type sintered ferrite magnets by Cs-STEM⁷⁾

We investigated composition and microstructure at the vicinity of grain boundary by Cs-STEM for CLC-M sintered body. Table 1 shows EDX analysis results for multiple-junction phases of CLC-M sintered body with additives : (a) CaCO_3 :0.0 mass%, SiO_2 :0.34 mass%, (b) CaCO_3 :1.25 mass%, SiO_2 :0.68 mass%. It was confirmed that there are Ca-Si based oxides, which consists of Si, Ca, La and Fe, at multiple-junction phases of sintered body by adding only SiO_2 instead of both CaCO_3 and SiO_2 which are sintering aids for ferrite magnets. And then it was almost confirmed that the abundance ratio of Si, Ca, La and Fe at multiple-junction phases is 30 : 60 : 2 : 5.

Fig. 3 shows HAADF-STEM image on intergranular grain boundary for CLC-M sintered body with additives : CaCO_3 :1.25 mass%, SiO_2 :0.68 mass%. We found that the step-terrace structure of Ca-Si based oxides are formed at the surface of the M-type ferrite grain, and the maximum width of intergranular grain boundary is nearly equal to half the edge length along z-axis, which is 1.15 nm, of M-type ferrite unit cell. This suggests that M-type ferrite grains were magnetically isolated by the presence of Ca-Si based oxide phases at intergranular grain boundary.

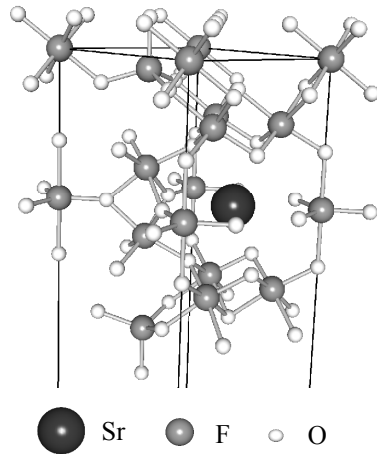


Fig.1 One half of unit cell of the Sr-M type hexaferrite (SrFe₁₂O₁₉, space group: P6₃/mmc).

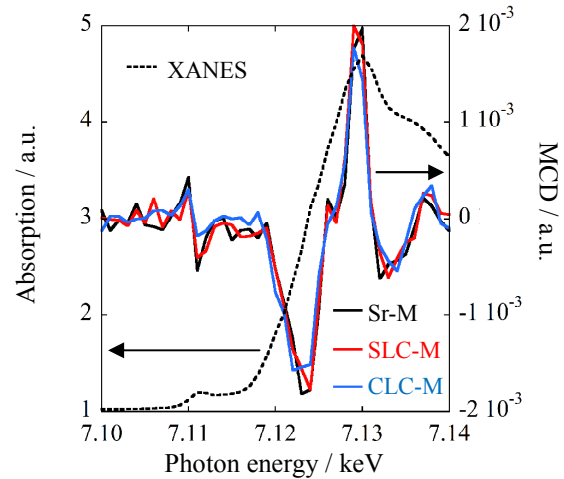


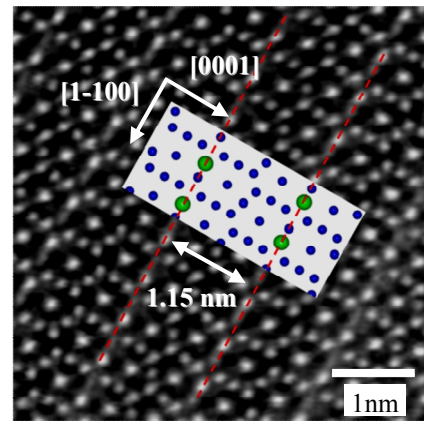
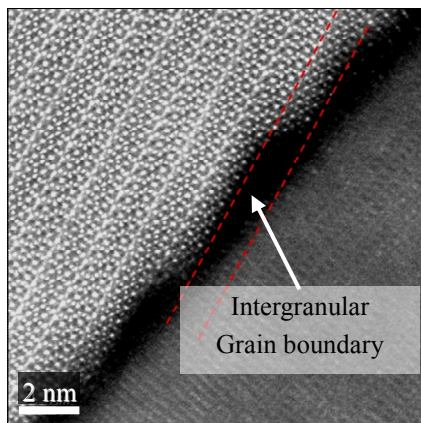
Fig. 2 The XANES and hard X-ray MCD spectra for the Sr-M and the La-Co substituted M type ferrite.

Table 1 EDX analysis results for multiple-junction phases of CLC-M sintered body with additives.
(a) CaCO₃:0.0 mass%, SiO₂:0.34 mass% (b) CaCO₃:1.25 mass%, SiO₂:0.68 mass%

	Si (at%)	Ca (at%)	La (at%)	Fe (at%)
1	29.3	64.1	2.7	3.9
2	27.7	67.2	1.6	3.5
3	32.4	60.2	2.0	5.4
4	29.7	60.4	3.3	6.6
5	30.9	63.9	1.3	3.9
Ave.	30.0	63.1	2.2	4.7

	Si (at%)	Ca (at%)	La (at%)	Fe (at%)
1	30.2	63.5	1.2	5.1
2	30.9	62.0	1.5	5.6
3	30.7	63.3	1.7	4.3
4	30.1	62.2	1.9	5.8
5	31.7	60.5	1.1	6.7
Ave.	30.7	62.3	1.5	5.5

Fig. 3 HAADF-STEM image on intergranular grain boundary for CLC-M sintered body with additives. (CaCO₃:1.25 mass%, SiO₂:0.68 mass%)



Reference

- 1) K. Iida, Y. Minachi, K. Masuzawa, J. Magn. Soc. Jpn., 23 (1999) 1093-1096.
- 2) H. Nishio, K. Iida, Y. Minachi, K. Masuzawa, M. Kawakami, H. Taguchi, J. Magn. Soc. Jpn., 23 (1999) 1097.
- 3) Y. Kobayashi, S. Hosokawa, E. Oda, S. Toyota, J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, 55 (2008) 541.
- 4) Y. Kobayashi, E. Oda, T. Nishiuchi and T. Nakagawa, J. Ceram. Soc. Jpn., 119[4] (2011) 285.
- 5) Y. Kobayashi, E. Oda, T. Nakagawa and T. Nishiuchi, J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, 63 (2016) 101.
- 6) N. Kawamura, Doctoral thesis, University of Okayama, Okayama, Japan, (1999) 88.
- 7) Y. Kobayashi, T. Kawata, submitted.

Observations of Coercivity in RE-Fe-B Magnets in Pulsed Fields up to 30T

K. Nakahata¹, K Yamada², H. Shimoji³ and M. Enokizono⁴

¹Oita Advance Technical Academy, Oita 870-1141, Japan

²Saitama University, Saitama 338-8570, Japan

³Oita Pref. Industrial Research Institute, Oita 870-1117, Japan,

⁴Oita University, Oita 870-1192, Japan

The measurements of the coercivity (H_c) of magnets are very important to obtain the stored energies in magnets. However it is difficult to determine H_c as a function of the effective fields in samples with arbitrary shapes in pulsed fields. We tried to obtain the exact coercive force and the M - H curve in high pulsed magnetic fields up to 30T with long pulsed fields (e.g. half width of 80ms in 20T_{max}) by using an induction method with a triple-fold pick-up coil [1]. In this experiment, the values of H_c were found much smaller than 10-20% in the Nd-Fe-B and in Sm-Fe-B magnets which were supplied and announced ratings by a company. These errors might be caused by the sample insertion gap in between the sample and probe. These magnetic field configurations of samples with some insertion gaps of the pick-up coil were well simulated using JMAG and were well coincide with the experimental results. Fig. 1 shows the experimental results of H_{eff} vs. $\mu_0 H$ for two samples of Nd-Fe-B. Table1 shows the discrepancies of the several parameters between the announced values and those in this study. Here it must be noted that we obtained the same samples with a sample maker and we prepared two types of samples which were cut along easy and hard axis, respectively. Therefore, to avoid errors, we prepared samples with the largest diameter up to the allowance to insert samples into the inner diameter of the pick-up coil (10mm ϕ). The physical origin of this discrepancy is very plausible to consider the magnetic flux density at $B = \mu_0 H_{eff} + M$. In other words, at the coercive field (H_c , $M=0$), the effective fields as a function of the positions are uniform as described by $B = \mu_0 H_{eff} (= \mu_0 H_c)$. Therefore the voltages in the pick-up coil with its cross section are always larger than those of the samples by the insertion gap.

References

[1] K. Nakahata, B. Borkovsky, K. Yamada, T. Todaka, M. Enokizono, J. AEM, Vol.19, No2, pp207-212, 2011

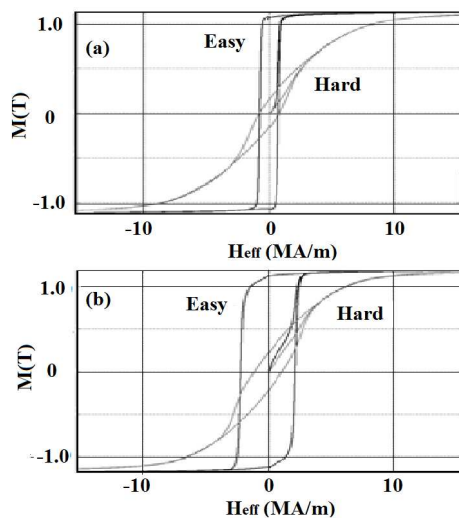


Fig.1 Experimental results of M-H curves of Nd-Fe-B magnets measured along Easy and Hard axes in pulsed fields

Table 1. Experimental results of typical samples

Nd-Fe-B(1)	Easy	Hard	Easy(Catalog)
Mr (T)	1.48	0.168	1.48
H _{CB} (kA/m)	867	91.1	1046
H _{CJ} (kA/m)	1024	607	875
(BH) _{Max}	314	3.90	421
Nd-Fe-B(2)	Easy	Hard	Easy(Catalog)
Mr (T)	1.12	0.16	1.13
H _{CB} (kA/m)	697.2	92.3	835 - 915
H _{CJ} (kA/m)	2499	1051	2387
(BH) _{Max}	197	3.76	240
Sm-Fe-B(c)	Easy	Hard	Easy(Catalog)
Mr (T)	1.07	0.16	1.08
H _{CB} (kA/m)	579	88.9	557
H _{CJ} (kA/m)	753	767	598
(BH) _{Max}	174.8	3.48	215

Tb₂Fe₁₄B/Fe コアシェル系のバルク単一粒子磁化反転 ～ Fe との交換結合による硬磁性化～

加藤宏朗, 坂口麗美, 板倉 賢*, 小川大介, 小池邦博, 安藤康夫** (山形大, *九州大, **東北大)

Switching of bulk single particle in Tb₂Fe₁₄B/Fe core-shell system
– magnetic hardening by exchange coupling with Fe –

H. Kato, R. Sakaguchi, M. Itakura*, D. Ogawa, K. Koike and Y. Ando**
(Yamagata Univ., *Kyushu Univ., **Tohoku Univ.)

我々の研究グループでは、薄膜プロセスを用いて焼結磁石の主相と粒界相の界面状態を模したモデル界面を構築し、その界面状態と保磁力の関係を調べることで、ネオジム系焼結磁石の保磁力機構にアプローチしている。これまで、設計膜厚の制御によって粒子サイズを 300 nm から 50 nm まで系統的に変化させた Nd₂Fe₁₄B 粒子を作製したところ、その保磁力が粒径減少に伴って系統的に増加することや、これらの試料に Nd 層や La 層を被覆して熱処理することで、保磁力が粒径に依らず増大する現象^{1,2)}等を見出している。この結果は、保磁力増大に有用であるとされる「粒径減少」と「界面制御」という2つの要因は各々独立であり、両者は加算的に寄与することを示唆している。従って、Nd₂Fe₁₄B バルク単結晶のように粒径が極端に大きな場合でも「適切な界面制御」がなされれば、反転核生成が抑制され保磁力発現の可能性があると考えられる。そこで本研究では、Nd₂Fe₁₄B 系のバルク単結晶試料について、その表面状態と保磁力の関係を調べることで、ネオジム磁石の保磁力増大への指針を得ることを目的とした。今回は、Nd₂Fe₁₄B よりも磁気異方性が大きく、表面状態の変化が保磁力へ顕著に影響すると期待される Tb₂Fe₁₄B バルク単結晶を対象とし、その表面状態と保磁力の関係を系統的に調べた結果を主に報告する。

実験に使用した Tb₂Fe₁₄B バルク単結晶は、浮遊帯熔融法で育成されたもので、X線背面反射ラウエ法によってその結晶方位を決定し、種々のアスペクト比をもつ直方体形になるように切断・研磨した。直方体の各辺の長さは 0.3 mm ～ 1.5 mm である。各試料は、Nd₂Fe₁₄B 型正方晶構造の (001) 面および (100) 面に平行な表面が最大面積になり、その法線方向が最短になるような板状に成形したものを、各々 (001) 試料および (100) 試料と命名した。単結晶試料の表面状態は多くの場合、空气中放置による「自然酸化状態」であるが、一部の試料については、超高真空スパッタ装置を用いて、到達真空度 4.0×10^{-6} Pa, Ar ガス圧 1.0 Pa, 投入電力 20 W の条件で4時間、逆スパッタによるドライエッチングを行い、酸化被膜等の除去を試みた。この試料については、酸化防止層として in-situ で Mo 膜を 20 nm 成膜した。

系統的な実験によって、自然酸化状態の試料の容易軸方向における磁化曲線から、以下の結果を得た。

- (1) *c* 面に平行な板状の Tb₂Fe₁₄B (001) バルク単結晶では、減磁過程においてステップ的な磁化減少が見られた。
- (2) 上記試料における磁化減少のステップ幅は、試料のアスペクト比に依存し、*c* 面の面積が減少し、*c* 軸方向の厚みが増大すると、系統的に増加することがわかった。
- (3) *c* 軸に平行な細長い形状の Tb₂Fe₁₄B (100) バルク単結晶は、角形比がほぼ 100% のスクエア型ヒステリシスを示し、その保磁力は、室温で 3～5 kOe の値をとることがわかった。
- (4) これらの試料について TEM 観察を行ない、その表面状態を調べたところ、空气中に放置した自然表面をもつバルク単結晶 Tb₂Fe₁₄B 試料では、その表面に 100 nm 以上の厚さを有する α -Fe 相が存在することが確認

された。

上記(4)の結果から、この試料は、mmサイズの $\text{Tb}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ コアが、数100 nm厚の $\alpha\text{-Fe}$ シェルで囲まれた、コア・シェル構造を持っていることを示している。この $\text{Tb}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ コアに $\alpha\text{-Fe}$ シェルが接していることで、 $\text{Tb}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 界面にTbが露出している場合でも、Feとの交換結合によって異方性低下が抑制³⁾され、保磁力が発現している可能性がある。一方、 $\text{Tb}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ コアと $\alpha\text{-Fe}$ シェルの界面においては、我々がこれまで報告した $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B} / \alpha\text{-Fe}$ 系での交換結合状態⁴⁻⁶⁾と同様に、 $\text{Tb}_2\text{Fe}_{14}\text{B} (001) / \alpha\text{-Fe}$ 界面で正の交換結合、 $\text{Tb}_2\text{Fe}_{14}\text{B} (100) / \alpha\text{-Fe}$ 界面で負の交換結合が成り立っていると推定⁷⁾される。以上のことから、一連の実験結果(1)~(3)は、 $\text{Tb}_2\text{Fe}_{14}\text{B} (100) / \alpha\text{-Fe}$ 界面での負の交換結合と、Feが隣接することによる結晶場回復、及び垂直磁化をもつ板状磁性体の反磁場を考慮したコア・シェルモデル仮説で系統的に説明可能であることがわかった。

References

- 1) K. Koike, T. Kusano, D. Ogawa, K. Kobayashi, H. Kato, M. Oogane, T. Miyazaki, Y. Ando and M. Itakura, Nano. Res. Lett., (2016) 11:33.
- 2) K. Koike, H. Ishikawa, D. Ogawa, H. Kato, T. Miyazaki, Y. Ando, and M. Itakura, Coercivity enhancement in La coated Nd-Fe-B thin films, Physics Procedia, 75, (2015), 1294-1299.
- 3) R. Sasaki, D. Miura, and A. Sakuma, Appl. Phys. Exp., 8 (2015) 043004.
- 4) D. Ogawa, K. Koike, S. Mizukami, M. Oogane, Y. Ando, T. Miyazaki and H. Kato, J. Magn. Soc. Jpn., 36 (2012) 5.
- 5) D. Ogawa, K. Koike, S. Mizukami, T. Miyazaki, M. Oogane, Y. Ando, and H. Kato, J. Kor. Phys. Soc., 63 (2013) 489.
- 6) D. Ogawa, K. Koike, S. Mizukami, T. Miyazaki, M. Oogane, Y. Ando, and H. Kato, Appl. Phys. Lett., 107, (2015) 102406.
- 7) N. Umetsu, A. Sakuma, and Y. Toga, Phys. Rev. B 93 (2016) 014408.

First principles study on effect of stabilizing element M in NdFe₁₁M

Yosuke Harashima^{1,2}, Kiyoyuki Terakura³, Hiori Kino³, Shoji Ishibashi¹, Takashi Miyake^{1,2,3}
(¹AIST CD-FMat, ²NIMS ESICMM, ³NIMS CMI²)

Recent experiment succeeded epitaxial growth of a film sample of NdFe₁₂N. The sample shows larger magnetization and stronger magnetocrystalline anisotropy than Nd₂Fe₁₄B [1]. NdFe₁₂N and its related materials can be expected as good candidates for the permanent magnet materials [1,2]. NdFe₁₂N is synthesized from NdFe₁₂ by interstitial nitrogenation to enhance the magnetization and the magnetocrystalline anisotropy (see Ref [3] for the effect of nitrogenation). Even though the epitaxial growth of NdFe₁₂ is succeeded, synthesis of the bulk sample is still difficult. To stabilize the materials, third elements, ex.) Ti, have been used, but the magnetization is reduced by the substitution [4]. For the stabilizing elements, much stability with less amount of substitution and less reduction of the magnetization are required.

The purpose of this study is to find better stabilizing elements for NdFe₁₁M in terms of the stability, the magnetization, and the magnetocrystalline anisotropy. We perform the first principles calculation of NdFe₁₁M (M=Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn) and estimate the stability, the magnetization, and the magnetocrystalline anisotropy.

The calculation is performed by using QMAS [5] based on the density functional theory and the projector augmented-wave method. The exchange-correlation energy functional is approximated by using the generalized gradient approximation. Nd-4f electrons are treated as open-core states. The magnetocrystalline anisotropy is estimated from the crystal field parameter A_2^0 .

To estimate the stability of NdFe₁₁M, we calculate the formation energy by M substituted with Fe. The formation energies for Ti, V, Cr, Mn give negative values, and especially Ti stabilizes the alloy more than other elements. In experiments, these alloys are indeed observed and the amount of substitution of Ti is less than other elements. We found that Co, Ni, Zn also give negative formation energies, and that the stability of NdFe₁₁Co are comparable to that of NdFe₁₁Ti. NdFe₁₁Co has as large magnetization as NdFe₁₂. Nitrogenation enhances the magnetization of NdFe₁₁Co. For the magnetocrystalline anisotropy, nitrogenation enhances the crystal field parameter as well as NdFe₁₂ and NdFe₁₁Ti. This indicates that the uniaxial anisotropy is enhanced by nitrogenation.

As conclusion, Co is a good stabilizing element for NdFe₁₁M.

In our talk, we will also discuss the effect of Zr substitution.

Reference

- 1) Y. Hirayama, Y. K. Takahashi, S. Hirose, and K. Hono, *Scr. Mater.* **95**, 70 (2015).
- 2) S. Suzuki, T. Kuno, K. Urushibata, K. Kobayashi, N. Sakuma, K. Washio, M. Yano, A. Kato, and A. Manabe, *J. Magn. Magn. Mater.* **401**, 259 (2016).
- 3) Y. Harashima, K. Terakura, H. Kino, S. Ishibashi, and T. Miyake, *Phys. Rev. B* **92**, 184426 (2015).
- 4) T. Miyake, K. Terakura, Y. Harashima, H. Kino, and S. Ishibashi, *J. Phys. Soc. Jpn.* **83**, 043702 (2014).
- 5) <http://qmas.jp>

Temperature-dependence of Nd magnetic moment in a NdFe₁₂N_x thin film by X-ray magnetic circular dichroism

Y. Hirayama*, T. Nakamura**, Y. K. Takahashi*, S. Hirosawa* and K. Hono*

(*ESICMM/NIMS, ** JASRI/SPring-8)

BACKGROUND

The saturation magnetization, M_s , of NdFe₁₂N compounds with ThMn₁₂ structure is expected to be a high M_s because of a high concentration of Fe¹⁾. Recently, we successfully prepared the NdFe₁₂N_x film with the M_s of 1.66 ± 0.08 T at 300 K.²⁾ Moreover, the Curie temperature of NdFe₁₂N_x was 150 °C higher than that of Nd₂Fe₁₄B. However, the M_s and the anisotropy field, H_A , decays more rapidly as the temperature increase for NdFe₁₂N_x compared with those of Nd₂Fe₁₄B and Sm₂Fe₁₇N₃.³⁾ These trends of the M_s and H_A against temperature strongly depend on the strength of the indirect exchange coupling of Nd(4f)-Fe(3d) according to the *ab initio*-based calculation⁴⁾. In order to investigate the origin of the trend of the M_s against temperature, we measured the temperature dependency of the Nd magnetic moment by measuring temperature dependency of amplitude of the magnetic circular dichroism (MCD) signal from the Nd- $M_{IV,V}$ edge.

EXPERIMENTAL

MgO(001)//W/NdFe₁₂N_x(50 nm)/W(2 nm) was prepared by co-sputtering system followed by ref.2. The XMCD measurement was performed at SPring-8 BL25SU by using electromagnet in the range between -1.9 and +1.9 T at 300, 200, 100 and 15 K.

RESULT

The MCD spectrum was successfully obtained through W cap layer of 2 nm for Nd- $M_{IV,V}$ edge although the probing depth for this XMCD measurement is several nm. Figure (a) shows the hysteresis curves for Nd magnetic moment at various temperatures. Here, the vertical axis was normalized at the value at 15 K and 1.9 T. The magnetic moment of Nd decreases almost linearly with increasing temperature and 30 % of the Nd moment was missing at 300 K as shown in Fig. (b). This trend is different from the total magnetization of NdFe₁₂N_x, which is dominated by the Fe magnetic moments, indicating that the indirect Nd(4f)-Fe(3d) coupling might be relatively weak⁴⁾.

REFERENCE

- 1) T. Miyake *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **83**, 043702 (2014)
- 2) Y. Hirayama *et al.*, *Scripta Materialia* **95**, 70 (2015).
- 3) Y. Hirayama *et al.*, *JOM*, **67**, 1344 (2015).
- 4) M. Matsumoto *et al.*, *J. Appl. Phys.* **119**, 213901 (2016)

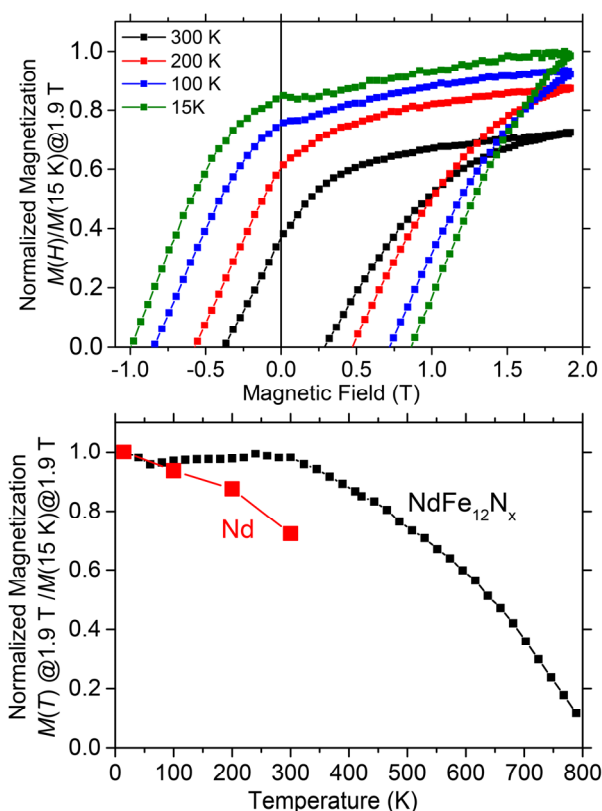


Fig (a) The magnetic hysteresis obtaining from Nd- $M_{IV,V}$ edge at various temperature of 300, 200, 100 and 15 K. (b) The temperature dependence of the Nd magnetic moment together with the total magnetic moment of NdFe₁₂N_x.

等方性Nd-Fe-B焼結磁石の高温その場中性子回折

斉藤耕太郎, 小野寛太, ステファヌス・ハルヨ*, 深川智機**, 西内武司**
(高エネルギー加速器研究機構, * 日本原子力研究開発機構, ** 日立金属(株))

In-situ high temperature neutron diffraction study of isotropic Nd-Fe-B sintered magnet

K. Saito, K. Ono, Stefanus Harjo*, T. Fukagawa** and T. Nishiuchi**

(High Energy Accelerator Research Organization, *Japan Atomic Energy Agency, **Hitachi Metals, Ltd.)

1 はじめに

高保磁力のNd-Fe-B焼結磁石を作るためには副相の制御が重要であり、焼結後に適切な温度・時間で熱処理することにより磁石の保磁力が向上することはよく知られている。熱処理条件や副相の分布に関してはすでに多くの顕微的研究が行われており、保磁力向上はNd₂Fe₁₄B主相粒を包む副相の体積率や分布の熱処理による最適化であると考えられている^{1,2)}。しかし、試料表面の局所観察は多数報告されている一方で、磁石内部での副相の定量的な研究は我々の知る限り報告がない。本研究では、透過率が高くバルク試料全体の平均情報を得られる中性子を用いて、高温環境下でNd-Fe-B焼結磁石内部の副相がどう変化するかを検証した。

試料は7mm角、高さ30mmの直方体に切り出した2種類の等方性Nd-Fe-B焼結磁石(31.0Nd-1.0B-bal.Fe及びCu0.1%添加試料)を用い、測定はMLF/J-PARCの工学材料回折装置BL19にて行った。室温から900°Cまで0.7°C/minで昇温する間の連続測定を行い、ディラトメーターを用いて長軸方向の微小な長さの変化も同時に測定した。

2 結果および考察

両試料において同程度の強度のNdO(fcc)及びNd₂O₃(A-type, hcp)の明瞭な回折ピークが観測され、Cu0%試料においてはいわゆるB rich相と呼ばれるNd₅Fe₁₈B₁₈の回折ピークが観測された(Fig. 1)。リートベルト解析により求めたNd₂Fe₁₄B、NdO、Nd₂O₃の格子定数をFig. 2に示す。Nd₂Fe₁₄Bの格子定数はa, c軸ともにキュリー温度以下で磁歪による特徴的な温度変化を示し、特にc軸方向はAndreevらの報告した単結晶の格子定数とは異なる温度依存性を持つことが明らかになった³⁾。NdO及びNd₂O₃は主相のキュリー温度以上では温度に対して線形に変化する一方で、キュリー温度以下では主相の磁歪に影響を受けていることが明らかになった。これは副相が主相と格子結合していることを意味する。

主相の単位格子体積の三乗根と試料の長軸方向の長さの変化を比較したFig. 3からは、Cu0%試料では750°C、Cu0.1%試料では630°C以上から試料長さが主相の単位胞の温度変化よりも過剰な増加を示すことがわかる。これは磁石内部のNdO、Nd₂O₃以外の副相、おそらくはdhcp構造のNdが溶解するためと考えられる。

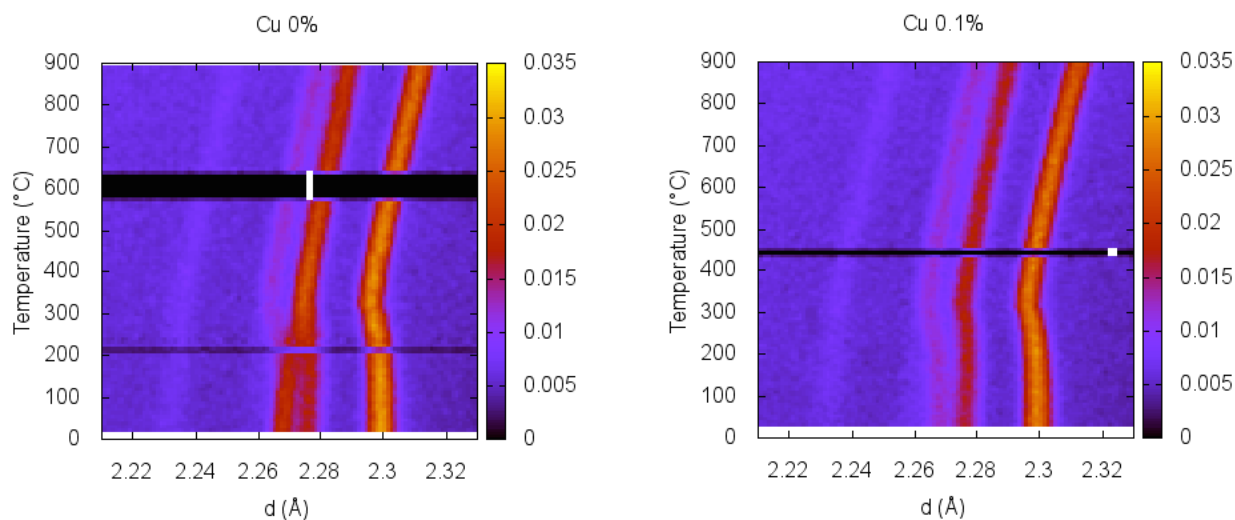


Fig. 1 B rich 相の回折ピーク

References

- 1) R. Ramesh, J. K. Chen, and G. Thomas: *J. Appl. Phys.*, **61**, 2993 (1987).
- 2) T. Fukagawa and S. Hirose: *J. Appl. Phys.*, **104**, 013911 (2008).
- 3) A. V. Andreev, A. V. Deryagin, S. M. Zadorkin, and S. V. Terent'ev: *Sov. Phys. Solid State*, **27** 987 (1985).

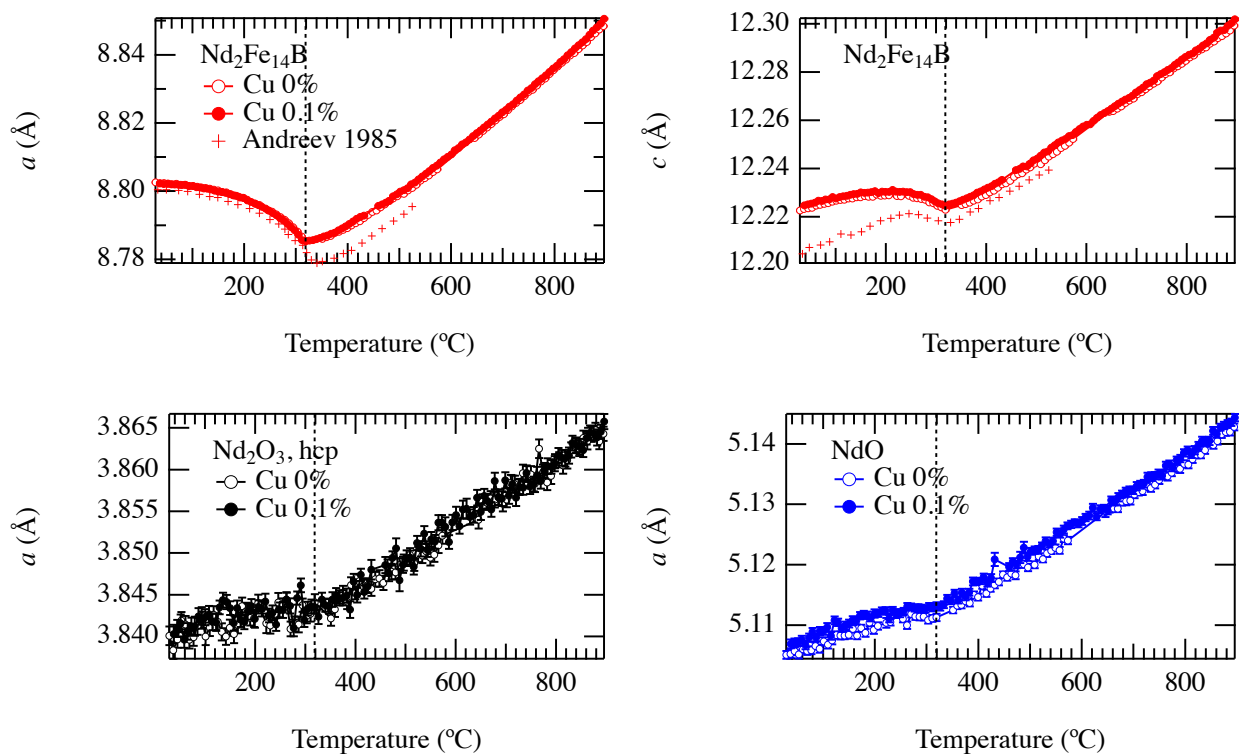


Fig. 2 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$, NdO , Nd_2O_3 の格子定数の温度変化

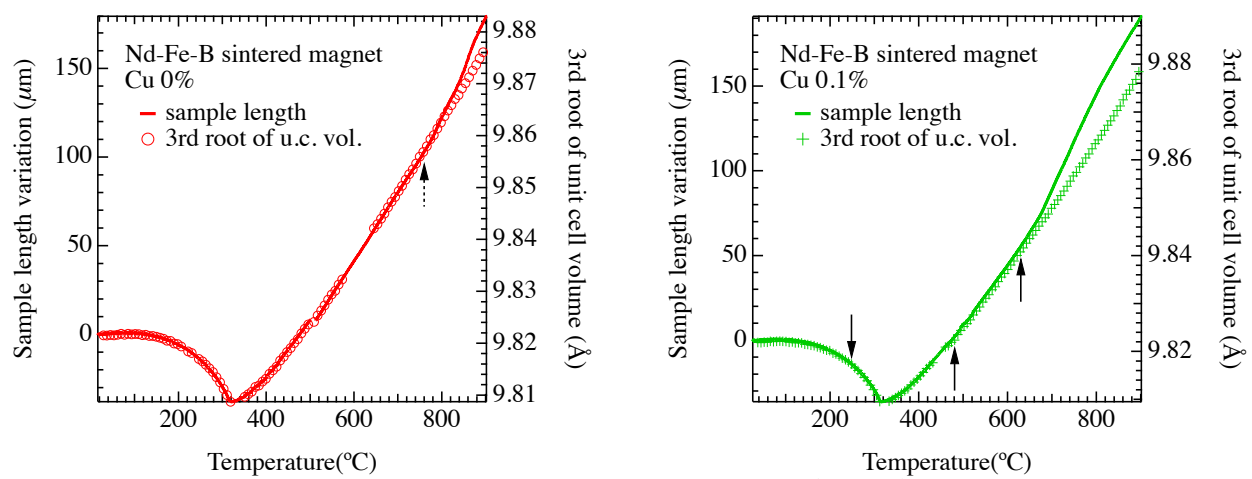


Fig. 3 試料長さ及び $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ の単位胞体積の三乗根の温度変化

Preparation of Rare-earth-saved hard magnetic materials

Masashi Matsuura, Nobuki Tezuka, and Satoshi Sugimoto
(Department of Materials Science, Graduate School of Engineering,
Tohoku University, Sendai 980-8579, Japan)

Rare-earth magnets are used in numerous devices and are essential materials. However, rare-earth elements, especially heavy rare-earth elements, are limited natural resources; therefore, it is important to develop rare-earth-free permanent magnets. Recently, developing rare-earth-free hard magnetic materials has been performed by using thin films, nano-powders, and non-equilibrium process. Some research have focused on α'' -Fe₁₆N₂^{1,2)}, L₁₀-FeNi³⁻⁵⁾, and Mn alloy^{6,7)} showing relatively high magnetic anisotropy. Although Mn-based compounds show low saturation magnetization, some Mn-based compounds show high coercivity because of high crystalline anisotropy. Our group reported that Mn-Sn-N and Mn-Sn-Co-N alloys⁸⁾ exhibit high coercivity more than 800 kAm⁻¹ without rare-earth elements. High performance permanent magnets must have the large coercivity, therefore revelation of cause of high coercivity has possibility of important clue for development of new type magnets.

FeCo alloys are also candidates for rare-earth-free permanent magnets because they exhibit high saturation magnetization. FeCo alloys, which have a stable cubic structure phase, can show high magnetocrystalline anisotropy when the unit cell is distorted tetragonally.^{9,10)} In these days, distorted FeCo film grown on Ir(001), Pd(001) or Rh(001) underlayer have been reported by several researchers¹¹⁻¹³⁾. Our group reported that Rh/FeCo-Ti-N thin film has perpendicular magnetic anisotropy derived from lattice distortion at the interface¹⁴⁾.

Our group have also preparing nano-particles for high coercivity, and shows high coercive Mn-Bi and Fe nano-particles. Then, I introduce our recent research about rare-earth free hard magnetic materials. Topics are shown as follows;

➤ High coercive Mn-Sn-Co-N alloy

Mn_{82.5}Sn₁₀Co_{7.5} (at%) alloy was annealed at 900 °C (high-temperature annealing) and subsequently annealed at 400-700 °C (low-temperature annealing) under N₂ gas atmosphere. The coercivity strongly depended on the low-temperature annealing and reached a maximum of 1270 kAm⁻¹ for annealing at 500 °C (Fig. 1). The alloy consists of two phases of perovskite-type Mn-N and β -Mn phases, and there are many twins and stacking faults in the perovskite-type phase. In addition, Co and Sn enriched at the twin interfaces. These results indicate that the magnetic anisotropy could change at twins, and the twins could play as a pinning site of domain wall motion for Mn-Sn-Co-N alloy.

➤ FeCo-Ti-N anisotropic films

FeCo-Ti-N thin films with the thickness (*t*) of 23~62 nm deposited on Rh buffer layer. The FeCo-Ti-N film shows relatively high anisotropy constant (*K_u*) of 0.98 MJm⁻³ for *t*=23 nm (Fig. 2), and the value is 0.46 MJm⁻³ for *t*=64 nm. Addition of Ti and N into FeCo layer improves lattice distortion of the lattice and it also improved the *K_u*.

➤ Mn-Bi and FeCo-based nano-particles with relatively high coercivity

High coercivity Mn-Bi nano-powder are obtained by Hydrogen-Plasma-Metal-Reaction (HPMR) process. The coercivity is 1090 kAm⁻¹, and (*BH*)_{max} reached to 105 kJm⁻³¹⁵⁾. The (*BH*)_{max} is highest value for Mn-Bi. The HPMR process can prepare Fe-based nano-particles, and FeCo nano-particles shows relatively high coercivity over 90 kAm⁻¹.

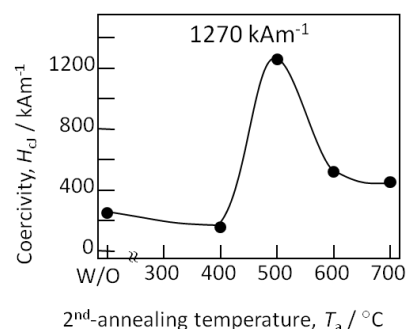


Fig. 1 2nd-annealing temperature dependence of coercivity of Mn-Sn-Co nitrided alloy.

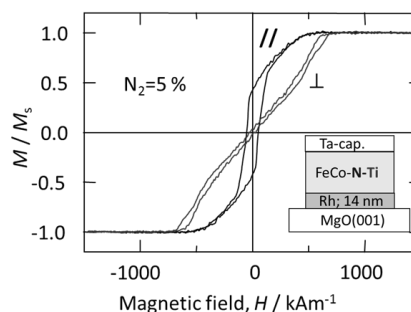


Fig. 2 Hysteresis loops measured with the external field perpendicular to the plane (⊥) and in-plane (//) directions for the FeCo-Ti-N films prepared with 5% N₂ gas.

Reference

- 1) T.K. Kim and M. Takahashi, Appl. Phys. Lett., **20** (1972) 492.
- 2) M. Komuro, Y. Kozono, M. Hanazono and Y. Sugita, J. Appl. Phys., **67** (1990) 5126.
- 3) L. Néel, J. Pauleve, R. Pauthenet, J. Langier, and D. Dauteppe, J. Appl. Phys., **35** (1964) 873 (1964).
- 4) J. Paulevé, A. Chamberod, K. Krebs, and A. Bourret, J. Appl. Phys., **39** (1968) 989.
- 5) A. Makino, P. Sharma, K. sato, A. Takeuchi, Y. Zhang, and K. Takenaka, Scientific Reports, **5** (2015) 16627.
- 6) F. Wu, S. Mizukami, D. Watanabe, H. Naganuma, M. Oogane, Y. Ando, and T. Miyazaki, Applied Physics Letters, **94** (2009) 122503 1-3.
- 7) H. Kurt, N. Baadji, K. Rode, M. Venkatesan, P. Stamenov, S. Sanvito, and J. M. D. Coey, Applied Physics Letters, **101** (2012) 132410 1-3.
- 8) K. Isogai, K. Shinaji, T. Mase, M. Matuura, N. Tezuka, and S. Sugimoto, Mater. Trans., **54** (2013) 1236.
- 9) T. Burkert, L. Nordström, O. Eriksson, and O. Heinonen, Phys. Rev. Lett., **93** (2004) 027203.
- 10) Y. Kota and A. Sakuma, Appl. Phys. Exp., **5** (2012) 113002.
- 11) F. Luo, X.L. Fu, A. Winkelmann, and M. Przybylski, Appl. Phys. Lett., **91** (2007) 262512.
- 12) B. Lao, J. Won, and M. Sahashi, IEEE Trans. Magn., **50** (2014) 2008704.
- 13) F. Yildiz, M. Przybylski, and J. Kirschner, J. Appl. Phys., **105** (2009) 07C312.
- 14) M. Matsuura, N. Tezuka, and S. Sugimoto, J. Appl. Phys., **117** (2015) 17A738.
- 15) K. Isogai, M. Matsuura, N. Tezuka, and S. Sugimoto, Mater. Trans., **54** (2013) 1673.

Fabrication of tetragonal FeCo based alloy films with uniaxial magnetic anisotropy to develop an innovative permanent magnet

S. Ishio and T. Hasegawa

Department of Materials Science, Akita University, Japan

Based on the first principles calculation, tetragonal distorted FeCo alloy has large uniaxial anisotropy energy K_{u1} and high saturation magnetization M_s , which is the most desirable feature for innovative permanent magnets^{1,2)}. In fact, the epitaxial tetragonal FeCo films with $c/a \sim 1.2$ prepared on Rh buffer layer shows K_{u1} larger than 1.5×10^7 erg/cm³.^{3,4)} FeCo-Al forms a B2 ordered phase in a wide composition range and is expected to enhance K_{u1} through a B2 ordering and a huge magneto-elastic interaction⁵⁾. In this study, the tetragonal $(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_{1-y}\text{M}_y$ ($x:0 \sim 1$, $y:0 \sim 0.2$, M:Al, Ga etc) films are prepared on Rh buffer layer, and the uniaxial magnetic anisotropy is studied.

$(\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.2})_{0.9}\text{M}_{0.1}$ (2~20nm)/Rh (20 nm)/MgO(100) and $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}$ (2~20nm)/Rh (20 nm)/MgO(100) films were prepared in a high vacuum multiple dc-sputtering system with a base pressure lower than 1×10^{-6} Pa. Rh thin film was first sputtered on the MgO (100) substrate at 300 °C. Then, after decreasing the temperature to 200 °C, FeCoM films were epitaxially grown on the Rh layer. Finally, SiO_2 was sputtered as a capping layer to prevent oxidation. The film structure was analyzed by in-plane and out-of-plane XRD. Magnetic properties were measured by VSM, Polar-Kerr measurements and torque magnetometer.

The values of K_{u1} for $(\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.2})_{0.9}\text{Al}_{0.1}$ and $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}$ films are plotted in Fig.1 as function of film thickness. These data are re-plotted as a function of the lattice distortion c/a in Fig.2, and its K_{u1} - c/a relation is understood by a tetragonal distortion²⁾. $(\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.2})_{0.9}\text{Al}_{0.1}$ exhibits a maximum (2.1×10^7 erg/cm³) around $c/a \sim 1.2$. A coercivity H_c over 10 kOe is calculated from the single domain theory and, in fact, the coercivity of 3-7 kOe was observed in dot patterns with less than 100 nm in diameter. With taking account of $M_s \sim 1500$ emu/cm³, the tetragonal FeCo based alloy is one of the most probable candidates to develop an innovative permanent magnet with 60 MGOe. The results for other M metals will be introduced in the conference.

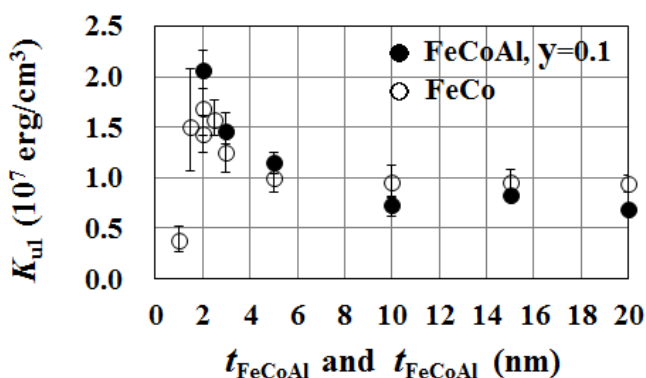


Fig.1 K_{u1} as a function of film thickness for $(\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_{0.9}\text{Al}_{0.1}$ and $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}$ films.

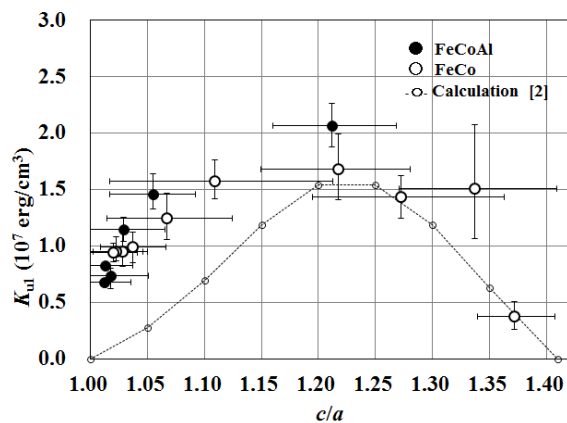


Fig.2 K_{u1} as a function of c/a for $(\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_{0.9}\text{Al}_{0.1}$ and $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}$ films.

References

- 1) T. Burkert et al., *Phys. Rev. Lett.* 93 (2004) 027203.
- 2) Y. Kota et al., *Appl. Phys. Express* 5 (2012) 113002.
- 3) H. Oomiya et al., *J. Phys.* 48 (2015) 475003.
- 4) B. Lao et al., *IEEE Trans. Magn.* 50 (2014) 2008704.
- 5) A. E. Clark et al., *IEEE Trans. Magn.* 36 (2000) 3238.

Artificial fabrication and characterization of $L1_0$ -FeNi thin films for rare-earth-free permanent magnets

M. Mizuguchi, T. Kojima, T. Y. Tashiro and K. Takanashi

Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan

Large uniaxial magnetic anisotropy materials are extremely promising for the application to rare-earth-free permanent magnets. As one of the materials, $L1_0$ -ordered FeNi alloy is attracting attention because it reveals large K_u (uniaxial magnetic anisotropy energy) value in bulk¹⁾. However, it is difficult to obtain the $L1_0$ phase by conventional techniques because the order-disorder transformation temperature of $L1_0$ -FeNi is too low (320 °C) and the migration of atoms is not fully promoted to form the ordered phase. From this reason, the artificial fabrication of $L1_0$ -FeNi films from seems to be one of the scarce solutions to realize this material. In this study, we successfully obtained $L1_0$ -FeNi thin films with a large K_u by alternate monatomic layer deposition using molecular beam epitaxy (MBE)²⁻⁸⁾. FeNi films including $L1_0$ phase were also fabricated by sputtering and post-annealing⁹⁾. Structural and magnetic properties were systematically investigated for FeNi thin films, and clarified the origin of the large magnetic anisotropy in $L1_0$ -FeNi.

FeNi films were fabricated by MBE employing an alternative monatomic deposition of Fe and Ni layers on several underlayers. They were fabricated also by sputtering on a MgO(001) substrate and subsequent rapid thermal annealing (RTA). Structural properties were investigated by X-ray diffraction (XRD) using synchrotron radiation and transmission electron microscope observation. Magnetic properties were characterized by a superconducting quantum interference device or a vibrating sample magnetometer.

K_u of FeNi this film fabricated by MBE was evaluated to be about 0.7 MJ/m³ from the magnetization curves, and it is confirmed that large magnetic anisotropy is induced by the formation of $L1_0$ type FeNi structure. The relationship between K_u and chemical order parameter (S), which was estimated from XRD measurements, was investigated. K_u was roughly proportional to S , indicating clear correlation between K_u and S as shown in Fig. 1. On the other hand, XRD patterns of FeNi films fabricated by sputtering drastically changed depending on the condition of RTA. Magnetization curves also changed with the annealing temperature and the annealing time, which implied the successful formation of $L1_0$ -FeNi. In addition, the enhancement of coercivity (H_{c1}) and remanent magnetization (M_r/M_s) with S was observed associated with the appearance of $L1_0$ phase as shown in Fig. 2. The effect of the other-element-addition for FeNi on crystallographic and magnetic properties was also investigated for both MBE and sputtered FeNi films, and enhancement of S or increase of the order-disorder transformation temperature was clarified.

The part of this work was supported by the Elements Strategy Initiative Project under the auspice of MEXT.

Reference

- 1) J. Paulevé *et al.*, J. Appl. Phys., **39** (1986) 989.
- 2) T. Shima *et al.*, J. Magn. Magn. Mater., **310** (2007) 2213.
- 3) M. Mizuguchi *et al.*, J. Appl. Phys., **107** (2010) 09A716.
- 4) M. Mizuguchi *et al.*, J. Magn. Soc. Jpn., **35** (2011) 370.
- 5) T. Kojima *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys., **51**(2012) 010204.
- 6) T. Kojima *et al.*, J. Phys.: Condens. Matter, **26** (2014) 064207.
- 7) T. Kojima *et al.*, J. Phys. D: Appl. Phys., **47** (2014) 425001.
- 8) T. Kojima *et al.*, Thin Solid Films, **47** (2016) 348.
- 9) T. K. Tashiro *et al.*, J. Appl. Phys., **117** (2015) 17E309.

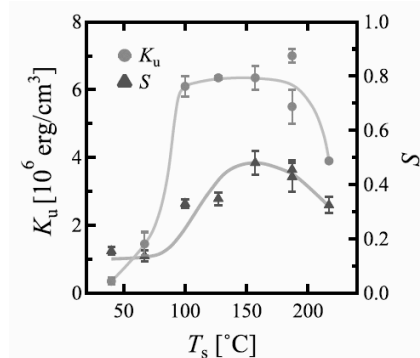


Fig. 1 Growth temperature (T_s) dependence of K_u and S ⁵⁾.

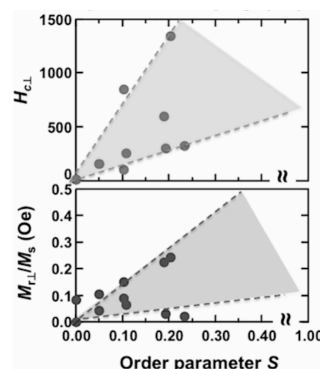


Fig. 2 S dependence of H_{c1} and M_r/M_s .

A Theoretical Approach to Synthesize L1₀ type FeNi Alloy Powder

Y. Hayashi¹, S. Goto¹, E. Watanabe¹, H. Kura¹, H. Yanagihara², E. Kita³, M. Mizuguchi⁴, K. Takanashi⁴

¹Research Laboratories, DENSO CORPORATION, Aichi 470-0111, Japan

²Institute of Applied Physics, University of Tsukuba, Ibaraki 305-8573, Japan

³National Institute of Technology, Ibaraki College, Ibaraki 312-8508, Japan

⁴Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan

L1₀ type FeNi alloy (L1₀ FeNi) is a potential candidate for a rare-earth free magnet. However its synthesis is very difficult as it shows an order-disorder transition temperature at 320°C. Various synthesis routes such as neutron irradiation¹⁾, alternate monoatomic layer deposition²⁾ and chloride complex reduction³⁾ have been investigated, but industrial synthesis has never been achieved. In this paper, a new route to synthesize L1₀ FeNi by nitriding and denitriding of the disordered alloy is presented.

The nitrogen in iron nitrides is interstitially located in the lattice and weakly interacts with metals. Nitrogen tends to coordinate around iron atoms since its affinity to iron is stronger than that to nickel. FeNiN, formed by the nitriding of disordered FeNi in a rapid stream of ammonia⁴⁾, has an FeN/Ni alternation layer structure. The coordination of metal atoms to FeNiN is similar to that in L1₀ FeNi. Therefore it is expected that L1₀ FeNi can be synthesized by topotactic denitriding.

Dynamic simulations were performed by a combination of molecular dynamics (MD) and Monte Carlo (MC) methods. MD calculations were carried out using the free calculation code “LAMMPS”. The embedded atom model (EAM) potential was employed between metals, and the Lenard Jones (LJ) potential was applied between the metal and nitrogen. Results shown in Fig. 1. (a), (b) and (c) demonstrate nitriding, denitriding and the diffusion path of nitrogen, respectively. Iron and nickel were ordered in nitriding, and remained ordered in the denitriding process. In nitriding, the corner positions were ordered when the nitrogen/metal ratio was around 1/4. The face-center positions were ordered when the ratio was above 1/4. Nitrogen diffused randomly in nitriding, but it diffused along an iron layer during denitriding. This may be the reason why iron and nickel do not become disordered in the denitriding process.

This work was supported by the NEDO project “Developing high-performance magnetic materials in pursuit of high-efficiency motors”.

Reference

- 1) L. Neel et al., J. Appl. Phys., 35(1964) 873.
- 2) M. Mizuguchi et al., J. Magn. Soc. Jpn., 35(2011) 370.
- 3) Y. Hayashi et al., J. Magn. Soc. Jpn., 37(2013) 198.
- 4) R. J. Arnott et al., J. Phys. Chem. Solids Pergamon Press 15(1960) 152.

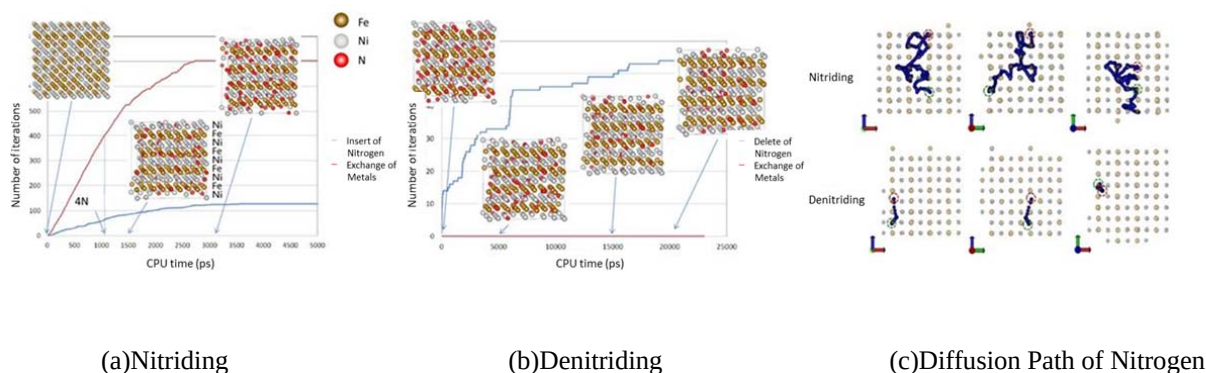


Fig. 1 Dynamic Simulations of Nitriding and Denitriding

A New Route to Synthesize $L1_0$ -type FeNi Alloy Powder

S. Goto¹, Y. Hayashi¹, E. Watanabe¹, H. Kura¹, H. Yanagihara², M. Mizuguchi³, K. Takanashi³, E. Kita⁴

¹Research Laboratories, DENSO CORPORATION, Aichi 470-0111, Japan

²Institute of Applied Physics University of Tsukuba, Ibaraki 305-8573, Japan

³Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan

⁴National Institute of Technology, Ibaraki College, Ibaraki 312-8508, Japan

$L1_0$ -FeNi is a potential candidate for use in high performance magnets free of rare earth elements because of their high magnetic anisotropy. Various synthesis processes such as neutron irradiation¹⁾, alternate monoatomic layer deposition²⁾ and chloride complex reduction³⁾ have been carried out. However, a technique for obtaining a large content of this material has not yet succeeded. In this paper, we propose a route of large scale synthesis of $L1_0$ -FeNi alloy in powder form by successive nitriding and denitriding of FeNi alloys.

We first optimized the nitriding conditions of FeNi alloy powders such as the process temperature, flow rate of NH_3 gas, and so on. Then a denitriding technique was developed to obtain $L1_0$ -FeNi alloys by hydrogen gas treatment. In order to characterize the nitride and the reduced alloys, transmission electron microscope (TEM), scanning electron microscope combined with energy dispersive x-ray spectroscopy (SEM-EDS) and x-ray diffraction (XRD) were employed. We also performed magnetization measurements at room temperature.

XRD results indicate coexistence of $(Fe,Ni)_2N$ as the main phase with $(Fe,Ni)_4N$ as the second phase (Fig.1). We also found that the iron and nickel atom positions of the $(Fe,Ni)_2N$ alloy are almost ordered. The estimated volume of the $(Fe,Ni)_2N$ phase was at least 85%. The denitrided FeNi alloy was mainly composed of the ordered phase of $L1_0$. We observed a correlation between the two order parameters of the FeNi nitrided alloy and the FeNi denitrided alloy. The order parameter and the magnetic coercivity of the $L1_0$ -FeNi compound were $S = 0.67$ and $H_c = 815$ Oe, respectively (Fig.2).

This work was supported by the NEDO project “Developing high-performance magnetic materials in pursuit of high-efficiency motors.”

Reference

- 1) L. Neel et al., J. Appl. Phys., 35(1964) 873.
- 2) M. Mizuguchi et al., J. Magn. Soc. Jpn., 35(2011) 370.
- 3) Y. Hayashi et al., J. Magn. Soc. Jpn., 37(2013) 198.

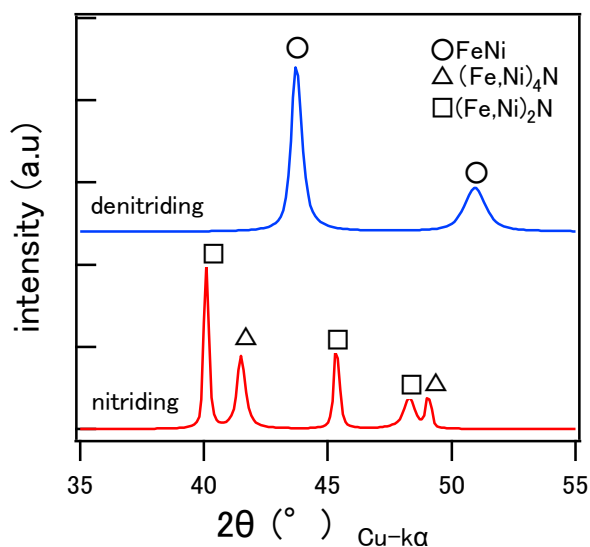


Fig1. Experimental x-ray diffraction patterns of the nitride FeNi (lower) and $L1_0$ phase (upper)

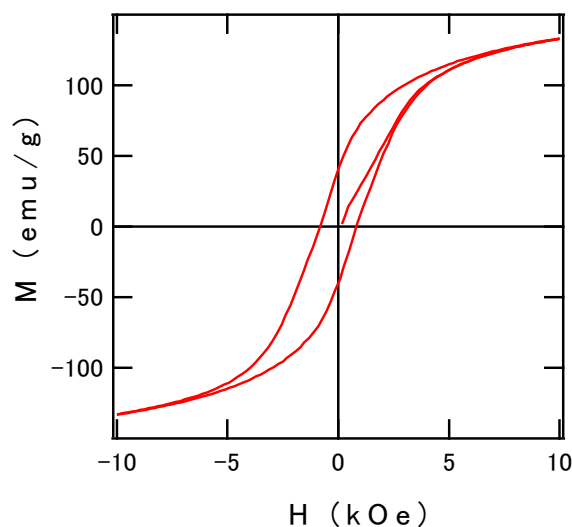


Fig.2 Magnetization curve at room temperature for a $L1_0$ -FeNi powder

d-HDDR 処理を施した Nd-Fe-B 磁石粉末の微細組織と異方性の関係

山崎理央^{1,2}, 堀川高志^{2,3}, 三嶋千里^{2,3}, 松浦昌志¹, 手束展規¹, 杉本諭¹
(¹東北大学, ²愛知製鋼(株), ³MagHEM)

Relationship between microstructure and anisotropy of Nd-Fe-B magnetic powder prepared by d-HDDR
M. Yamazaki^{1,2}, T. Horikawa^{2,3}, C. Mishima^{2,3}, M. Matsuura¹, N. Tezuka¹, and S. Sugimoto¹
(¹Tohoku Univ., ²Aichi Steel Corporation, ³MagHEM)

諸言

Nd-Fe-B 系合金を高温下の水素中で不均化させ、その後、減圧下で水素を除去(脱水素)して再結合させる HDDR (hydrogen disproportionation desorption recombination) 処理によって、組織が微細化し、高保磁力が得られる。また、不均化時の水素分圧と温度を適切に制御(d-HDDR 処理)することで、Nd₂Fe₁₄B の結晶方位が揃った異方性粉末が得られることが知られている^{1,2)}。しかし、その異方化の起源については諸説あり、未だ明らかではない。そこで本研究では、不均化処理後にみられる Fe と NdH_{2+x} からなるラメラ状組織に着目し、磁気特性と組織変化の関係を調べた。

実験方法

Nd_{12.5}Fe₈₄Ga_{0.3}Nb_{0.2}B_{6.2}(at.%)組成のインゴットを水素解砕し、粉末粒径を 53~106 μm に分級した。この原料粉末を 30 kPa の水素雰囲気下で 820 °C, 1 min ~ 30 hr 保持(不均化処理)し、その後温度を保持したまま減圧して脱水素することで d-HDDR 処理した。なお、不均化処理後の組織を観察するため、水素雰囲気下で高温保持後、脱水素せずにそのまま冷却した試料(不均化試料)も作製した。得られた粉末の組織は、走査型電子顕微鏡(SEM)で観察、磁気特性は試料振動型磁力計(VSM)を用いて測定した。

実験結果

d-HDDR 処理後の異方化度の不均化処理時間依存性を調べた結果、不均化処理時間が長くなるにつれて、異方化度は低下する傾向がみられた。Fig. 1(a)に、不均化処理時間 1 hr で d-HDDR 処理した試料の SEM 像を示したが、0.6~1.4 μm 程度の粗大な結晶粒と、<500 nm 程度の微細な結晶粒が混在していた。この粗大な結晶粒は、不均化処理時間が長くなるにつれて減少する傾向を示した。そこで、不均化処理のみの試料の組織観察を行った。Fig. 1(b)に、1 hr 不均化処理後の組織を示したが、球状の結晶粒に加え、微細な二相からなるラメラ状の組織が混在していた。このラメラ状組織の領域は、0.6~1.4 μm 程度と、d-HDDR 処理後の粗大な結晶粒と同等であった。さらにこのラメラ状組織は、不均化処理時間が長くなるにつれて減少する傾向がみられた。以上の結果から、d-HDDR 処理に伴う異方化の要因として、ラメラ状組織が寄与している可能性が示された。

謝辞: 本研究は、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)の委託事業「未来開拓研究プログラム/次世代自動車向け高効率モーター用磁性材料技術開発」の支援を受けて行われました。

参考文献

- 1) S. Sugimoto, *et al.*, *J. Alloys Compd.* **293-295**, 862 (1999).
- 2) C. Mishima, *et al.*, *IEEE Trans. Magn.* **37**, 2467 (2001).

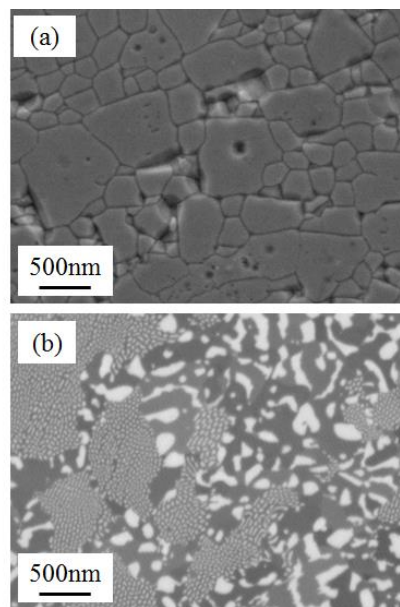


Fig. 1. (a) SE image of a particle of powder after d-HDDR, and (b) BSE image of a particle of powder after disproportionation. Both powders were treated for an hour at disproportionation treatment stage.

アークプラズマ蒸着法により作製した Sm-Fe-N/Zn 複合粉末の磁気特性

西島佑樹(院生), 松浦昌志, 手束展規, 杉本諭
(東北大学)

Magnetic properties of Sm-Fe-N/Zn powders prepared by arc plasma deposition
Yuki Nishijima, Masashi Matsuura, Nobuki Tezuka, Satoshi Sugimoto
(Tohoku University)

緒言

高い飽和磁化, 異方性磁場, ならびにキュリー温度を有する $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 化合物を主相とする Sm-Fe-N 系 Zn ボンド磁石は高耐熱ボンド磁石としての利用が期待されている. 高保磁力で高 $(BH)_{\text{max}}$ な Sm-Fe-N 系 Zn ボンド磁石を作製するためには, 原料となる Sm-Fe-N 系粉末と Zn 粉末を均一に混合する必要がある, ボールミルなどによる機械的な混合方法が用いられている. 更なる Zn の高分散化を実現するためには, Sm-Fe-N/Zn 複合粉末の作製が有効と考えられ, その手法として, スパッタリング法やアークプラズマ蒸着法が注目されている. 本研究では, アークプラズマ蒸着法にて Sm-Fe-N 系粉末上に Zn 蒸着した Sm-Fe-N 複合粉末を作製し, 熱処理に伴う磁気特性および組織変化を調べた. さらに, 同粉末を圧粉して熱処理したときの磁気特性も調べた.

実験方法

アークプラズマ蒸着法を用い, 10^{-4} Pa 台の真空中, 放電電圧 150 V, 放電回数 20000 shots の条件で, Sm-Fe-N 系粉末(1.5 g)に Zn を蒸着した. また, 比較のため, Sm-Fe-N 系粉末に対し市販の Zn 粉末($<7 \mu\text{m}$)を 5 wt.% 加え, ボールミルで混合した粉末も作製した. これらの粉末を, Ar ガス雰囲気下で $450 \sim 500^\circ\text{C}$ で 30 min 熱処理した. 更に, 上記 2 種類の粉末を $2.3 \text{ MA}\cdot\text{m}^{-1}$ の磁場中, 200 MPa の圧力でのプレスにて圧粉体を作製し, Ar ガス雰囲気下で 475°C , 30 min 熱処理することにより Zn ボンド磁石を作製した. 磁気特性は VSM または BH トレーサで, 組成は XRF で測定し, 組織は EDX を搭載した SEM で観察した.

実験結果

20000 shots のアークプラズマ蒸着により, Sm-Fe-N 系粉末への Zn 蒸着量は 5.1 wt.% であった. 組織観察の結果, 同量の Zn をボールミルで混合するよりも Zn の分散性が向上していることが分かった. Fig. 1 に, アークプラズマ蒸着法を用いて Zn を蒸着した Sm-Fe-N 系粉末および, ボールミルで Zn 粉末を混合した Sm-Fe-N 系粉末より作製した Zn ボンド磁石の減磁曲線を示した. Fig. 1 より, アークプラズマ蒸着法を用いて作製した Zn ボンド磁石の保磁力は, ボールミルで作製した Zn ボンド磁石よりも高い保磁力を示すことが分かった.

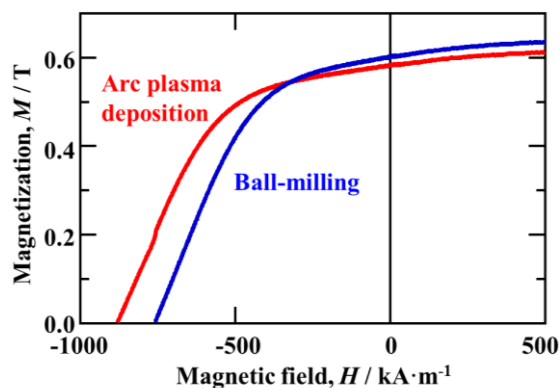


Fig. 1 Demagnetization curves of Zn-bonded Sm-Fe-N magnets prepared by arc plasma deposition and ball-milling

謝辞

本研究の一部は, 国立研究開発法人新エネルギー・産業技術開発機構(NEDO)「未来開拓研究プロジェクト/次世代自動車向け高効率モータ用磁性材料技術開発プロジェクト」の支援の下, 行われました.

Micostructure-coercivity relationship in Nd-rich Ga-doped Nd-Fe-B sintered magnets

T.T. Sasaki, T. Ohkubo, Y. Takada**, T. Sato**, A. Kato***, Y. Kaneko**, K. Hono
(National Institute for Materials Science, **TOYOTA CENTRAL R&D LABS., INC,
***Toyota Motor Corporation)

Recent trend in coercivity improvement of Nd-Fe-B sintered magnet is to refine the grains size. However, magnetic alignment of fine particles of less than 3 μm is difficult in a large-scale industrial production process. Recently, Hasegawa et al. reported that a high coercivity ($\mu_0 H_c$) of 1.8 T can be achieved even for the sintered magnets with an average grain size of 6 μm . This opened up the realistic approach in achieving high coercivity in industrially viable Nd-Fe-B sintered magnets [1,2]. The alloy contains an excess amount of Nd and a small amount of Ga-dopant and the high coercivity was attributed to the formation of $\text{Nd}_6\text{Fe}_{13}\text{Ga}$ phase, and non-ferromagnetic grain boundary phase separating $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ grains, both of which are rarely observed in standard commercial Nd-Fe-B sintered magnets. In this work, we analyzed the structure and chemical composition of the constituent phases at grain boundaries and triple junctions in the Nd-rich Ga-doped Nd-Fe-B sintered magnet annealed at various temperatures, and clarified the role of Ga on the substantial coercivity increase.

Two samples were used in this study. One is Nd-rich Ga-doped sintered magnet with the chemical composition of Fe-24.6Nd-7.87Pr-0.85B-0.13Cu-0.92Co-0.35Al-0.53Ga (wt.%), and the other is Ga-free magnet with the chemical composition of Fe-24.6Nd-7.87Pr-0.85B-0.13Cu-0.92Co-0.35Al (wt.%). Hereafter, these samples are denoted as Ga-doped sample and Ga-free sample, respectively. The sintered samples were post-sinter annealed at various temperatures for 1 h in a vacuum atmosphere. The microstructures of the samples were analyzed by scanning electron microscope (SEM, Carl-Zeiss Cross Beam 1540EsB), transmission electron microscope (TEM, FEI Titan G2 80-200).

Figure 1 shows the variations in the coercivity ($\mu_0 H_c$) as functions of post-sinter annealing temperature. Ga-doped samples exhibit higher coercivity compared to the Ga-free samples, and the temperature range to achieve high coercivity in the Ga-doped sample is much wider compared to the Ga-free sample. Figure 2 shows backscattered electron SEM images of as-sintered samples and the samples annealed at 480, 600 and 750 °C. In all samples, Nd-rich phases are present at grain boundary triple junctions. The variation in the areal fraction of the $\text{Nd}_6\text{Fe}_{13}\text{Ga}$ phase is consistent with the change in coercivity. Thick non-ferromagnetic grain boundary phase is formed between neighboring $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ grains in the samples annealed at 480 and 600 °C. Therefore, the main reason for the substantial coercivity increase can be attributed to the formation of non-ferromagnetic grain boundary phase. Based on these results, the effect of $\text{Nd}_6\text{Fe}_{13}\text{Ga}$ phase on coercivity will be discussed.

References

- 1) Hasegawa et al., Abstract for Annual meeting, Japan Society of powder and powder metallurgy, 202 (2013)
- 2) Yamasaki et al., Abstract for Annual spring meeting, Japan Institute of Metals, S7 · 21 (2014)

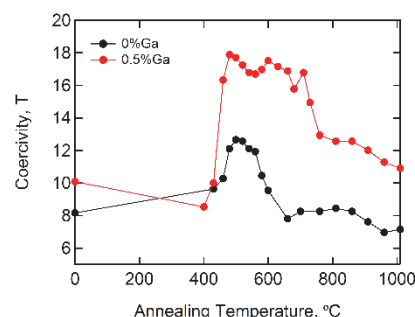


Figure 1: Variations in coercivity ($\mu_0 H_c$) as functions of annealing temperature for Ga-doped and Ga-free samples.

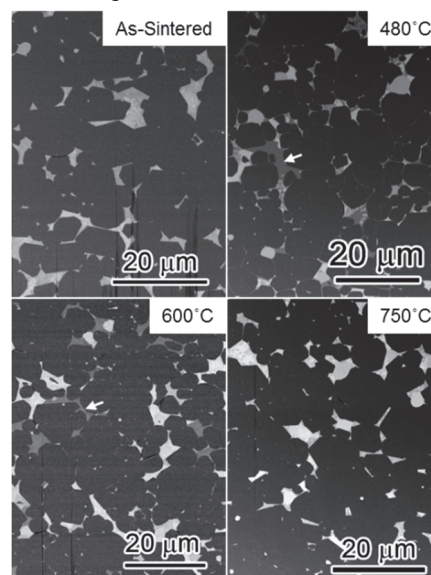


Figure 2: BSE SEM images of as-sintered sample and the samples annealed at 480, 600 750°C. $\text{Nd}_6\text{Fe}_{13}\text{Ga}$ phase is indicated by arrows.

Scanning soft x-ray magnetic circular dichroism imaging of the changes in magnetic domain structure in Nd-Fe-B sintered magnets throughout the demagnetisation process

D. Billington¹, K. Toyoki¹, Y. Kotani¹, H. Okazaki¹, A. Yasui¹, W. Ueno¹, S. Hirose², and T. Nakamura^{1,2}

¹Japan Synchrotron Radiation Research Institute (JASRI), SPring-8, 1-1-1 Kouto, Sayo 679-5198, Japan.

²Elements Strategy Initiative Center for Magnetic Materials (ESICMM), National Institute for Materials Science, 1-2 Sengen, Tsukuba 305-0047, Japan.

One of the most desirable properties of a permanent magnet is a large coercivity, a property that is directly related to the nucleation of reversed magnetic domains and pinning of the domain walls in the bulk of the magnet. In order to understand the relationship between the coercivity and the generation and evolution of magnetic domains, magnetic domain observations throughout the demagnetisation process are essential. In Nd-Fe-B sintered magnets, it has been shown that fractured surfaces largely maintain bulk coercivities, whilst polished surfaces do not [1]. This makes magnetic domain imaging of the fractured surface under applied magnetic fields highly desirable. So far, many magnetic imaging studies of these materials have been reported. However, conventional magnetic microscopes that can operate under magnetic fields are limited to polished surfaces or transmittable thin films, whilst those that can observe the fractured surface cannot operate under magnetic fields. In order to overcome these limitations, we have developed a scanning soft x-ray magnetic circular dichroism (XMCD) microscope with a spatial resolution of about 100 nm and a focal depth of $\pm 5 \mu\text{m}$ from the focal point, thereby allowing element specific magnetic domain observations of fractured surfaces. Furthermore, this apparatus is equipped with a superconducting magnet (with a maximum field of $\pm 8 \text{ T}$), which permits investigations of the magnetic field dependence of the magnetic domains. In this talk, I will briefly describe our soft XMCD microscope, and demonstrate its effectiveness by showing some recent results from commercial Nd-Fe-B sintered magnets (see, for example, Fig.1). In particular, I will show and highlight the differences in the magnetisation reversal process in the fractured and polished surfaces of the same sample.

The authors thank T. Nishiuchi and T. Fukagawa from Hitachi Metals, Ltd. for supplying the sample. Part of this work is supported by the ESICMM under the outsourcing project of MEXT.

References

[1] T. Nakamura *et al.*, Appl. Phys. Lett. **105**, 202404 (2014).

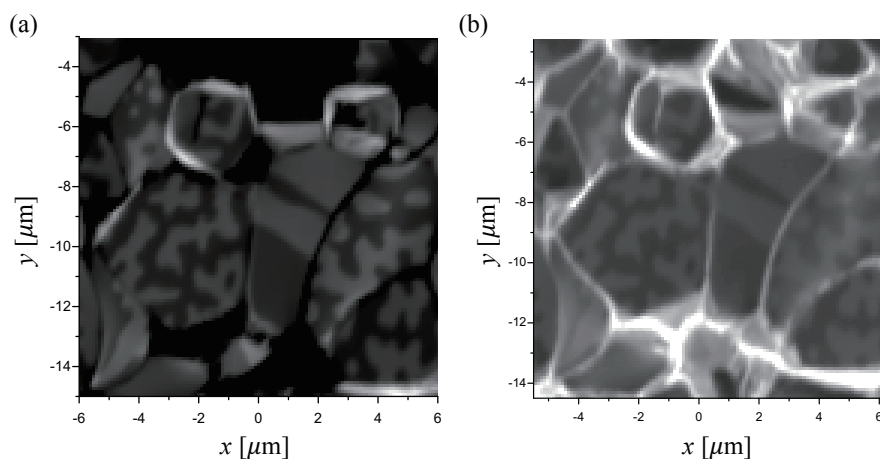


Figure 1: (a) Positive helicity x-ray absorption map of a commercial Nd-Fe-B magnet taken at the Fe $L\alpha$ -edge. (b) Same as (a) but at the Nd M_4 -edge

Domain structure of exchange-coupled and exchange-decoupled Nd-Fe-B sintered magnets

M. Soderžnik¹, H. Sepehri-Amin¹, T. Sasaki¹, T. Ohkubo¹, Y. Takada², T. Sato²,
Y. Kaneko², A. Kato³, and K. Hono¹

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

²Toyota Central R&D Labs., Inc., 41-1, Nagakute 480-1192, Japan

³Toyota Motor Corp, Advanced Material Engineering Div., Susono 410-1193, Japan

Understanding the magnetization reversal processes in Nd-Fe-B sintered magnets is important in order to obtain a clue to enhance the coercivity of Nd-Fe-B magnets without using heavy rare earth elements. In order to meet the demand of high coercivity without changing the currently established powder metallurgy route, Nakajima and Yamazaki [K. Nakajima and T. Yamazaki, Japan Patent. (2015) 5767788] reported a new series of sintered magnets that achieve the coercivity of more than 1400 kA/m and the remanence of 1.38 T without refining the grain size. The microstructural characterization revealed well-isolated 2:14:1 grains with Ga-doped Nd-rich intergranular phase¹. Such non-magnetic intergranular phase with the chemical composition Nd₆(Fe,Ga)₁₄ was reported to decouple the ferromagnetic grains and reduce the influence of the reverse domain formation between neighboring grains. In this work, we observed the magnetic domain structure of Ga-doped Nd-rich Nd-Fe-B magnet and the commercial Nd-Fe-B magnet by means of magneto-optical Kerr effect in order to understand the mechanisms of magnetization reversal processes in these two types of magnets. The samples were mechanically polished with the c-axis out of the plane and in the plane. Magnets were first fully saturated in magnetizer with the field of 5 T and then brought to the remanent state. In the commercial magnet, much more grains remained saturated compared to the Ga-doped Nd-rich magnet (a1 and b1). The reason for this is better isolation of 2:14:1 grains in Ga-doped Nd-rich magnet. If the grains are better isolated, each grain feels higher stray field which lead to domain formation on the surface of magnet. When the reverse magnetic field was applied to the magnet, we observed different domain formation. In the commercial magnet cascade-like domain propagation occurred (marked region in a2 and a3). At high-enough field the surface domains of a few grains were switched simultaneously. This implies the grains are exchange-coupled due to the low amount of Nd-rich intergranular phase. On the contrary, in Ga-doped Nd-rich magnet the domain formation was initiated from the boundary and at high-enough field the domains propagated through the whole grain (marked region in b2 and b3).

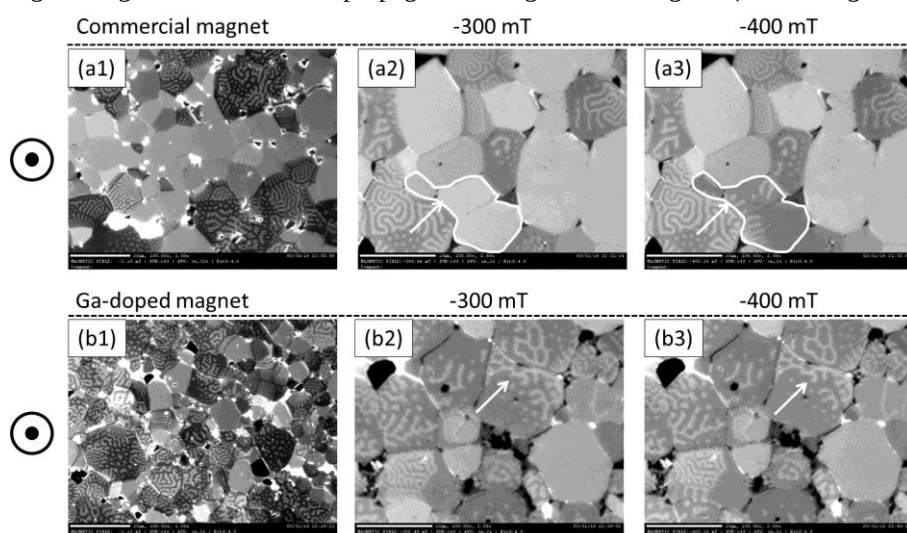


Figure 1: Domain structure in commercial and Ga-doped Nd-rich Nd-Fe-B magnet

¹ T. T. Sasaki, T. Ohkubo, Y. Takada, T. Sato, A. Kato, Y. Kaneko, K. Hono, Formation of non-ferromagnetic grain boundary phase in a Ga-doped Nd-rich Nd-Fe-B sintered magnet, Scripta Materialia 113 (2016) 218–221

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

Lihua Liu^{a,b}, H. Sepehri-Amin^a, M. Yano^c, A. Kato^c, T. Shoji^c, T. Ohkubo^a, and K. Hono^{a,b}

^aESICMM, National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan

^bGraduate School of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba, Tsukuba 305-8577, Japan

^cToyota Motor Corporation, Advanced Material Engineering Div., Susono 410-1193, Japan

The eutectic grain boundary diffusion process was applied to hot-deformed Nd-Fe-B magnets using various types of Nd_xM_y compounds as the diffusion source, where M includes Al, Cu, Ga, Zn, Mn, Co, Ni, and Fe. Formation of non-ferromagnetic Nd-rich intergranular phase was believed as the main reason for remarkable coercivity enhancement, whereas also leads to large degradation in remanent magnetization [1-3]. T.T. Sasaki et al [4] showed that trace amount of Ga doping to Nd-Fe-B sintered magnets could give rise to coercivity of 1.8 T by post annealing with more homogeneous distribution of Nd-rich grain boundary phase. In this work, we used $\text{Nd}_{62}\text{Fe}_{14}\text{Ga}_{20}\text{Cu}_4$ at.% alloy as diffusion source, applying to 4 mm thick hot-deformed Nd-Fe-B magnets aiming for an optimal coercivity with high remanent magnetization.

Hot-deformed magnets with the composition of $\text{Nd}_{13.2}(\text{Fe},\text{Co})_{\text{bal}}\text{B}_{4.7}\text{Ga}_{0.5}$ (at.%) in $5 \times 5 \times 4 \text{ mm}^3$ size were used as the starting materials. The eutectic grain boundary diffusion was carried out by coating the magnets with melted eutectic alloy ribbons, followed by heat treatment at 600°C for 3 hour. The microstructures of the samples were studied using SEM/FIB (Carl ZEISS 1540EsB), TEM (Titan G2 80-200).

Hysteresis loops of the hot-deformed and diffusion-processed magnets are shown in Figure 1. After the heat treatment at 600°C for 1 h by $\text{Nd}_{62}\text{Fe}_{14}\text{Ga}_{20}\text{Cu}_4$ diffusion process, coercivity can be increased from 1.26 T to around 2.22 T with a remanence of 1.31 T at room temperature (Fig. 1a). The diff. proc. sample can retain the coercivity of around 0.80 T at 160°C . We find the NdFeGaCu diff. proc. sample shows relatively better texture compared with that diff. proc. with Nd-Al compound (Fig.2). Detailed TEM characterization was carried out to figure out the microstructure of grain boundary phase formed after the diffusion process, as well as the interface feature that may contribute to the texture evolution when the diffusion happened.

This work was in part supported by JST, CREST.

Reference

- [1] H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo, T. Nishiuchi, N. Nozawa, S. Hirose and K.Hono, *Acta Mater.* **63**, 1124 (2010)
- [2] H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo, S. Nagashima, M. Yano, A. Kato, T. Shrefl and K.Hono, *Acta Mater.* **61**, 6622 (2013)
- [3] L. Liu, H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo, M. Yano, A. Kato, T. Shoji and K. Hono, *J. Alloy. Compd.*, **666**, 432 (2016)
- [4] T. T. Sasaki, T. Ohkubo, Y. Takada, T. Sato, A. Kato, Y. Kaneko and K. Hono, *Scr. Mater.* **113**, 218 (2016)

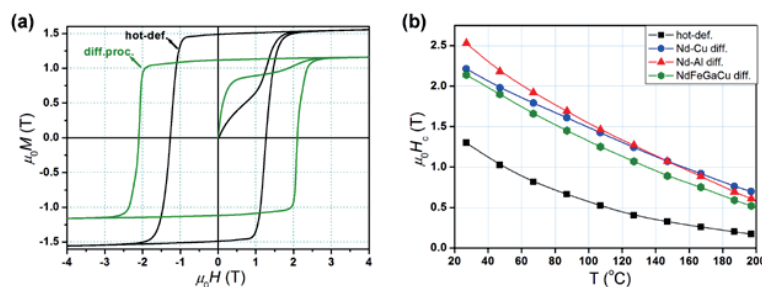


Fig. 1 Hysteresis loops of hot-deformed and NdFeGaCu diff. proc. samples a); temperature dependence of hot-deformed, Nd-Al, Nd-Cu, and NdFeGaCu diff. proc. samples b).

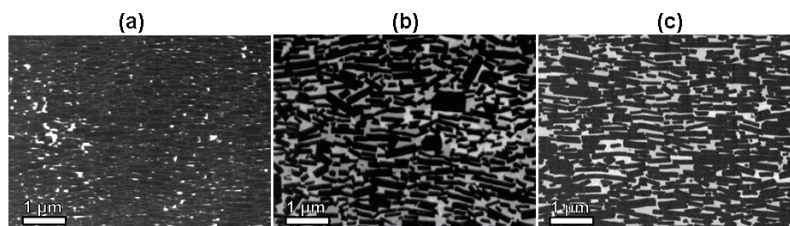


Fig. 2 BSE-SEM images of hot-deformed a), Nd-Al diff. proc. b) and NdFeGaCu diff. proc. samples c).

Coercivity enhancement in hot deformed Nd-Fe-B magnets processed from amorphous precursors

Xin Tang,^{1,2} H. Sepehri-Amin,¹ T. Ohkubo,¹ K. Hioki,³ A. Hattori³ and K. Hono^{1,2}

¹Elements Strategy Initiative Center for Magnetic Materials, National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan

²Graduate School of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba, Tsukuba 305-8577, Japan

³Daido Corporate Research & Development Center, Daido Steel Co., Ltd.

The hot-deformed magnets have attracted considerable interests since Lee reported their highly-anisotropic and ultrafine-grained microstructure features in 1985.¹⁾ Given the small grain size (~ 400 nm) in hot-deformed magnets, the coercivity is expected to be as high as ~ 2.5 T. However, experimental values are much lower.²⁾ The coercivity is extremely sensitive to microstructure, such as the chemical composition of intergranular phase and the aspect ratio (ratio between length along ab plane and length along c plane: L_{ab}/L_c) of grains. These microstructural features change depending on processing conditions. In this paper, we processed hot-deformed magnets from amorphous and nanocrystalline precursors and compared their microstructures and coercivities to explore the optimum processing route to maximize the coercivity.

The crystal and amorphous powders with composition of $\text{Nd}_{28.3}\text{Pr}_{0.06}\text{Fe}_{61}\text{Co}_{3.41}\text{Ga}_{0.53}\text{Al}_{0.06}\text{B}_{0.97}$ (wt.%) were produced by melt-spinning with different cooling rates. These two kinds of powders were compacted by hot pressing at 650°C in vacuum, which were subsequently hot-deformed at 850°C until 75% height reduction were achieved. The magnetic properties and microstructure were studied by BH tracer and SEM/FIB (Carl ZEISS 1540EsB), respectively.

Fig. 1 shows the demagnetization curves of hot deformed magnets processed from nanocrystalline and amorphous powders. By processing magnets from amorphous powders, the coercivity can be increased from ~ 1.28 T to ~ 1.4 T, while keeping the remanence at 1.42 T, which is resulted from optimized microstructure in this sample as indicated in Fig. 2. In Fig.2, the aspect ratio of $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ grains in hot-deformed magnets processed from amorphous precursors is calculated to be ~ 0.43 , which is reduced to ~ 0.32 in the counterpart processed from nanocrystalline precursors. Consequently, grains in the sample produced from nanocrystalline precursors present more feature of elongated shape, suggesting bigger effective demagnetized factor and lower coercivity. STEM/EDS studies of the intergranular phase suggested the Nd-concentration in the sample fabricated from the amorphous precursor is higher than that processed from nanocrystalline precursor.

Reference

- 1) R.W. Lee, Appl. Phys. Lett. **46** (1985) 790.
- 2) K.Hono, H. Sepehri-Amin, Scri. Mater. **67** (2012) 530.

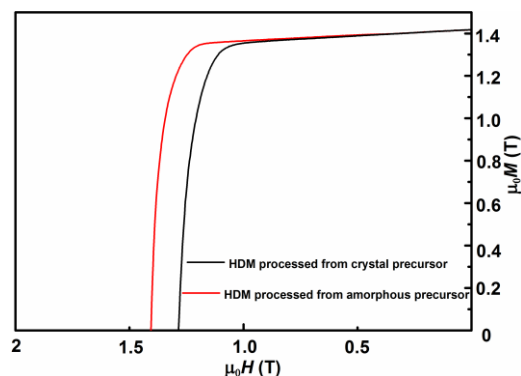


Fig. 1 Demagnetization curves of hot deformed magnet (HDM) processed from nanocrystalline and amorphous precursors.

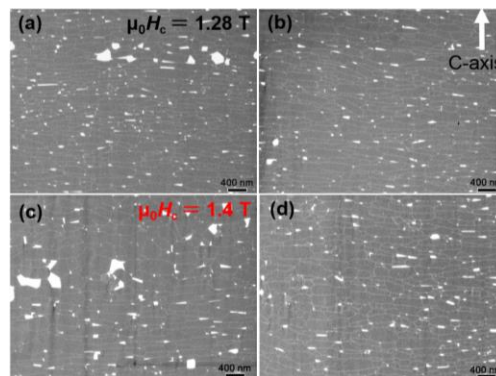


Fig. 2 BSE-SEM images of the hot-deformed magnets processed from nanocrystalline precursor (a,b) and amorphous precursor (c,d).

CoPt 基グラニューラ媒体の磁気特性と微細組織におよぼす粒界酸化物種の効果

◦タム キム コング^{a)}, 櫛引 了輔^{a)}, 日向 慎太郎^{b)}, 斉藤 伸^{b)}(^{a)}田中貴金属工業株式会社, ^{b)}東北大学)

Effect of oxide boundary materials on magnetic properties and microstructure of CoPt-based granular media

◦Kim Kong Tham^{a)}, Ryosuke Kushibiki^{a)}, Shintaro Hinata^{b)}, and Shin Saito^{b)}(^{a)}TANAKA KIKINZOKU KOGYO K.K., ^{b)}Tohoku University)

はじめに 近年、磁性層として CoPt 基強磁性金属合金-酸化物の薄膜 (グラニューラ媒体) を用いた現行の垂直磁気記録媒体の記録密度は、trilemma 問題のため伸び悩みを迎えており、これを打破するためにマイクロ波アシスト磁気記録 (MAMR) 等が提案されている¹⁾。この方式では、磁性結晶粒の微細化による熱擾乱に抗するため、 10^7 erg/cm^3 台以上の一軸結晶磁気異方性エネルギー (K_u) を有するコラム状の結晶粒が適用される。しかしながら、これまでの磁性結晶粒の K_u は添加する粒界酸化物材料 (例: SiO_2 , TiO_2 , Ta_2O_5) によって 1.2×10^7 から $5.5 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ 以下まで大きく減少することが報告されているが²⁾、この減少を抑制する粒界材料の選定指針がない状況である。本講演では、室温で作成した種々の粒界酸化物材料を有する CoPt 基のグラニューラ媒体を作製し、その磁気特性と組織について調べ、粒界酸化物の選定指針についてまとめたので報告する。

実験結果 検討に用いた CoPt 基グラニューラ媒体の下地層は $\text{Co}_{60}\text{Cr}_{40}$ -26 vol% SiO_2 (2 nm) / Ru (20 nm) / Pt (6 nm) / Ta (5 nm) / glass sub. とした。CoPt 基グラニューラ媒体は、 $\text{Co}_{80}\text{Pt}_{20}$ -30 vol% 酸化物 (酸化物: ZrO_2 , Cr_2O_3 , Y_2O_3 , Al_2O_3 , MnO , TiO_2 , WO_2 , SiO_2 , Mn_3O_4 , WO_3 , Co_3O_4 , MoO_3 , B_2O_3) を室温で作製した。一例として、これらのグラニューラ媒体の中で最も高い保磁力 (H_c) を示す CoPt- B_2O_3 グラニューラ媒体の磁化曲線を Fig. 1 に示す。挿入図は、同媒体の平面 TEM 像である。グラニューラ媒体の膜厚 (d_{mag}) が 16 nm の場合、 H_c と核生成磁界 (H_n) はそれぞれ 8.0 と 1.6 kOe であり、これまで報告されたグラニューラ媒体の磁気特性より高くなっている²⁾。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 1.5 程度であり、粒間交換結合が低いことを示唆している。TEM 像から、各結晶粒が円形と仮定し、その直径を結晶粒径とする場合、その平均値は 6.5 nm であり、従来のグラニューラ媒体の平均粒径の 8~9 nm³⁾ よりも小さくなっている。Fig. 2 には、CoPt- B_2O_3 グラニューラ媒体のコラム状成長の様式を調べるため、全体の (a)飽和磁化 ($M_s \times d_{\text{mag}}$) と (b)一軸結晶磁気異方性 ($K_u \times d_{\text{mag}}$) を d_{mag} に対してプロットした結果を示す。 d_{mag} を 4~16 nm に変化させたとき、 $M_s \times d_{\text{mag}}$ が原点を通過しており、膜厚方向に非磁性の部分が存在しないことを示している。また、このプロットの傾きから求めた M_s は 780 emu/cm^3 である。 $K_u \times d_{\text{mag}}$ のプロットにおいては、 d_{mag} を 4~16 nm に変化させたとき、直線に変化し、膜厚方向に均一な組織を持っていることを示唆している。また、このプロットの傾きから求めた K_u は $7.6 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ である。30 vol%の酸化物を除き、各結晶粒の飽和磁化と一軸結晶磁気異方性がそれぞれ約 1115 emu/cm^3 と $1.1 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ であり、 $\text{Co}_{80}\text{Pt}_{20}$ 合金の M_s と K_u ⁴⁾ にほぼ一致しており、CoPt の結晶粒と B_2O_3 酸化物がほぼ完全に相分離していることを示唆している。以上の結果を総括すると、CoPt 基合金グラニューラ媒体の結晶粒と粒界との相分離を促進し、 10^7 erg/cm^3 を超える高い K_u を得るためには B_2O_3 が有望な粒界酸化物材料であるといえる。講演では他の酸化物材料を添加した際の磁気特性を併せて紹介し、磁性結晶粒の K_u に及ぼす酸化物材料種中の主要素について系統的に議論する。

参考文献 1) J. G. Zhu et al., *IEEE Tran. Magn.*, **44**, 125 (2008). 2) J. Ariake et al., *IEEE Trans. Magn.*, **41**, 3142 (2005). 3) V. Mehta et al., *Appl. Phys. Lett.*, **106**, 202403 (2015). 4) N. Nozawa et al., *IEEE Tran. Magn.*, **49**, 3596 (2013).

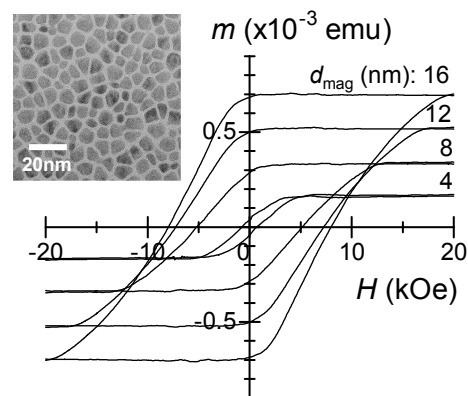


Fig. 1 m - H loops of CoPt- B_2O_3 granular media with layer thickness (d_{mag}): 4-16 nm. Inset shows in-plane-view TEM image the granular media.

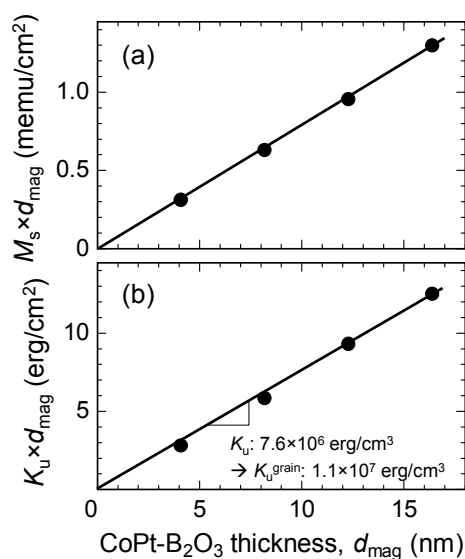


Fig. 2 Dependences of (a) $M_s \times d_{\text{mag}}$ and (b) $K_u \times d_{\text{mag}}$ on d_{mag} of a CoPt- B_2O_3 granular medium.

磁気カー効果を用いた保磁力及び残留保磁力の測定

宮嶋利之、*遠藤拓、*鈴木良夫
(日本大学大学院、*日本大学)

Measurement of Coercive Force and Residual Coercive Force Using Magneto-optical Kerr Effect

T. Miyajima, H. Endo, Y. Suzuki
(Nihon Univ. Graduate school, *Nihon Univ.)

はじめに

磁気記録では、記録密度の増大に伴い、磁気記録媒体粒子の微細化が進み、それに伴って、熱ゆらぎによる記録情報の消失が問題となる。熱ゆらぎを正しく評価するためには、様々な時間スケールでの磁化反転の測定が必要である。本研究では、ミリ秒程度の磁界掃引中での磁化反転の様子を磁気カー効果を用いて測定する装置(磁気カー効果装置)を開発し、熱ゆらぎの評価を行った。

実験方法

試料としては、2種類のCoCrPt垂直膜を使用した。試料1は、組成 $\text{Co}_{64.9}\text{Cr}_{15.4}\text{Pt}_{19.7}$ [at.%]、飽和磁化 $M_s = 164.2$ [emu/cm³]、保磁力 $H_c = 2300$ [Oe]、 $H_K = 9$ [kOe]であり、試料2は、組成 $\text{Co}_{66.1}\text{Cr}_{14.8}\text{Pt}_{19.7}$ [at.%]、 $M_s = 181.9$ [emu/cm³]、 $H_c = 2450$ [Oe]、 $H_K = 7$ [kOe]である。いずれも磁性層の層厚15 [nm]、結晶粒子の平均半径4.5 [nm]である。ここで H_K は、VSMでの面内方向磁化曲線から求め、形状異方性の補正はしていない。磁気カー効果装置を用いて、磁化反転の様子を測定した。測定に用いたパルス磁界の最大は20 [kOe]であり、最大磁界が大きくなるにつれ、磁界印加速度も0.1 [MOe/s]~4.5 [MOe/s]の範囲で速くなる。

実験結果及び考察

図1に磁気カー効果装置で測定した試料1 ($H_K = 9$ [kOe])の磁化曲線を示す。保磁力付近を見ると、多少のばらつきはあるが、どの磁化曲線もほぼ同じところを通っていることがわかる。すなわち、磁界印加速度にかかわらず保磁力は一定となった。図2に試料2 ($H_K = 7$ [kOe])の磁化曲線を示す。この磁化曲線は、試料1の場合(図1)と違い、最大磁界が大きくなる、つまり磁界印加速度が速くなるに伴い、保磁力が大きくなっている。試料1と試料2では、 H_K に2 [kOe]の差があり、試料1の方が熱による影響を受けにくいことがわかる。図1と図2の磁化曲線に示された保磁力付近のばらつきの原因は、 H_K の差が磁化曲線に表れたと考えられる。

磁気カー効果装置の磁化曲線(図1)より、試料1($H_K = 7$ [kOe])での残留保磁力を求めたところ4200 [Oe]となった。この値は、同じ試料でのVSM測定から求めた残留保磁力3400 [Oe]よりも大きい値となった。これは、VSMでの磁界印加速度が46 [Oe/s]であるのに対し、磁気カー効果装置での磁界印加速度は、 9.3×10^5 [Oe/s]と4桁以上速いことから、熱の影響を受け難くなったためである。試料2も試料1と同様に残留保磁力を求めVSMの残留保磁力と比較した。磁気カー効果装置での残留保磁力は3600 [Oe]、VSMの残留保磁力は2900 [Oe]となり、試料1の場合と同じく磁気カー効果装置の方が大きくなった。

残留保磁力に着目してみると、試料1と試料2での値はほぼ同じであり、保磁力測定で見られた両者の安定性の違いは、残留保磁力には反映されなかった。

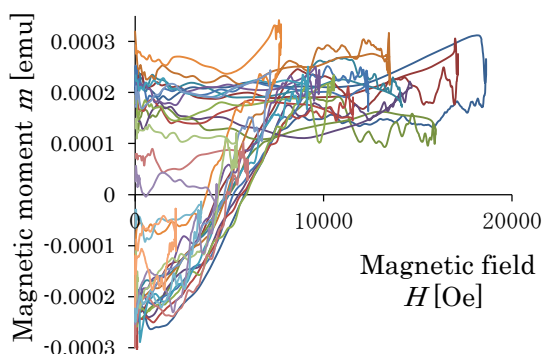


Fig. 1 $M-H$ curves of sample 1 measured using magneto-optical Kerr effect

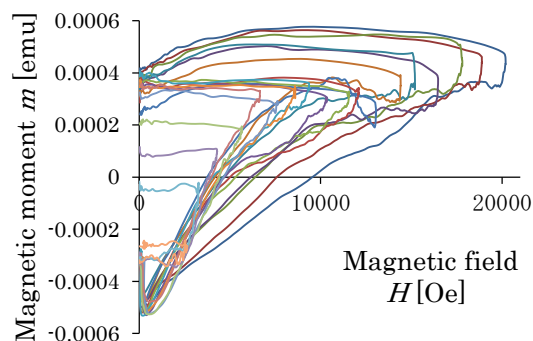


Fig. 2 $M-H$ curves of sample 2 measured using magneto-optical Kerr effect

希土類-遷移金属合金フェリ磁性体の電流磁気効果

笠谷雄一, 吉川大貴*, 塚本新

(日大理工, * 日本大院理工)

Galvanomagnetic effect of rare earth-transition metal ferrimagnets

Y. Kasatani, H. Yoshikawa*, and A. Tsukamoto

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

1 はじめに

近年、希土類-遷移金属合金フェリ磁性体において、全光型磁化反転¹⁾や非対称電流磁壁駆動²⁾などの興味深い磁化ダイナミクスが報告され、将来の高効率スピントロニクスデバイスへの応用の可能性が示唆されている。一方で、角運動量補償現象や磁化補償現象を発現するフェリ磁性体において、補償組成近傍でのスピンの振舞いは基礎物性の観点で重要であり、盛んに研究されている。

本研究では、希土類金属の磁性発現に寄与する $4f$ および $5d$ スピンと遷移金属磁性の発現に寄与する $3d$ スピンによる複雑なスピン系を有する希土類-遷移金属合金フェリ磁性体 GdFeCo において、磁化特性、電氣的測定および磁気光学測定による多面的な計測から各スピンの役割およびその振舞いを理解する。

2 実験方法

ガラス基板上に、マグネトロンスパッタリングにより、 $\text{SiN}(60 \text{ nm})/\text{Gd}_x(\text{Fe}_{0.875}\text{Co}_{0.125})_{100-x}(20 \text{ nm})/\text{SiN}(5 \text{ nm})$ ($x = 22, 23, 24, 25, 26$) 多層膜を成膜した。 GdFeCo の磁化状態の振る舞いを理解するために、超伝導量子干渉素子-試料振動型磁磁力計 (SQUID-VSM) を用いて試料薄膜の磁化特性を評価した。また、試料の電流磁気効果について検討を行うために、試料薄膜に4端子電極を接続し、面直および面内方向の外部磁場中で磁気抵抗測定およびホール測定を行った。さらに、試料薄膜を光学系に設置し、波長 634.8 nm の He-Ne レーザーを用いて磁気光学効果 (Faraday 効果、磁気光学 Kerr 効果) の測定を行った。各測定はすべて室温 (295 K) にて行った。

3 実験結果および考察

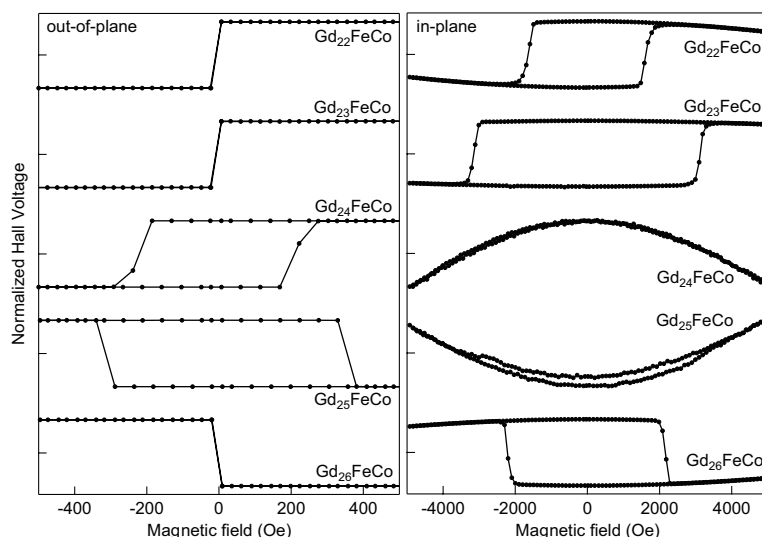


Fig. 1 Out-of-plane and in-plane magnetic field dependence of normalized Hall voltage.

Fig. 1 に各組成における規格化ホール電圧の面直および面内外部磁場依存性を示す。 $x \leq 24$ と $x \geq 25$ を比べると、ホール電圧の正負が反転していることがわかる。また、面直測定において、 $x = 24, 25$ において保磁力の急激な増加を観測した。一方で、磁気光学測定の結果、ほぼ同様の面直・面内磁場依存性を観測した。これより、 GdFeCo 系における電流磁気効果は伝導電子 (s 電子) と強くカップリングする $3d$ スピンが主要因であると考えられる。特に、面内磁場中でのホール測定の結果より、 $x = 22, 23, 24, 26$ では異常ホール効果が支配的であるのに対し、 $x = 25$ ではプレーナーホール効果が支配的であると考えられる。以上より、磁化補償組成近傍の各スピンの方向を検出することは磁気光学効果では極めて測定が困難であるが、電流磁気効果を用いることにより明確に特定することが可能となる。

謝辞

本研究は、平成 25-29 年度文部科学省私立大学戦略的基盤形成支援事業 (S1311020) および平成 26-30 年度文部科学省科学研究費補助金 新学術領域研究 (研究領域提案型) ナノスピン変換科学 (Grant No. 26103004) の助成により行われた。

References

- 1) C. D. Stanciu, F. Hamsteen, A. V. Kimmel, A. Kirilyuk, A. Tsukamoto, A. Itoh, and Th. Rasing: *Phys. Rev. Lett.*, **99**, 047601 (2007).
- 2) T. Tono, T. Taniguchi, K.-J. Kim, T. Moriyama, A. Tsukamoto, and T. Ono: *Appl. Phys. Exp.*, **8**, 073001 (2015).

イオン照射による Si 基板上 MnGa (001)配向膜の磁気パターンニング

石川 徹, 根来 翼, 大島 大輝, 加藤 剛志, 岩田 聡
(名古屋大学)

Ion-irradiation patterning of (001) oriented MnGa film grown on Si substrate

T. Ishikawa, T. Negoro, D. Oshima, T. Kato, S. Iwata
(Nagoya Univ.)

はじめに

イオン照射により材料の表面形状を変化させずに磁気的パターン構造を作製する手法は、低コストのビットパターン媒体 (BPM) 作製手法として有効である。我々は、大きな垂直磁気異方性を有する $L1_0$ -MnGa 規則合金膜に注目し、MnGa 膜への局所的イオン照射によるビットパターンの作製を行ってきた¹⁾。これまで、MgO(001)単結晶基板上的(001)配向 MnGa 膜のビットパターンについて報告してきたが、応用上安価なガラス基板等を用いる必要がある。そこで、我々は熱酸化膜付き Si 基板上に(001)配向 $L1_0$ -MnGa の成膜を試み²⁾、今回、この Si 基板上的(001)配向 $L1_0$ -MnGa 膜への局所的イオン照射による磁気パターン構造の作製を試みたので報告する。

実験方法

$L1_0$ -MnGa 規則合金膜の作製は、マグネトロンスパッタリング法にて行い、膜構成は Cr (2 nm) / MnGa (15 nm) / Cr (20 nm) / MgO (20 nm) / NiTa (25 nm) / Si sub. とした。なお、MgO 層のみ超高真空蒸着により室温で成膜した。MgO 層上の Cr バッファ層は室温でスパッタ成膜後、600℃で 60 分間、真空中で熱処理を行った。その後 100℃付近まで徐冷した後 MnGa 膜を成膜し、成膜後 $L1_0$ 規則化のため 400℃で 30 分間、真空中で熱処理を行った。なお、マグネトロンスパッタ室と真空蒸着室は高真空中で繋がれており、試料を大気暴露することなく成膜した。その後、電子ビーム露光装置および、イオン注入装置を利用して磁気パターン構造を形成した。

実験結果

Fig. 1(a)は、Si 基板上に作製した MnGa 膜の M - H ループを示している。なお、参考のため過去に報告した MgO(001) 基板上的 MnGa 膜の M - H ループも(b)図に示す。MgO(001)上の MnGa 膜に比べ、飽和磁化が 100 emu/cc と小さく、保磁力が 10 kOe と大きいことから、Si 基板上的 MnGa 膜は MgO(001)基板のものに比べ膜の均一性などが劣っていると考えられる。しかしながら、膜法線方向を容易軸とする大きな垂直磁気異方性を示しており、(001)配向の $L1_0$ -MnGa 膜が得られている。Fig. 2 は、この膜に局所的イオン照射をすることにより作製した(a) 1500 nm ピッチ、(b) 150 nm ピッチパターンの MFM 像である。ここには示していないが、膜の表面荒さは 1.2nm 程度であり、イオン照射による形状の変化は観測されなかった。(a)、(b)ともにイオン照射されたビット間の領域において磁気コントラストが消失しているが、イオン照射されていないビット内には磁気的な構造が観察される。しかしながら、100 nm 以下のピッチでは磁気的なパターン構造を確認することができなかった。この原因として膜の表面平坦性や膜の均一性が考えられる。今後は、バッファ層の検討などにより、Si またはガラス基板上的 $L1_0$ -MnGa 膜の配向性、均一性を向上させることで、より微細な磁気パターン構造の形成を目指す。

参考文献

- 1) D. Oshima et.al., IEEE Trans. Magn., vol.49, p.3608 (2013).
- 2) 根来翼 他, 第 38 回 日本磁気学会学術講演会, 3pA-2 (2014).

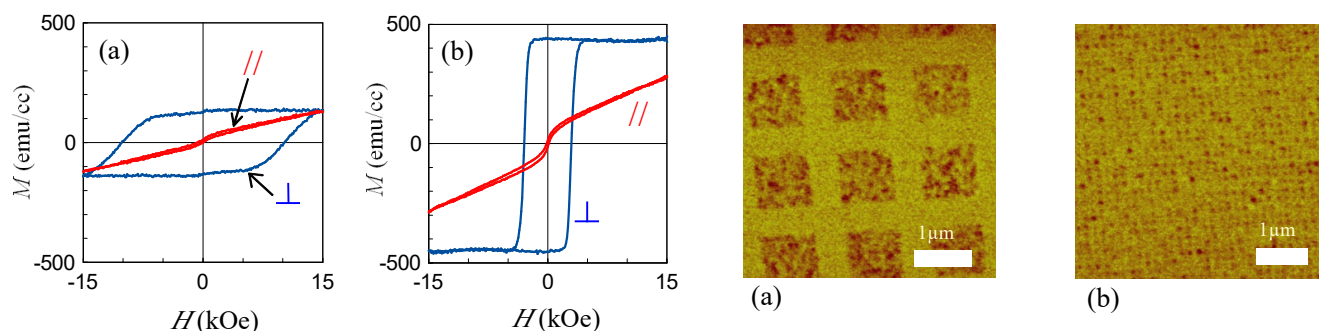


Fig. 1 (a) M - H loops of as-prepared MnGa film grown on Si substrate. M - H loops of MnGa grown on MgO (001) substrate are shown in (b) as a comparison. Fig. 2 MFM images of ion-beam patterned MnGa films with the pitch sizes of (a) 1500 and (b) 150 nm.

低エネルギー Kr^+ イオン照射による MnGa ビットパターン構造の作製

福田憲吾, 松永隆雅, 大島大輝, 加藤剛志, 岩田聡
(名古屋大学)

Fabrication of MnGa bit patterned structure by low energy Kr^+ ion irradiation

K. Fukuta, T. Matsunaga, D. Oshima, T. Kato, S. Iwata
(Nagoya Univ.)

はじめに

これまで我々は大きな垂直磁気異方性を持つ L_{10} -MnGa 膜に 30keV の Kr^+ イオンを照射することで MnGa 膜を非磁性化できることを示すと同時に, これを利用した高密度ビットパターン膜の作製を報告してきた。しかし, 更なる高密度化のためには, レジスト薄膜化による微細レジストパターン形成が必須であり, そのため照射イオンの低エネルギー化および MnGa 膜の薄膜化が必要となる。本研究では, 照射イオンのエネルギーを 10 keV とし, MnGa 膜厚を 15 nm から 10 nm および 5nm に薄膜化し, 微細ビットパターン構造を作製したので報告する。

実験方法

RF マグネトロンスパッタリング装置により Cr (2 nm) / MnGa (5 ~ 10 nm) / Cr (20 nm) / MgO(001) を成膜した。まず, MgO 基板上に 400 °C で Cr(20 nm) をスパッタ成膜し, 成膜後 600 °C で 60 分加熱処理した。次に, MnGa を 300 °C でスパッタ成膜し, L_{10} 規則化のため 400 °C で 30 分熱処理を行った。最後に保護膜として Cr (2 nm) をスパッタ成膜した。ビットパターン構造はサンプル上に ZEP520A レジストを塗布し, 電子ビーム露光によりレジストマスクを作製した後, 10 keV の一様な Kr^+ イオンを 3×10^{14} ions/cm² 照射した。その後, 酸素プラズマでレジストを除去した。なお, 微細パターン作成のため ZEP520A の膜厚を 40 nm まで薄くした。

実験結果

10 nm の MnGa は角型比 1 の垂直磁化膜となり, 大きな垂直磁気異方性を示すことを確認した。Fig. 1 に, 50 nm ピッチに加工したレジストパターンの走査型電子顕微鏡 (SEM) 像を示す。レジスト厚はそれぞれ(a)100 nm および(b)40 nm である。レジスト厚 100 nm ではレジストパターンが倒れてしまっているのに対し, レジスト厚 40 nm ではそのような様子は見られない。このようにレジスト厚を薄膜化することで, より微細なレジストパターンの形成が可能となることが分かる。Fig. 2 に 150nm ピッチで加工した MnGa ビットパターン膜の磁気力顕微鏡像を示す。イオン非照射領域 (ビット) は垂直磁化を保っており, 明暗のコントラストが得られているのに対し, イオン照射領域 (スペース) は非磁性化され磁気コントラストが消失しており, イオン照射により磁気パターンが形成できていることがわかる。レジスト厚を薄くした場合, 照射イオンのエネルギーを低くする必要があるが, 今回 40 nm のレジスト厚では 10 keV, 3×10^{14} ions/cm² のイオン照射で MnGa のパターン化が可能であることが分かった。

参考文献

- 1) D. Oshima et al., IEEE Trans., Magn., vol. 49, 3608 (2013)

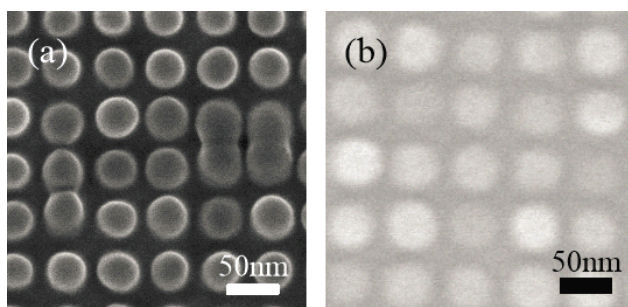


Fig. 1 SEM images of patterned ZEP520A resist with pitch size of 50 nm. Resist thicknesses are (a) 100nm and (b) 40nm.

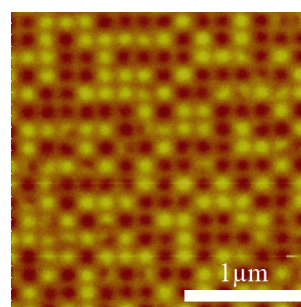


Fig. 2 MFM image of ion-beam patterned MnGa film with the pitch size of 150 nm.

イオン照射した MnGa 膜の磁気特性の温度依存性

大島大輝, 加藤剛志, 岩田聡
(名大)

Temperature dependence of magnetic properties of ion-irradiated MnGa films

D. Oshima, T. Kato, S. Iwata
(Nagoya Univ.)

はじめに

我々はこれまでに MnGa 膜を用いたイオン照射型のビットパターン媒体の作製に取り組んできた¹⁾. これは, 少量の Kr イオンを L1₀-MnGa 膜へ照射することで, 不規則相である A1-MnGa 膜へと遷移させ, 非磁性化することを利用して作製したものである. しかしながら, イオン照射による MnGa の磁性遷移過程については十分理解されていない. そこで本研究では, イオン照射された MnGa 膜の磁気特性の温度依存性を測定することにより, 強磁性 MnGa 相の活性化体積などを推定したので報告する.

実験方法

RF マグネトロンスパッタ法により単結晶 MgO (001) 基板上に Cr (2 nm) / MnGa (15 nm) / Cr (20 nm) / MgO (001) の膜構成で成膜した. Cr 層は基板温度 400 °C で成膜し, 600 °C で 60 min のポストアニールを行った. MnGa 層は基板温度 300 °C で成膜し, 400 °C で 60 min のポストアニールを行った. イオン注入装置を用い, 作製した MnGa 膜に 30 keV の Kr イオンを $5 \times 10^{12} \sim 2 \times 10^{14}$ ions/cm² の範囲で照射した. 磁気特性の温度依存性は物理特性測定装置 (PPMS) を用いて調べた.

実験結果

イオン照射前の MnGa 膜の飽和磁化 M_s は室温で 650 emu/cc であった. Fig. 1 にイオン照射前および照射後の MnGa 膜の保磁力 H_c の温度依存性を示す. イオン照射前の MnGa の H_c は 300 K で 1.5 kOe であったが, 50 K では 1.9 kOe と若干大きくなった. 一方, 照射量が 2×10^{13} ions/cm² の MnGa 膜では, 300 K の H_c が 2.7 kOe であるのに対し, 50 K では 12 kOe と 4.4 倍に増加した. 2×10^{13} ions/cm² 照射後の MnGa 膜の 300 K と 50 K における M_s はそれぞれ, 170 emu/cc, 210 emu/cc であった. また, トルク曲線から見積もった 300 K と 50 K における垂直磁気異方性定数 K_u はそれぞれ, 3.2, 6.5 Merg/cc となった. 300 K と 50 K の M_s および K_u を比較すると, 一軸異方性の材料における $K_u \propto M_s^3$ の関係²⁾を示している. 一方, $2 K_u / M_s$ から算出した異方性磁界 H_k は 300 K, 50 K でそれぞれ 38 kOe, 62 kOe となる. つまり, Fig. 1 で示した 2×10^{13} ions/cm² 照射後の MnGa 膜の低温での保磁力増加は H_k の増加だけでは説明できないことが分かった. 次に, イオン照射された MnGa 膜中では, 非磁性化された A1-MnGa マトリクス中に強磁性の L1₀-MnGa が分散したような構造をとっていると考え, Sharrock の式³⁾を用いて H_c の温度依存性のフィッティングを行い, 活性化体積を見積もった. Fig. 1 の実線は, Sharrock の式において試行周波数 $f_0 = 10^9$ Hz, 観測時間 $t = 100$ sec, 指数 $n = 0.5$, $K_u \sim 10^7$ erg/cc, 活性化体積 $V = 200$ nm³ とした結果である. イオン照射された MnGa 膜は膜厚方向に均一な構造を有すると仮定すると, 活性化体積 $V = 200$ nm³ は, $(3.7 \text{ nm})^2 \times 15 \text{ nm}$ に相当する. 照射量 2×10^{13} ions/cm² は $(2.2 \text{ nm})^2$ の面積にイオンが 1 つ照射されると計算されるが, これと活性化体積から見積もられる面積が同程度となることが分かった.

参考文献

- 1) D. Oshima et. al., *IEEE Trans. Magn.*, **49**, 3608 (2013).
- 2) H. B. Callen et. al., *J. Phys. Chem. Solids*, **27**, 1271 (1966).
- 3) M. P. Sharrock, *J. Appl. Phys.*, **76**, 6413 (1994).

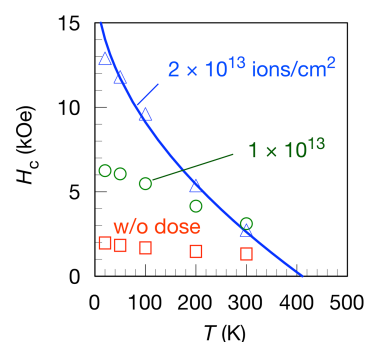


Fig. 1 Temperature dependence of coercivity H_c of MnGa films before and after the ion doses of 1×10^{13} and 2×10^{13} ions/cm². The solid line represents the fitted curve by Sharrock's equation³⁾.

Atomistic simulation of heat assisted linear reversal mode in nano-dots with perpendicular anisotropy

Y. Wang, T. Tanaka and K. Matsuyama

(Graduate School of Information Science and electrical Engineering, Kyushu Univ.)

1. Introduction

As a way to achieve ultra-high recording density in a hard disk or MRAM, so-called HAMR (Heat assisted magnetic recording), is promising to reduce or eliminate the energy barrier for magnetization reversal by laser irradiation heating or Joule heating. In particular, the magnetization process in the vicinity of the Curie temperature exhibits a linear reversal mode, in which the averaged magnetization is changing. In the present study, nano-dots with practical perpendicular anisotropy are focused, and atomic level spin dynamics in the linear reversal mode was numerically investigated with atomistic simulations. Dependence of switching properties on thermal pulse intensity and duration were also systematically studied.

2. Numerical model

The ferromagnetic nano-dot was numerically modeled by a cubic magnetic moment lattice ($9 \times 9 \times 9$, $\mu = 3.2\mu_B$) with nearest neighbor exchange coupling ($J_{ij} = 3.5 \times 10^{-15}$ erg/link) and single ion anisotropy ($K = 3.5 \times 10^{-15}$ erg), where the $L1_0$ FePt was assumed as a material system. The dot size is expected to be 3.4 nm assuming the lattice constant of 0.38 nm for FePt. The anisotropy energy of the dot is evaluated as 2.6×10^{-12} erg ($= 62$ k_BT, @T=300 K). Atomistic simulations were performed by discretizing the Langevin-LLG equation, based on 3-dimensional Heisenberg Hamiltonian, in time increments of 10^{-16} s. Thermal disturbance effect was introduced as a heat equivalent random Langevin fields model. Currie temperature evaluated from simulated Arrott plot was 750 K.

3. Results of discussion

As for a preliminary simulation, time transient of the averaged magnetization change caused by a rectangular heat pulse (magnitude $\Delta T = 500$ K) application is simulated as shown in Fig. 1, which exhibits exponential demagnetization process with relaxation time of 2 ps and tail-less fast ordering time of 2 ps. Heat assisted magnetization reversal process with Gauss thermal pulse with various pulse width T_w are compared in Fig. 2. The fast magnetization reversal time of several 10ths ps can be associated with the linear reversal mode accompanied with significant averaged magnetization reduction. Heat assisted reversal probability were studied for various heat pulses amplitude ΔT and width T_w , as shown in Fig. 3(a) and 3(b). It shows the thermal pulse width dependence of the magnetization reversal probability when performing the magnetization reversal in Fig. 3(b). The results reveal that superior heat assisted effect is performed at T_w longer than the relaxation time of 40 ps, and the elevated temperature should be higher than the Currie temperature T_c . Fig. 4 compares the magnetization reversal field for with and without the heat assist.

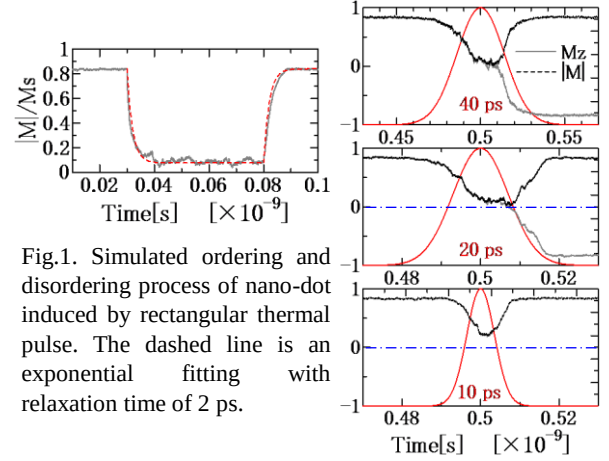


Fig.1. Simulated ordering and disordering process of nano-dot induced by rectangular thermal pulse. The dashed line is an exponential fitting with relaxation time of 2 ps.

Fig.2. Magnetization dynamics for a 10 kOe downward external field and Gauss thermal pulse with $\Delta T = 500$ K at an ambient temperature of 300 K.

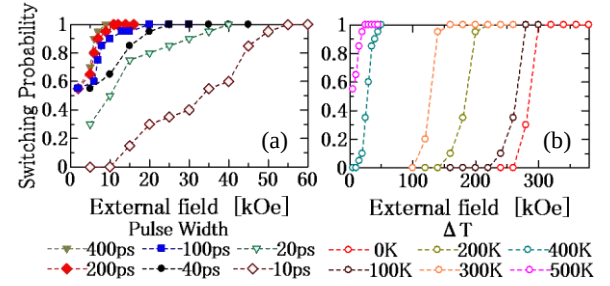


Fig.3. Magnetization reversal probability for various thermal pulse width T_w (a), and magnitude ΔT (b).

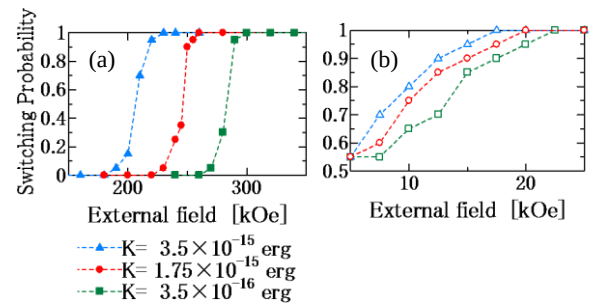


Fig.4. Dependence of magnetization reversal field on single ion anisotropy for with and without the heat assist: (a) $T_w = 40$ ps, $\Delta T = 0$ K, (b) $T_w = 40$ ps, $\Delta T = 500$ K.

Though the drastic reduction of the reversal field can be achieved with the optimized thermal pulse, the reversal field still depends on the single ion anisotropy even if the averaged magnetization and the resultant energy barrier is disappeared.

Reference

- 1) R. F. L. Evans, *et al. Appl. Phys. Lett.* **105**, 192405(2014)
- 2) M. O. A. Ellis, *et al. Appl. Phys. Lett.* **106**, 162407(2015)

孤立磁化転移の高速応答のための記録条件

廣川祐生、村岡裕明
(東北大学 電気通信研究所)

Recording conditions for high-speed response of isolated magnetization transition

Y. Hirokawa and H. Muraoka
(RIEC, Tohoku University)

はじめに

ハードディスク装置 (HDD) の高密度化のため瓦書き記録等の多くの記録方式が検討されている。同時に、ストレージ装置として大容量の情報を転送するには高速のデータレートが求められており、そのためには高線密度で磁化転移幅を狭くする必要がある。ここでは孤立磁化転移波形から高線速度においても狭い磁化転移幅で実現するための条件を計算により求めた

計算方法

本計算では、ヘッド-ディスク相対速度、記録電流立ち上がり時間、ヘッド記録磁界勾配、媒体粒子の反転磁界分布 (SFD) に対して孤立磁化転移と磁化転移幅を計算した。ヘッド磁界はヘッド電流に遅れなく理想的に追従できるとし、SFD をガウス分布と仮定して各記録点での印加磁界の逐次変化に応じた記録残留磁化を計算した。Fig.1 は時刻 $t=t_0$ で記録電流が反転する際のある記録点が受ける印加磁界の経時変化を表しており、それぞれの実線は時刻 t でのヘッド磁界分布を表している。また、メディアは左から右に移動し、図の黒点が時刻 t でのメディアの位置 x を表している。この時受ける印加磁界を上界として反転磁界分布を積分することで記録磁化を計算した。また、初期条件をヘッド-ディスク相対速度; 5400 rpm, 記録電流立ち上がり時間: 1.0 ns, ヘッド記録磁界勾配: 300 Oe/nm, SFD: 10 % と設定している。

計算結果

種々のパラメータを変化させた時の孤立転移波形を Fig.2 に示す。(a), (c), (e) がそれぞれの孤立転移を表し、(b), (d), (f) に孤立磁化分布から求めた時間で表した磁化転移幅 (ns) を表している。ヘッド記録磁界勾配や SFD を改善することにより記録磁化の転移間隔が減少し、高速に磁化を反転させられることが示された。一方で記録電流立ち上がり時間が転移間隔に与える影響は小さい結果が得られた。記録電流の立ち上がり時間が 5 ns 程度以上と極めて大きくなければ SFD や記録磁界勾配などの分解能要因の方が影響が大きい。

参考文献

- 1) R. Wood, M. Williams, A. Kavcic, J. Miles, IEEE Trans. Magn., 45,917~923 (2009)

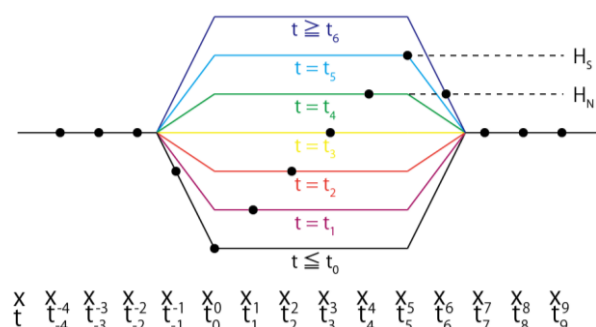


Fig.1 記録点を受ける印加磁界の経時変化

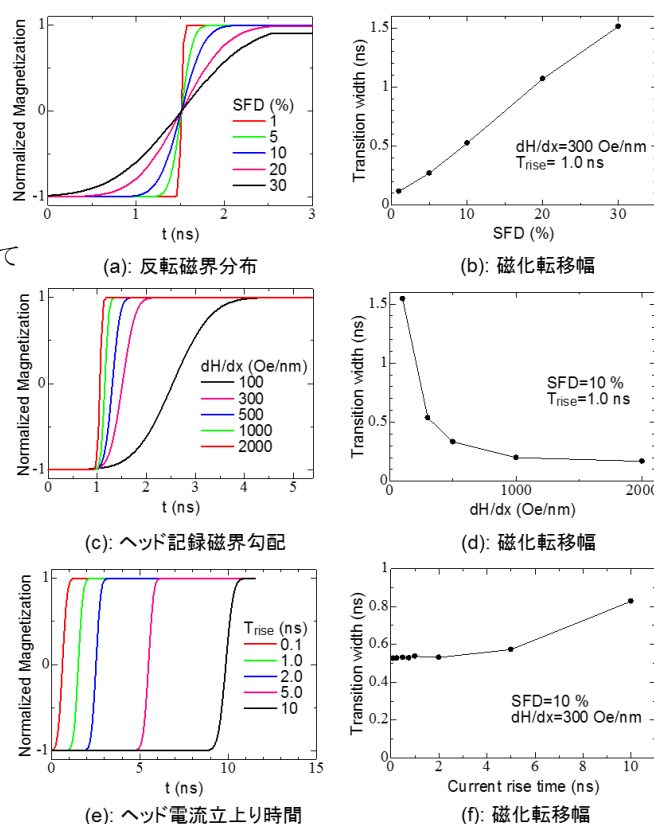


Fig.2 孤立磁化転移のパラメータ依存性

a,b: SFD, c,d: ヘッド記録磁界勾配
e,f: 記録電流立ち上がり時間

傾斜異方性記録媒体における磁化反転時間の検討 Magnetization switching time of graded anisotropy recording media

秋田谷尚紀 Simon Greaves 村岡裕明

東北大学電気通信研究所

Naoki Akitaya Simon Greaves Hiroaki Muraoka

RIEC, Tohoku University

まえがき

ハードディスクドライブ(HDD)は大容量化とともに転送レートの向上も求められている。記録時の転送レートを向上するには記録媒体の磁化反転時間を短くする必要がある。磁気異方性を徐々に変化させる傾斜磁気異方性を持つ積層記録媒体は熱安定性を維持しながら反転磁界を下げることが知られているが、その磁化反転時間についての検討はまだ少ない。本報告では、マイクロマグネティックシミュレーションにより傾斜磁気異方性の反転時間について検討を行った。

計算方法

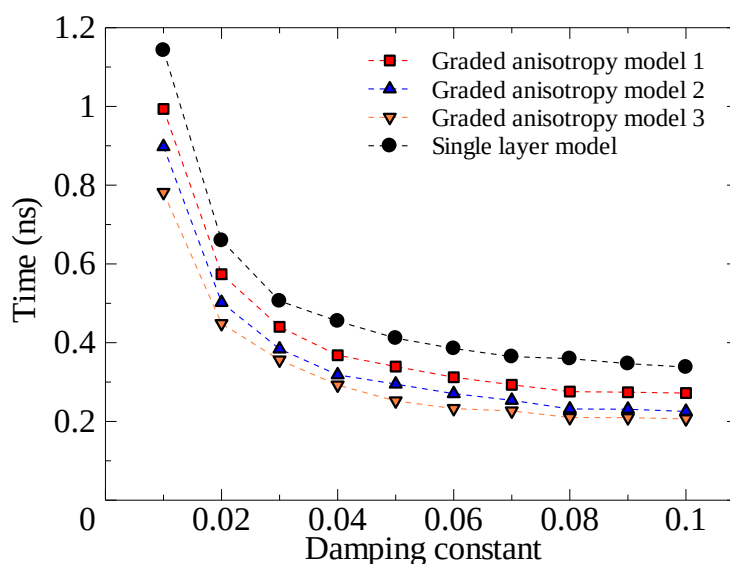
本検討では LLG 方程式によるシミュレーション[1]により計算を行った。媒体中の自制粒子を直方体の単粒子としてモデリングし、ダンピング定数と異方性磁界定数 K_u を傾斜して変化させて全体としての磁化反転時間を計算した。主な計算条件を表 1 に示す。ヘッドにはシングルポールタイプ(SPT)ヘッドを用い、記録ヘッドをスタート位置を変化させながら 10 m/s の線速度で動かし、磁化反転時間が最短となった位置での値を反転時間とした。ダンピング定数は 0.01 から 0.1 まで変化した。傾斜磁気異方性モデルでは Fig.1 のように上層から下層にかけて徐々に K_u を大きくし、モデル 1 では $3.6 \sim 6.4 \text{ erg/cm}^3$ 、モデル 2 では $2.2 \sim 7.8 \text{ erg/cm}^3$ 、モデル 3 では $0.8 \sim 9.2 \text{ erg/cm}^3$ まで線形的に変化させた。単層モデルでは K_u を一定とした。反転時間は磁界が印加されてから磁化が収束したときの 90 % の大きさになるまでの時間とした。

結果と考察

Fig.2 に傾斜磁気異方性モデルと単層モデルの反転時間のダンピング定数依存性を示す。すべての場合において、ダンピング定数が小さくなるほど反転時間が長くなった。特に、単層モデルに比べて傾斜磁気異方性モデルの方が磁化反転時間が短くなり、また異方性傾斜が大きいほど反転時間が短くなった。本検討で傾斜が最も大きいときの反転時間は、単層モデルの約 0.6 倍に高速化された。今回、ダンピング定数を粒子全体で一定としているが、さらにダンピング定数を層ごとに变化させることで磁化反転時間をより短くできる可能性がある。

Table.1 Calculation Conditions

モデル	7 nm × 7 nm × 15 nm
平均異方性磁界定数	$5.0 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$
飽和磁化	800 emu/cm^3
SPT ヘッドのサイズ	50 × 60 × 500 nm
SPT ヘッドの飽和磁化	1910 emu/cm^3
SUL の飽和磁化	1600 emu/cm^3
ヘッドの速度	10 m/s
温度	4.2 K



参考文献

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

熱アシスト磁気記録の新しいモデル計算 (1)

犬飼 文也, 榎本 好平, 小林 正, 藤原 裕司
(三重大)

A new model calculation for HAMR (1)

F. Inukai, K. Enomoto, T. Kobayashi, Y. Fujiwara
(Mie Univ.)

はじめに

試行周期 τ_{AP} ごとのグレイン磁化反転確率 P を用いた熱アシスト磁気記録のための新しいモデル計算を提案する¹⁾.

計算方法

キュリー温度 T_C を 700 K, 異方性定数比 K_u/K_{bulk} を 0.4, 温度勾配を 15.1 K/nm, 媒体の温度が T_C になった時の時間 τ を 0, 最小磁化遷移間隔 τ_{min} を 0.68 ns とした. 書き込み時において, $\tau_{AP} = 0.01$ ns ごとの $P_{\pm}$ の時間変化を Fig. 1 に示す. ここで, 書き込み磁界 H_W に対して, 磁化 M_S が反平行から平行に変わる P を P_- , 平行から反平行に変わる P を P_+ とした.

Fig. 1 の $P_{\pm}$ から M_S の方向が決まり, M_S が記録方向を向いているグレイン面積の和からビットエラーレートbERを求めた. bERの時間変化を Fig. 2 に示す. ここで, 面記録密度を 4 Tbps, ビットあたりのグレイン数を 4 個, グレインサイズの標準偏差を 10 % とした. また, H_W は $0 \leq \tau < \tau_{min}$ で上向き(記録方向), それ以外は下向きとした.

計算結果

Fig. 2 において, H_W が 2.0 kOe と低い時, $0 \leq \tau < \tau_{min}$ で bER が下がりきっていない. すなわち, write-error (WE) となっている. これは Fig. 1 を用いて説明できる. $H_W = 2.0$ kOe の時, $\tau = 0$ から P_+ と P_- はどちらも同じように低下し, M_S が記録方向に向く確率 P_- は大きくなく, 記録方向から反転する確率 P_+ も小さくない. 一方, Fig. 2 において H_W が 15.9 kOe と高い時には, $0 \leq \tau < \tau_{min}$ で bER は十分低くなっているが, $\tau_{min} \leq \tau$ で bER が上昇している. すなわち, erasure-after-write (EAW) となっている. Fig. 1 において, $H_W = 15.9$ kOe のとき, $0 \leq \tau < \tau_{min}$ では P_- は十分大きく, P_+ は十分小さいので bER は低い. しかし, $\tau_{min} \leq \tau$ では H_W が反転するが, その時 P_- は十分小さくないので, M_S が H_W の方向(記録方向と反対方向)に再反転している.

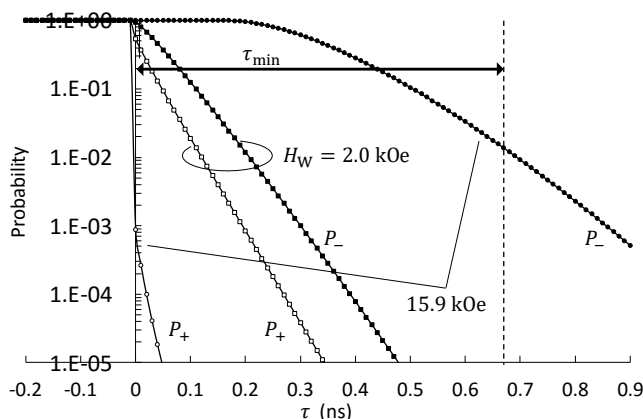


Fig. 1 Dependence of reversal probability of grain magnetization on time for writing fields $H_W = 2.0$ and 15.9 kOe

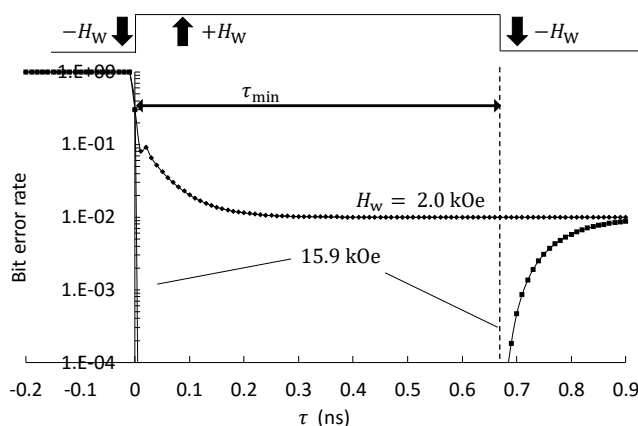


Fig. 2 Dependence of bit error rate on time for writing fields $H_W = 2.0$ and 15.9 kOe

ここで提案した新しいモデル計算では, Fig. 2 のように WE と EAW を簡単に求めることができる.

本研究の一部は情報ストレージ研究推進機構 (ASRC) 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.: submitted to J. Magn. Soc. Jpn.

熱アシスト磁気記録の新しいモデル計算 - recording time window - (2)

榎本 好平, 犬飼 文也, 小林 正, 藤原 裕司
(三重大)

A new model calculation for HAMR - recording time window - (2)

K. Enomoto, F. Inukai, T. Kobayashi, Y. Fujiwara
(Mie Univ.)

はじめに

熱アシスト磁気記録の記録特性の指針として, recording time window τ_{RW} が提案されているが¹⁾, ここでは新しいモデル計算を用いて τ_{RW} の意味を考える.

計算結果

計算方法は以前と同じである.²⁾ 書き込み時において, 書き込み磁界 H_w に対して, 磁化が反平行から平行に変わるグレイン磁化反転確率 P_+ の時間 τ に対する変化を Fig. 1 に示す. 媒体の温度が $T_c = 700$ K になった時の τ を 0 とし, 最小磁化遷移間隔を 0.68 ns とした. 媒体の温度が T_c から $H_c = H_w$ となる温度まで下がる時間, 言い換えると, $\tau = 0$ から P_+ が 1 である時間が τ_{RW} である. ここで, H_c は保磁力である. τ_{RW} は, H_w , 異方性定数比 K_u/K_{bulk} , 温度勾配 $\partial T/\partial x$, 線速度 v の関数である. $K_u/K_{bulk} = 0.4$, $v = 10$ m/s とすると, (a) $H_w = 10.6$ kOe, $\partial T/\partial x = 11.7$ K/nm の組み合わせでは $\tau_{RW} = 0.1$ ns となるが, (b) $H_w = 8.7$ kOe, $\partial T/\partial x = 7.8$ K/nm の組み合わせでも $\tau_{RW} = 0.1$ ns となる. しかし $\partial T/\partial x$ が大きい(a)の方が τ_{RW} 以降の P_+ の減少割合が大きい.

(a)と(b)のビットエラーレート bER の時間変化を Fig. 2 に示す. H_w は $0 \leq \tau < \tau_{min}$ で上向き(記録方向), それ以外で下向きとした. (a)と(b)も τ_{RW} が同じであるので, $0 \leq \tau < \tau_{min}$ の write-error (WE) の bER の低下割合はほぼ同じであるが, $\tau_{min} \leq \tau$ の erasure-after-write (EAW) に関しては, P_+ が小さい(a)の方が bER が低い.

以上より, bER は τ_{RW} だけでは決まらない. $P_+ = 1$ ($\tau = \tau_{RW}$) から, EAW の bER が 10^{-3} になる P_+ まで下がるのに必要な冷却時間として, cooling time window τ_{CW} という概念を導入する. Fig. 1 の(a)では $\tau_{CW} = 0.58$ ns となっている.

以前の結果²⁾も考慮して, WE に対して bER を十分に下げるには,

$$\tau_{RW} \geq \tau_{AP} - (1)$$

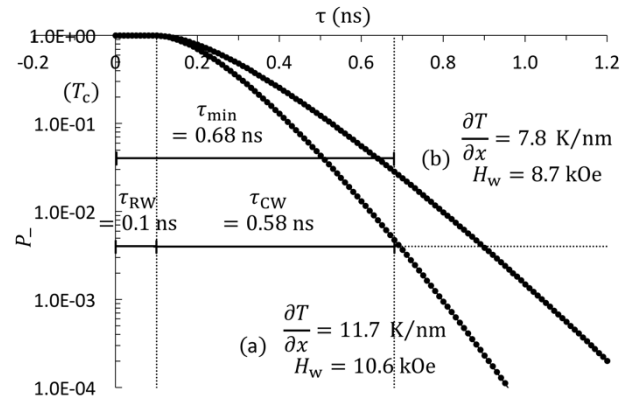


Fig. 1 Dependence of reversal probability of grain magnetization on time for thermal gradients $\partial T/\partial x = 7.8$ and 11.7 K/nm.

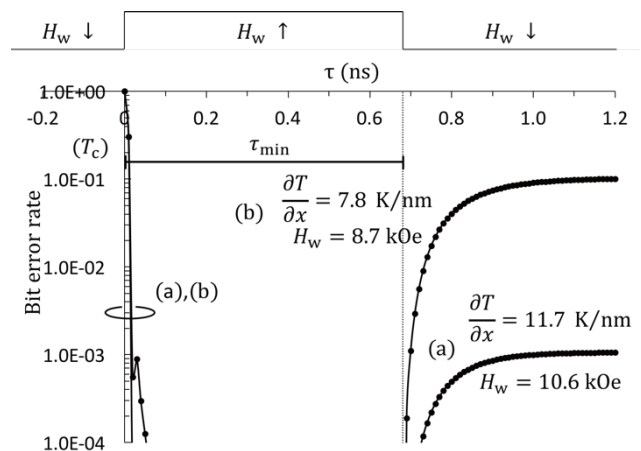


Fig. 2 Dependence of bit error rate on time for thermal gradients $\partial T/\partial x = 7.8$ and 11.7 K/nm.

EAW に対して bER を十分下げるには

$$\tau_{min} \geq \tau_{RW} + \tau_{CW} - (2)$$

という条件が必要である. ここで τ_{AP} は試行周期である.

本研究の一部は情報ストレージ研究推進機構 (ASRC) 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) J. Zhu and H. Li : IEEE Trans. Magn., **49**, 765 (2013).
- 2) 熱アシスト磁気記録の新しいモデル計算 (1)

熱アシスト磁気記録の新しいモデル計算 - キュリー温度分散 - (3)

榎本 好平, 犬飼 文也, 小林 正, 藤原 裕司
(三重大)

A new model calculation for HAMR – Curie temperature variation – (3)

K. Enomoto, F. Inukai, T. Kobayashi, Y. Fujiwara
(Mie Univ.)

はじめに

熱アシスト磁気記録において、媒体にキュリー温度 (T_c) 分散があると、SN 比が急激に悪くなることが報告されている¹⁾。ここでは新しいモデル計算を用いて T_c 分散について考える。

計算結果

計算方法は以前と同じである²⁾。平均キュリー温度 $T_{cm} = 700$ K, 異方性定数比 $K_u/K_{bulk} = 0.4$, 温度勾配 $\partial T/\partial x = 15.1$ K/nm, 最小磁化遷移間隔 $\tau_{min} = 0.68$ ns とする。Fig. 1 にビットエラーレート bER の書き込み磁界 H_w に対する依存性を示す。 T_c の標準偏差を σ_{T_c} とすると、 σ_{T_c}/T_{cm} が大きくなるに従って急激に bER が悪くなる。この原因を Fig. 2, Fig. 3 を用いて説明する。

Fig. 2, Fig. 3 は $\sigma_{T_c}/T_{cm} = 4\%$ においてグレインの磁化反転確率 P_- の時間 τ に対する変化を示したものである。ここで媒体の温度が T_{cm} になった時の τ を 0 ns とした。 H_w は $0 \leq \tau < \tau_{min}$ は上向き(記録方向), それ以外は下向きとした。 T_c が T_{cm} から σ_{T_c} だけ変化すると、 $\tau_{T_c} = \sigma_{T_c} / ((\partial T/\partial x) \cdot v)$ で定義される T_c variation window だけ記録時間が前後する。ここで v は線速度である。 H_w が低いと、主に T_c の高いグレインが write-error (WE) を起こして bER が悪くなる。 $H_w = 6.6$ kOe の Fig. 2 では、 H_w が下向きである $\tau < 0$ において $T_c = T_{cm} + \sigma_{T_c}$ のグレインは温度が T_c より低く、下向き(記録方向と反対方向)に記録される。 $\tau = 0$ において H_w の方向が上向き(記録方向)に変わる。recording time window τ_{RW} が 0.03 ns と短いので、 $\tau = 0$ における P_- はかなり小さく、記録方向に再反転する確率は低く、WE を起こしている。しかし $T_c = T_{cm} - \sigma_{T_c}$ のグレインの P_- は $\tau = \tau_{min}$ においてかなり小さく、erase-after-write (EAW) はあまり起きない。一方、 H_w が高いと、主に T_c の低いグレインが EAW を起こして bER が悪くなる。 $H_w = 14.3$ kOe の Fig. 3 では、 H_w が高いので τ_{RW} が 0.14 ns と長くなる。この場合は $T_c = T_{cm} + \sigma_{T_c}$ の時、 $\tau = 0$ において P_- は 1 に近く WE はほとんど起こらない。しかし、 τ_{T_c} , τ_{RW} と cooling time window τ_{CW} の和が長くなり、 $T_c = T_{cm} - \sigma_{T_c}$ の時、 $\tau = \tau_{min}$ において P_- が小さくなく、EAW が生じている。

以上より T_c 分散があると、 H_w を高くして WE を減らしても、EAW が増加するので、bER は低くならない。

本研究の一部は情報ストレージ研究推進機構 (ASRC) 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) H. Li and J. Zhu : J. Appl. Phys., **115**, 17B744 (2014).
- 2) 熱アシスト磁気記録の新しいモデル計算 (1)

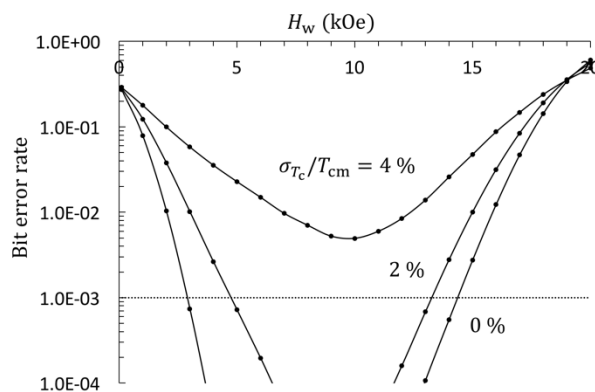


Fig. 1 Dependence of bit error rate on writing field H_w for $\sigma_{T_c}/T_{cm} = 0, 2$ and 4% .

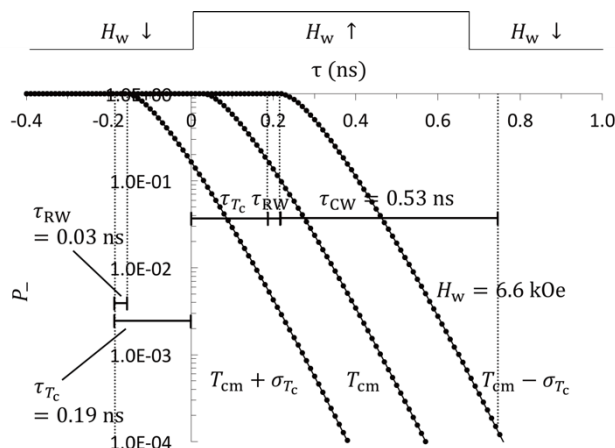


Fig. 2 Dependence of reversal probability of grain magnetization on time for writing field $H_w = 6.6$ kOe.

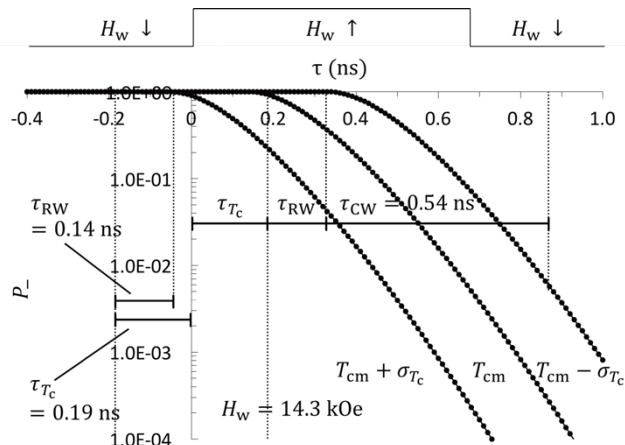


Fig. 3 Dependence of reversal probability of grain magnetization on time for writing field $H_w = 14.3$ kOe.

熱アシスト磁気記録の新しいモデル計算 - キュリー温度分散 - (4)

犬飼 文也, 榎本 好平, 小林 正, 藤原 裕司
(三重大)

A new model calculation for HAMR – Curie temperature variation – (4)

F. Inukai, K. Enomoto, T. Kobayashi, Y. Fujiwara
(Mie Univ.)

はじめに

熱アシスト磁気記録において, 媒体にキュリー温度 (T_c) 分散があると, SN 比やビットエラーレート bER が急激に悪くなる^{1,2)}. ここでは bER を改善する方法を新しいモデル計算を用いて考える.

計算結果

平均キュリー温度 $T_{cm} = 700$ K, T_c の標準偏差を σ_{Tc} とし, $\sigma_{Tc}/T_{cm} = 4\%$, 最小磁化遷移間隔 $\tau_{min} = 0.68$ ns, 書き込み磁界 H_w を 14.3 kOe とする. 近似的に, write-error (WE) に対しては, 以前の(1)式³⁾に τ_{Tc} を加えて

$$\tau_{RW} \geq \tau_{Tc} + \tau_{AP} \approx \tau_{Tc} - (1')$$

erasure-after-write (EAW) に対しては, 以前の(2)式³⁾に τ_{Tc} を加えて

$$\tau_{min} \geq \tau_{Tc} + \tau_{RW} + \tau_{CW} - (2')$$

の条件が必要となる. ここで τ_{RW} は recording time window, τ_{Tc} は T_c variation window, τ_{CW} は cooling time window である. τ_{RW} は τ_{Tc} 程度に長く, τ_{CW} と τ_{Tc} は短くする必要がある.

異方性定数比 K_u/K_{bulk} を 0.4²⁾ から 0.8 に増加させたときの, グレインの磁化反転確率 P_L の時間 τ に対する変化を Fig. 1 に示す. K_u/K_{bulk} を大きくすると, 時間に対する保磁力の増加割合が大きくなるので, $\tau_{Tc} + \tau_{RW} + \tau_{CW}$ は短くなるが, 同時に τ_{RW} も 0.14 ns²⁾ から 0.03 ns に短くなってしまい, bER の改善効果は小さい.

温度勾配 $\partial T/\partial x$ を 15.1 K/nm²⁾ から 30.1 K/nm に増加させたときの, P_L の時間変化を Fig. 2 に示す. この場合も τ_{RW} は 0.07 ns に短くなってしまいが, 同時に τ_{Tc} も 0.19 ns²⁾ から 0.09 ns に短くなるので, bER の改善の効果がある.

T_{cm} を高くして, 書き込み温度を高くすると, 記録ヘッドや表面潤滑剤の耐熱性の問題はあるが, 同時に $\partial T/\partial x$ を大きくできる. また $\partial T/\partial x$ の大きな媒体構造の検討も有効と思われる.

また (2') 式から, τ_{min} を長くする, すなわちビットピッチを長くすることも考えられる. その場合には, トラックピッチが狭くなるので, adjacent track interference (ATI) が悪化する. したがって同時に ATI

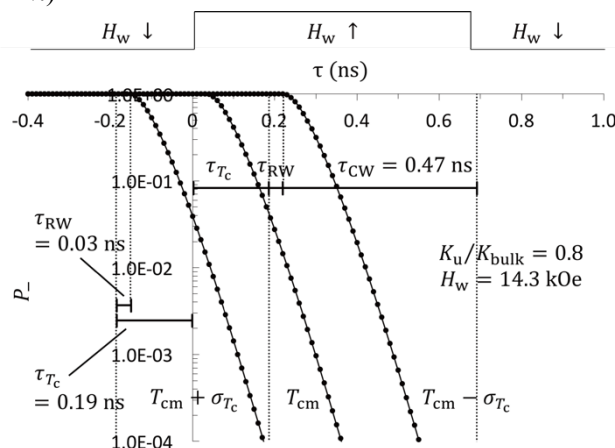


Fig. 1 Dependence of reversal probability of grain magnetization on time for anisotropy constant ratio $K_u/K_{bulk} = 0.8$.

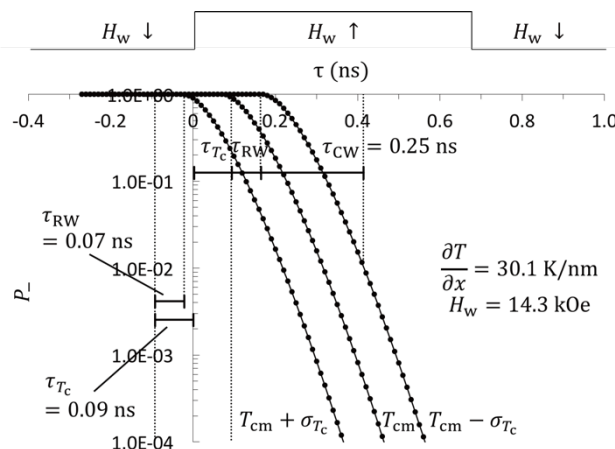


Fig. 2 Dependence of reversal probability of grain magnetization on time for thermal gradient $\partial T/\partial x = 30.1$ K/nm.

の改善も必要である. ATI の改善方法としては, K_u/K_{bulk} , $\partial T/\partial x$ の増加, あるいは shingled magnetic recording を組み合わせることが考えられる.

本研究の一部は情報ストレージ研究推進機構 (ASRC) 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) H. Li and J. Zhu : J. Appl. Phys., **115**, 17B744 (2014).
- 2) 熱アシスト磁気記録の新しいモデル計算 (3)
- 3) 熱アシスト磁気記録の新しいモデル計算 (2)

動力学的スピン注入法を用いたペンタセン蒸着膜のスピン輸送

仕幸英治、谷 泰雄、手木芳男*

(阪市大院工、*阪市大院理)

Spin transport in thermally-evaporated pentacene films by using a dynamical spin injection method

E. Shikoh, Y. Tani, Y. Teki*

(Osaka City Univ. Eng., *Osaka City Univ. Sci.)

はじめに

近年、純スピン流を用いた分子材料のスピン輸送の研究が注目され、これまでにスピコート法で作製された高分子薄膜等においてスピン輸送が達成されている^{1,2)}。本研究では応用展開の観点から、一般的な真空蒸着法で成膜可能な低分子量材料のスピン輸送に注目する。ペンタセン分子（分子構造を Fig. 1. に示す）の薄膜は蒸着法による膜でも高い結晶性を有し、比較的高い導電性を有する³⁾。これまでにスピン偏極電流を用いたペンタセン薄膜のスピン輸送が試みられたことがあるが⁴⁾、外的要因の排除が困難だった。本研究では純スピン流を生成可能で、且つ、異種材料界面でのコンダクタンスミスマッチ⁵⁾が無視できるとされるスピンポンピング（動力学的スピン注入法）を用い、ペンタセン蒸着膜のスピン輸送特性を室温で評価した⁶⁾。

実験方法

電子ビーム蒸着法および抵抗加熱蒸着法を用いて Fig. 1 に示す「パラジウム Pd(膜厚 10 nm)/ペンタセン(d)/Ni₈₀Fe₂₀(25 nm)」の三層構造試料を作製した。強磁性共鳴 FMR を用いたスピンポンピングにより Ni₈₀Fe₂₀ からペンタセンへ純スピン流 J_S が生成され、その J_S は Pd へと吸収される。吸収された J_S は Pd 中で逆スピンホール効果 ISHE⁷⁾により起電力 E に変換される。そのため、Ni₈₀Fe₂₀ の FMR 下において、Pd の ISHE による起電力が観測されればペンタセン薄膜のスピン輸送達成の証拠になる。FMR の励起には電子スピン共鳴装置を、起電力の検出にはナノボルトメータを用いた。評価は全て室温で実施した。

実験結果

Fig. 2 に $d = 50$ nm 試料の(a)FMR スペクトルと(b)FMR 磁場付近における Pd からの出力電圧特性を示す。高周波の出力は 200 mW である。FMR 磁場付近において、静磁場 H に対する反転対称性を示す出力電圧特性が観測されている。また、観測された出力電圧は高周波出力に比例した。一方、比較のために Pd の代わりに、スピン軌道相互作用の小さな Cu を用いたところ、その試料からは明確な起電力が得られなかった。以上により観測された出力電圧は Pd の ISHE による起電力と結論した。すなわち、ペンタセン蒸着膜のスピン輸送に成功、しかも室温で達成した⁶⁾。更に起電力のペンタセン膜厚依存性の評価により、ペンタセン蒸着膜のスピン拡散長を約 42 nm と見積もった⁶⁾。学会時には以上の詳細と併せて薄膜の結晶性の影響についても議論する。

参考文献

- 1) S. Watanabe, *et al.*, Nature Phys. **10**, 308 (2014).
- 2) M. Kimata, *et al.*, Phys. Rev. B **91**, 224422 (2015).
- 3) H. Cheng, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **90**, 171926 (2007).
- 4) T. Ikegami, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **92**, 153304 (2008).
- 5) G. Schmidt, *et al.*, Phys. Rev. B **67**, R4790 (2000).
- 6) Y. Tani, Y. Teki, **E. Shikoh**, Appl. Phys. Lett. **107**, 242406 (2015).
- 7) E. Saitoh, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **88**, 182509 (2006).

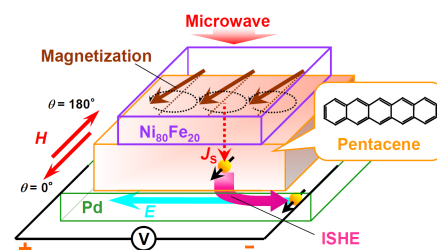


Fig. 1. Sample structure and evaluation method.

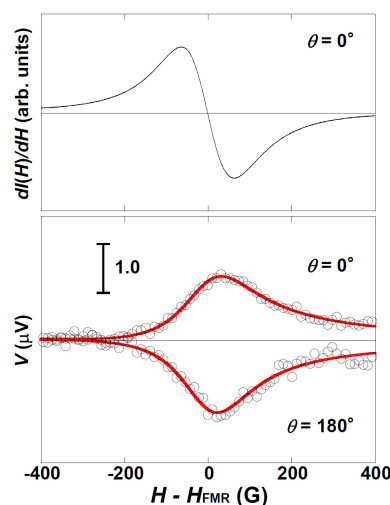


Fig. 2. (a) An FMR spectrum. (b) Output voltage property under the FMR.

CoFeAl 薄膜の熱伝導特性と高効率熱スピン注入

野村竜也^A, 有木大晟^A, 植松銀河^A, 木村崇^{A, B}

(九大物理^A, スピン物性セ^B)

Thermal transport and efficient thermal spin injection in CoFeAl film

T. Nomura^A, T. Arikawa^A, G. Uematsu^A, T. Kimura^{A, B}

(^ADept. of Physics, Kyushu Univ., ^BResearch Center for Quantum Nano-spin Sciences.)

はじめに

電気の代わりに熱を利用する熱スピン注入現象(1)は、新奇な熱電素子やワイヤレス給電など、新しいスピンドバイスへの展開を期待させる興味深い現象である。我々は、CoFeAl 合金が熱スピン注入に適したバンド構造を有しているため、極めて効率的にスピン流を熱励起できることを実証した(2)。これらの実験においては、Fig.1 に示すように、熱スピン注入により発生したスピン蓄積を、スピンプルブ効果を用いて電気的に検出することにより評価しており、検出端子の磁化と熱流の相互作用により生じるスピン流と無関係な疑似信号を完全に排除でき、信頼性の高い評価が可能になる。今回は、高い熱スピン注入効率を確実に有している CoFeAl 薄膜と Pt 薄膜で構成される二層膜に外部熱源を接続した熱電素子を試作し、その発電性能を評価した。

実験方法

試作した素子の模式図と検出された磁場依存性の信号を図 2(a)に示す。素子は、CoFeAl/Pt 二層膜の上部に SiO₂ を成膜し、電気的に絶縁した後に、加熱用の Pt 電極を最上部に作製した。ここで、上部の Pt 電極に大電流を流すことで、ジュール熱を発生させ、CoFeAl/Pt 界面に熱流を引き起こす。これにより、CoFeAl から Pt への熱スピン注入が生じる。外部磁場を図のように印加することで、Pt 層に逆スピホール効果に起因した電圧が発生する。そのスピホール電圧のヒーター電流依存性、及び温度依存性などを調べ、熱電素子の性能を評価した。ここで、電圧端子間の抵抗は 80 Ω である。

実験結果

図 2(b)に、検出されたスピホール電圧のヒーター電流依存性を示す。図に示すように、電圧変化は、ヒーター電流の二乗に比例して変化しており、熱起因の信号であることが確認できる。ここで得られた信号は、単位長さあたりに換算すると、1 V/m であり、単位抵抗あたりに換算すると、7.5 $\mu\text{V}/\Omega$ である。この値は、これまでに報告されている同型の発電素子に比べて、非常に大きい値であり、素子性能の高さを示唆している。

参考文献

- 1) F. L. Bakker, J. Flipse, A. Siachter, D. Wagenaar, and b. J. van Wees. Phys. Rev. Lett. **108**, 167602 (2012)
- 2) S. Hu, H. Itoh and T. Kimura. NPG Asia Mater. **6**, e 127 (2014)

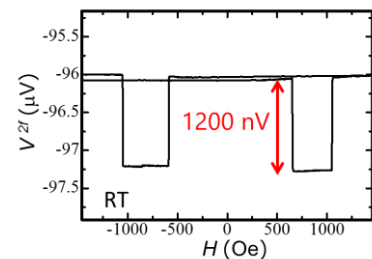


Fig.1 Thermal spin signal using a CoFeAl/Cu lateral spin valve.

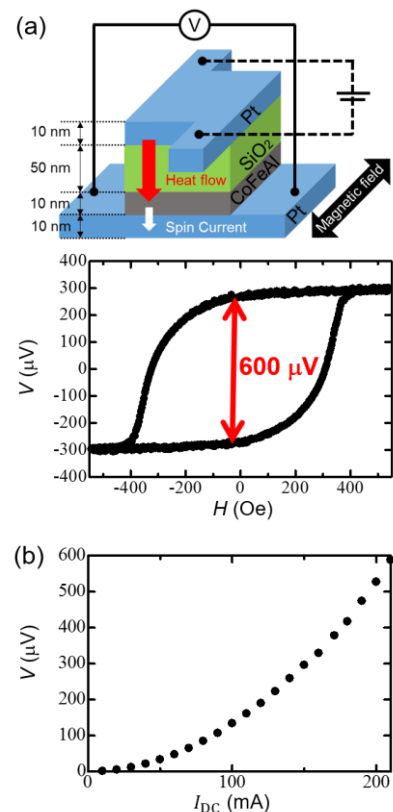


Fig.2 Schematic illustration of the fabricated sample, field dependence of the output voltage(a) and bias-dependence of the output voltages at 77 K.(b)

強磁性共鳴による熱励起スピン注入の高効率化

山野井一人^A, 横谷有紀^A, 木村崇^{A, B}
(^A九大物理^A, スピン物性セ^B)

Development of efficient dynamical thermal spin injection based on FMR heating

K. Yamanoi^A, Y. Yokotani^A, T. Kimura^{A, B}

(^ADept. of Physics, Kyushu Univ., ^BResearch Center for Quantum Nano-spin Sciences.)

はじめに

強磁性体/非磁性体構造の接合界面に熱勾配が存在すると、ゼーベック係数のスピン依存性から非磁性体中へ熱スピン注入(スピン依存ゼーベック効果)を介したスピン流が生成される⁽¹⁾。一方で、これまでに我々は、マイクロ波照射により強磁性共鳴(FMR)が励起された強磁性体が発熱することを確認し、さらにその温度上昇を定量的に評価することに成功している⁽²⁾。さらに、この加熱機構を熱スピン注入技術へと拡張し、逆スピンホール効果と組み合わせることで、マイクロ波エネルギーを直流電力に変換可能になることも示している。この技術は、ワイヤレス給電技術へと高度化が可能であり、共鳴周波数制御により周波数選択性を持たせた発電が可能であるため、様々な応用が期待できる。今回我々は、同技術の更なる高性能化を実現するべく、高周波化による発熱効果の増大とそれに付随した熱励起スピン流の増大、また、熱伝導率の向上による熱スピン注入効率の増大を目指して実験を行ったので報告する。

実験結果

FMRにより生じる強磁性体へのエネルギーの吸収は、照射するマイクロ波周波数に比例して増大することが知られており、高周波化に伴いFMRヒーティング効果の増大、更には動的熱スピン注入の高効率化に有効であると予測される。そこで我々は、すでに確立しているFMR発熱効果の定量的評価法を用いて、発熱量と周波数の関係を調べた。Fig 1に、FMR発熱効果による温度上昇の周波数依存性を示す。予想通り、FMR時の温度変化はマイクロ波周波数の高周波化に伴い、線形に増大した。

次に、動的熱スピン注入の高効率化を実現するため、CoFeB/Ta素子におけるスピンホール電圧のマイクロ波周波数依存性を評価した。Fig 2(a)に各周波数でのスピンホール電圧の磁場依存性を示す。FMR時に得られる電圧の変化は、マイクロ波周波数の増加と共に増大し、Fig 2(b)に示すように、その依存性は線形であった。このことは、得られたスピンホール電圧が熱スピン注入駆動のスピン流に起因していることを示しており、同様の二層膜構造において現れるスピンポンピングによるスピン流注入に比べて支配的であることを示唆している。

発表では、上述の実験結果に加えて、熱伝導率の大きな物質、素子構造を最適化した実験結果についても紹介し、動的熱スピン注入の更なる高効率化に関して議論する予定である。

参考文献

- 1) S. Hu, H. Itoh and T. Kimura. NPG Asia Mater. **6**, e 127 (2014).
- 2) K. Yamanoi, Y. Yokotani and T. Kimura. Applied Physics Letters. **107**, 182410 (2015).

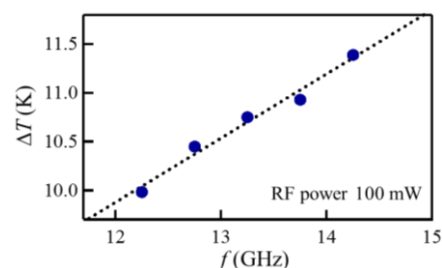


Fig. 1) Frequency dependence of FMR heating effect.

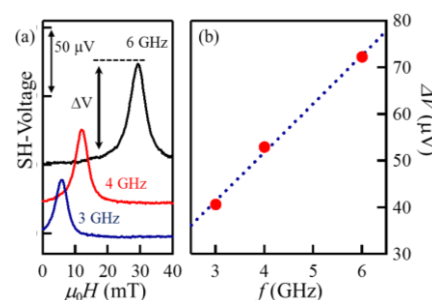


Fig. 2(a) Dynamical thermal spin injection induced by FMR heating effect in CoFeB/Ta. (b) Frequency dependence of dynamical thermal spin injection.

Co / Ni エピタキシャル多層膜における異常ネルンスト効果

鈴木英伸、水口将輝、高梨弘毅
(東北大)

Anomalous Nernst Effect in Epitaxial Co / Ni Multilayer Thin Films

H. Suzuki, M. Mizuguchi, K. Takanashi
(Tohoku Univ.)

目的

熱流からスピン流が生じるスピンゼーベック効果の発見を契機として、スピンカロリトロニクス分野が注目を集めている。我々は、熱磁気効果の一つとして知られる異常ネルンスト効果に着目して研究を行ってきた。特に、巨大な異常ネルンスト効果の発現を目指し、同効果と様々な物性との関係を調べて来た^{2,3)}。しかしながら、界面を有する多層膜などにおける異常ネルンスト効果については、ほとんど研究がなされていない。本研究では、分子線エピタキシ(MBE)を用いて作製した垂直磁気異方性を有するエピタキシャル Co / Ni 多層膜について、異常ネルンスト効果の系統的な測定を行い、特に磁気異方性との相関について調べた。

実験方法

MBE を用いて、MgO(111)基板上に Co 層および Ni 層を交互に室温でエピタキシャル成長した。積層する膜の厚さを 12 nm、Co および Ni の膜厚の比率を 1:2 と一定にした上で、Ni と Co の膜厚を変化させた試料を作製した。作製した試料に Au ワイヤをはんだ付けし、ヒーターで任意の温度勾配を試料に与えられる試料ホルダにマウントした。物理特性測定システム(PPMS)内に試料面直方向に磁場、面内方向に温度勾配がかかるように試料ホルダを配置し、磁場と温度勾配のそれぞれに対して垂直な方向に出力されるネルンスト電圧を測定した。磁場は±7T まで印加し、測定温度は 20 K～室温とした。

結果

ネルンスト電圧は常温で磁化曲線に対応したループを示し、このループは 100 K～室温までの温度範囲で確認された。図 1 に、Ni 1 層と Co 1 層の膜厚の和と横ゼーベック係数 (S_{xy}) との関係を示す。膜厚が小さい領域で、 S_{xy} が顕著に増加している傾向が見られた。図 2 に多層膜の磁気異方性と横ゼーベック係数の関係を示す。面内磁化多層膜では、磁気異方性定数 (K_u) の増加に従い、 S_{xy} が増加する一方、垂直磁化多層膜では、 S_{xy} が減少することが分かった。これらは、多層膜における界面磁気異方性が異常ネルンスト効果と強い相関があることを示唆する結果である。

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

参考文献

- 1) K. Uchida, S. Takahashi, K. Harii, J. Ieda, W. Koshibae, K. Ando, S. Maekawa, and E. Saitoh, *Nature* **455**, 07321 (2008).
- 2) M. Mizuguchi, S. Ohata, K. Hasegawa, K. Uchida, E. Saitoh, and K. Takanashi, *Appl. Phys. Express* **5**, 093002 (2012).
- 3) K. Hasegawa, M. Mizuguchi, Y. Sakuraba, T. Kamada, T. Kojima, T. Kubota, S. Mizukami, T. Miyazaki, and K. Takanashi, *Appl. Phys. Lett.* **106**, 252405 (2015).

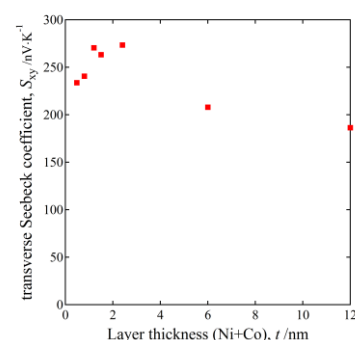


Fig. 1 The relationship between transverse Seebeck coefficient and (Ni+Co) layer thickness.

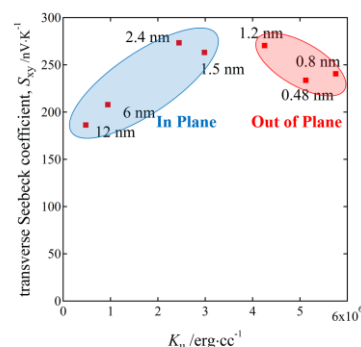


Fig. 2 The relationship between transverse Seebeck coefficient and uniaxial magnetic anisotropy constant K_u

擬単結晶 Fe₄N 薄膜における異常ネルンスト効果の結晶方位依存性

○磯上慎二, 水口将輝*, 高梨弘毅*
(福島高専, 東北大・金研)

Dependence of anomalous Nernst effect on crystal orientation in pseudo mono-crystalline Fe₄N thin films

Shinji Isogami, Masaki Mizuguchi, Koki Takanashi*
(Fukushima National College of Technology, *Tohoku Univ. IMR)

1. はじめに Fe₄N はフェルミレベルにおける状態密度の分極率が $P_{\text{DOS}} = -0.6$ であるため, いわゆるハーフメタルではないが, 伝導率のスピンの偏極率が $P_{\sigma} = -1.0$ であることから, マイノリティスピンの伝導を支配する強磁性材料として知られている¹⁾. 以上のように興味深い材料特性をスピントロニクスデバイスに有効活用する研究が盛んに行われ, 筆者はこれまでに種々の成果を報告してきた²⁻⁴⁾. その中でも Fe₄N/Pt 二層膜におけるスピンプンピング過程で検出された高いインバーススピンホール起電力³⁾に関しては, 界面磁性や界面結晶配向性の観点から解明を試みている. しかし一方で, 磁化歳差運動で自己発熱した Fe₄N 薄膜中で発生する起電力成分の重量も考慮しなければならない⁵⁾. そこで本研究では, Fe₄N 薄膜で得られる異常ネルンスト効果⁶⁾の定量評価を目的として実験を行った. その結果, 温度勾配 (∇T) と結晶軸の方位関係によって異なる値が得られたので報告する.

2. 実験方法 試料の膜構成は, MgO(100)単結晶基板/ Fe₄N 100 nm とした. 成膜にはマグネトロンスパッタリング装置と赤外線加熱機構を用いた. X 線構造解析により, Fe₄N は γ' 単相の擬単結晶膜であることを確認した. 異常ネルンスト起電力の測定は, 矩形型に切り出した試料の 3×6 mm 範囲を PPMS を用いて室温にて行った. 面直方向へ印加する最大磁場強度は 5.0 T, 掃引速度は 10 mT/s, 試料長手方向にかけた ∇T は 0.35 K/mm, 起電力端子間隔は 1.5 mm とした.

3. 実験結果 Fig. 1 は ∇T を Fe₄N 面内結晶方位 [100] および [110] に向けて室温にて測定された, 異常ネルンスト起電力 (V_{ANE}) の外部磁場 (H) 依存性を示す. ここで $\mu_0 H = 2$ T の飽和磁場は, 膜面直方向に測定された磁化曲線と一致することを別途確認している. また, Fe₄N 膜面内 [100] および [110] 方位はそれぞれ, 磁化容易軸および困難軸に対応する. V_{ANE} は [100] で 0.6 μV , [110] で 1.2 μV となり明瞭な面内異方性が得られた. 異常ネルンスト係数はそれぞれ + 0.65 $\mu\text{V}/(\text{T} \cdot \text{K})$, および + 1.3 $\mu\text{V}/(\text{T} \cdot \text{K})$ と見積られ, 符号は L1₀-FePt と同一であった^{7,8)}. このような異常ネルンスト係数の面内異方性の解釈は未だ明確ではないが, 講演会では Fe₄N 擬単結晶膜の異常ホール伝導度, スピンドYNAMIKS の観点から議論を行う予定である.

4. 謝辞 本研究は東北大学金属材料研究所, 平成 28 年度共同利用研究プログラム (課題: 16K0089) の支援を受けて行われた.

参考文献

- 1) S. Kokado, *et al.*, *Phys. Rev. B* **73**, 172410 (2006).
- 2) S. Isogami, *et al.*, *Appl. Phys. Express* **3**, 103002 (2010).
- 3) S. Isogami, *et al.*, *Appl. Phys. Express* **6**, 063004 (2013).
- 4) S. Isogami, *et al.*, *IEEEJ. Trans.* **9**(s1), S73 (2014).
- 5) 山野井一人ら, 第 39 回日本磁気学会学術講演会 10aE-6 (2015).
- 6) W. Nernst, *Ann. Phys.* **267**, 760 (1887).
- 7) M. Mizuguchi, *et al.*, *Appl. Phys. Express* **5**, 093002 (2012).
- 8) K. Hasegawa, *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **106**, 252405 (2015).

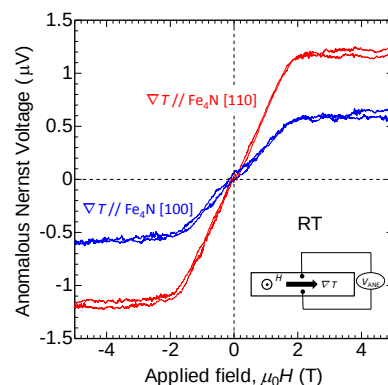


Fig. 1 Anomalous Nernst voltage measurements as a function of the applied field, where the temperature gradient points to [100] and [110] of the Fe₄N crystal.

強磁性金属のカイラル構造での非相反電気伝導の測定

村上 郁, 児玉 俊之, 富田 知志, 細糸 信好, 柳 久雄
(奈良先端大物質)

Measurement of non-reciprocal electrical conductivity in chiral structures of ferromagnetic metal

Kaoru Murakami, Toshiyuki Kodama, Satoshi Tomita, Nobuyoshi Hosoi, Hisao Yanagi

(Graduate School of Materials Science, Nara Institute of Science and Technology)

はじめに

電流の一方向素子であるダイオードは整流効果をもたらし、エレクトロニクスには欠かすことができない。現在、ダイオードと言えば半導体の pn 接合を用いた半導体ダイオードを意味する。一方、本研究では半導体を用いずに一方向素子を実現するために「磁気カイラル異方性」を利用する。この性質は磁性体でカイラル（螺旋）構造を作製することで現れる。電気伝導に対する磁気カイラル異方性は、外部から磁場をかけた状態では報告されているが、これでは応用が難しい。そこで本研究では無磁場下での磁気カイラル異方性による非相反電気伝導の観測を目指している。

試料作製方法

シリコン基板に SU8 レジストをフォトリソグラフィで V 字型にパターニングした。この試料にコバルト (Co) をスパッタリング成膜した後、電磁石を用いて面内方向に 1 kOe の磁場を印加した。その試料を N-メチル-2-ピロリドンに浸けることにより、パターニングした V 字部分の先端が基板から剥離した。その時 Co 膜中の応力により V 字構造が巻き上がった。Fig.2 (a)に示すように V 字頂点の右側には右巻き、左側には左巻きの Co 薄膜のカイラル構造が同時に作製できる。

測定結果と考察

ナノプローブ装置（日立 NE4000）中で 4 端子法電気伝導測定を行った結果を Fig.2 に示す。Fig.2 (a)は電気伝導測定時の走査型電子顕微鏡 (SEM) 像である。Fig.2 (b)の○はプローブ 1 から 4 に電流を流し、プローブ 2 と 3 の電位差を測定した結果である。Fig.2 (b)の×はプローブ 4 から 1 に電流を流し、プローブ 3 と 2 の電位差を測定した結果である。約 275 Ω とコバルト薄膜の細線として妥当な電気抵抗が測定できており、接触抵抗は無視できることがわかる。磁気カイラル異方性が発現すれば、電流の向きに応じて抵抗が変化するはずである。しかしながら、電流の向きを逆転させても抵抗の値はほぼ同じであった。これは Co の保磁力が小さいために、巻き上げ後に磁化を保っていないことが原因と推察される。今後は、より保磁力の大きな磁性金属を用いてカイラル構造を作製し、測定する予定である。

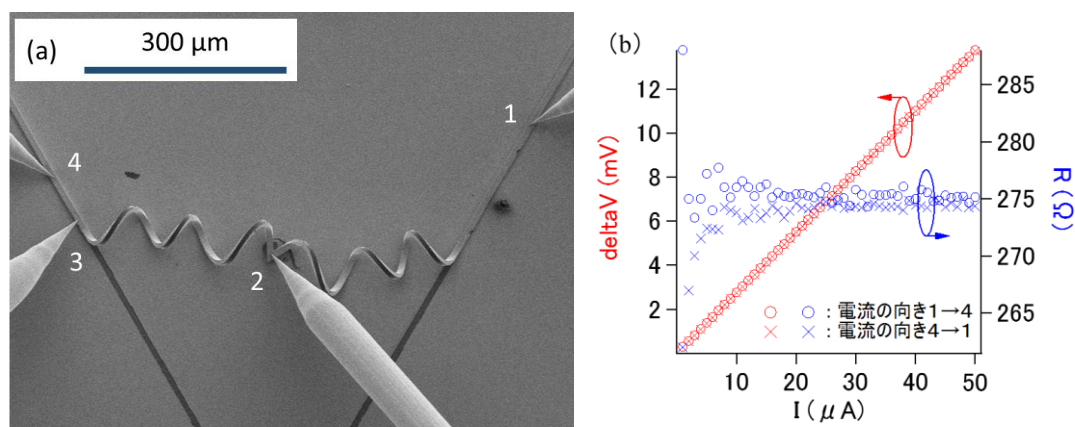


Fig.2 In-situ SEM image of chiral-structure (a) and measured electrical characteristics (b)

参考文献

- 1) G. Rikken et al., *Phys.Rev.Lett.* **87**, 236602 (2001).

磁性細線への磁区形成における記録ヘッドー細線間距離の検討

奥田 光伸、川那 真弓、宮本 泰敬
(NHK 放送技術研究所)

Study on Recording Head-Magnetic Nanowire Spacing
for Formation of Stable Magnetic Domains in [Co/Pd] Nanowire

M. Okuda, M. Kawana, Y. Miyamoto
(NHK Science & Technology Research Labs.)

はじめに

近年、磁性細線における磁壁の電流駆動に関する研究¹⁾に注目が集まり、レーストラックメモリ²⁾に代表される新しい原理のメモリが提案されている。我々は磁性細線を並列に複数配置し、それらの磁区をパルス電流印加によって同期駆動する新しい超高速磁気記録デバイスの実現を目指して、[Co/Pd]磁性細線の基礎研究を進めている³⁾。この動作を実証するため、HDD用磁気ヘッドを2次元コンタクトスキャンすることによって試料表面の磁化状態を観察する nano-MDS (Magnetic Domain Scope for wide area with nano order resolution)法⁴⁾を用い、磁性細線の一端に設置した記録ヘッドで磁区を形成した後、パルス電流によりその磁区を細線に沿って駆動し、さらにその磁区を他端の再生ヘッドで検出する実験を行っている。このとき、磁性細線に軟磁性下地層(SUL)を付与すると安定して磁区形成できるが、電流駆動の際に磁区長が不安定になる他、磁壁の移動速度も遅くなるという問題があった⁵⁾。そこで、SULのない磁性細線においても安定して磁区形成・磁区駆動できるよう、記録ヘッドー磁性細線距離(SP)に対する磁化反転の様子を調査したので報告する。

実験方法

イオンビームスパッタ法および電子線リソグラフィーにより、それぞれ(a)SULなし、(b)SUL: $^{79}\text{Ni}^{16}\text{Fe}^5\text{Mo}$ (30 nm)の上に、[Co/Pd]垂直磁化多層膜を表面熱酸化 Si 基板上に 30 nm 堆積して磁性細線を作製した。細線幅は 150 nm、細線長は 20 μm とした。nano-MDS の記録ヘッドにより、下向き磁界を印加しながら磁性細線表面を走査してその磁化方向を全て下向きに揃え初期化した後、上向き磁区を形成するように逆向きの記録電流 I_{write} を印加した。磁気ヘッドの"ABS"側には DLC(diamond like carbon)保護層を付与しているが、その層厚の異なる磁気ヘッドを用いることで SP を変化させ、上向き磁区の形成に必要な I_{write} を調査した。

実験結果

Fig.1 は(a)、(b)それぞれの SUL 条件において SP を変化させた場合の、[Co/Pd]磁性細線の磁区反転確率と記録電流の関係を示したものである。どちらの細線においても、SP を短縮することで逆磁区の形成に必要な I_{write} を低減できることが確認できる。また、(a) SUL 無しの細線構造であっても SP を 1 nm まで短縮させることによって、(b) SP を 3nm 程度まで近接させたときの SUL を付与した細線と同等の記録効率が得られるものと見積もられる。保護層厚の調整以外に記録ヘッドを磁性細線へ近接させ磁束集中させる手段をさらに検討したので、詳細を当日報告する。

参考文献

- 1) H. Tanigawa *et al.*: *Appl. Phys. Express*, **2**, 053002 (2009).
- 2) S. S. P. Parkin *et al.*: *Science*, **320**, 190 (2008).
- 3) 宮本他: 映像情報メディア学会誌, **68**, (1), J34 (2014).
- 4) 近松他: 日本磁気学会会報まぐね, **6**, (6), 357 (2011).
- 5) M. Okuda *et al.*: *13th Joint MMM-Intermag Conference* (BB-10) (to be published in *IEEE Trans. Magn.* in 2016.)

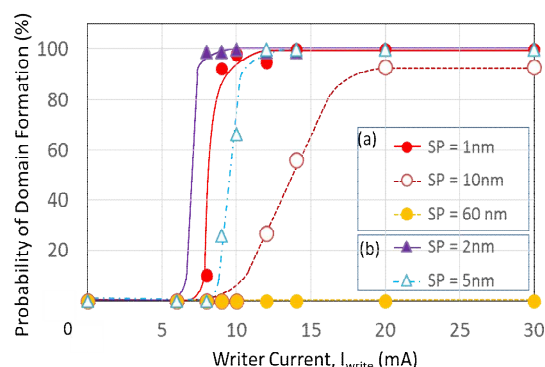


Fig.1 Probability of domain formation dependence of writer current for [Co/Pd] nanowire (a) without and (b) with SUL at different head-nanowire spacing.

ナノインプリント法で作製した磁性細線への磁界変調記録

鷲見 聡、吉村 瞭吾、森林 顕彦、黒川 雄一郎、栗野 博之
(豊田工業大学)

Magnetic field modulation writing in RE-TM magnetic nano wires with a nano imprinted plastic substrate
Satoshi Sumi, Ryogo Yoshimura, Akihiko Moribayashi, Yuichiro Kurokawa and Hiroyuki Awano
(Toyota Technological Institute)

はじめに

磁性細線を用いた電流駆動型メモリは低消費電力で大容量・高速動作が期待できるため活発な研究が行われている。われわれは、希土類遷移金属磁性膜を用いることで低電流駆動や高速化が可能なこと 1)、ナノインプリント法で磁性細線が出来ることから安価に作製できる可能性があることを報告してきた 2)。今回、ナノインプリント法で作製した磁性細線に磁界変調書込みを行い、良好な磁区が形成されることを確認したので報告する。

実験方法

Figure 1 にナノインプリント法で作製した磁性細線の構造を示す。Zeonor 基板 (0.188mm) に石英スタンプを使いナノインプリント法にて幅 80-120nm、深さ 110nm、Duty 比 1:5 の溝を転写した。その上に MgO 下地層 10nm、TbCo 磁性層 7nm、Pt 保護層 3nm をそれぞれスパッタ法にて積層した。ランド部とグルーブ部の磁性膜は溝が深くアスペクト比が大きいため、磁氣的に分離されランド部に磁性細線が形成される 2)。記録は HDD 用汎用垂直磁気ヘッドを搭載した nano MDS 測定装置を用い、記録磁区は同装置の TMR センサにより漏れ磁束分布から観察した 3)。

結果

Figure 2 に磁区像より求めた記録開始磁界電流 I_{in} と飽和記録磁界電流 I_s を示す。記録ヘッドの走査速度は 100 μ m/sec、記録周波数は 100Hz である。図中に溝幅 80nm の記録磁区像を示す。ランド上に良好な記録磁区が形成されている。また、記録磁界電流 I_{in} と I_s は溝幅が狭くなるにつれ低下する。磁性細線幅によらず良好な記録磁区が得られナノインプリントによる磁性細線作製法は有望な手段であることが分かった。

本研究は、文部科学省「私立大学戦略的研究基盤形成支援事業」(2014-2018)、JSPS 科研費 No.26630167 (2014-2016)の支援を受けて行われた。

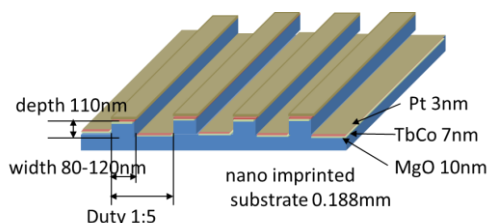


Figure 1. Structure of Pt/TbCo/MgO nano wires on a nano imprinted plastic substrate.

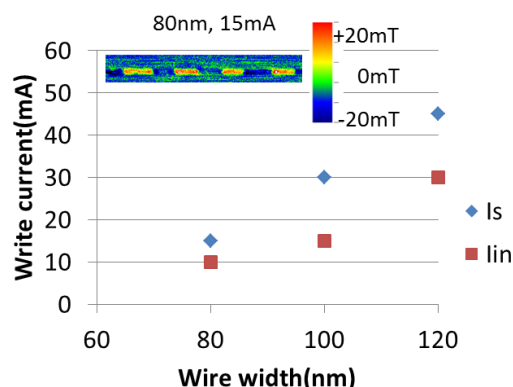


Figure 2. Domain images of 80nm Pt/TbCo wire and writing currents for a wire width of 80, 100, 120nm.

参考文献

- 1) D. Ngo, K. Ikeda, and A. Hiroyuki. Applied Physics Express, Vol. 4, No. 9, 093002(2011)..
- 2) A. Takeuchi, T. Asari and H. Awano; 59th Annual conference on MMM, November, 2014
- 3) T. Chikamatsu, A. Ogawa, and T. Mizuno; Magnetism Japan 6(6), 357(2011) .

Nd 下地層を施した Si 基板への Nd-Fe-B 系磁石膜の成膜

竹馬 雄*, 山下 昂洋, 柳井 武志, 中野 正基, 福永 博俊 (長崎大学)

Nd-Fe-B film magnets deposited on Si substrates with Nd under-layer

Y. Chikuba, A. Yamashita, T. Yanai, M. Nakano and H. Fukunaga (Nagasaki University)

1. はじめに スパッタリング法を用いた Si 基板上への Nd-Fe-B 系磁石膜の作製が報告される中⁽¹⁾⁽²⁾, 我々は PLD(Pulsed Laser Deposition)法を用い, 熱酸化膜付き Si 基板上に 15 at. %以上の Nd を含有する等方性 Nd-Fe-B 系磁石膜を成膜することにより, 試料の破壊 (膜の剥離や基板の破壊) を抑制し, 150 μm 程度までの厚膜化を実現してきた⁽²⁾. しかしながら, 上記の化学量論組成を大幅に超える Nd 含有量は, 保磁力を向上させる一方, 残留磁気分極や $(BH)_{\text{max}}$ の低下を招く. 最近, その Nd 含有量を多く含む試料の微細構造を断面観察したところ, Si 基板と Nd-Fe-B 系磁石膜の界面に厚さ 1 μm 程度の Nd 層が析出する事が確認され, Si 基板と Nd₂Fe₁₄B 相の中間の線膨張係数値を有する Nd 元素の層が, 試料の破壊現象を防ぐ一つの要因と推察される.

本研究では, 磁石膜と Si 基板の界面に 1 μm 厚以上の 4 種類の厚みの Nd 下地層を設け, その下地層の上に Nd₂Fe₁₄B とほぼ同じ組成の磁石膜を作製する手法を試み, Si 基板上の等方性 Nd-Fe-B 系磁石膜の磁気特性向上を検討した.

2. 実験条件 本実験では真空中度 $2.0 \sim 8.0 \times 10^{-5}$ Pa 程度のチャンパー内で回転するターゲットに, Nd-YAG パルスレーザを照射することで, 対面に設置した(100)単結晶 Si 基板に堆積させた. ①下地層形成のための Nd 単体ターゲット, ならびに②磁石膜を成膜するための Nd₂Fe₁₄B 合金ターゲットの 2 種類のターゲットを自公転ターゲットホルダーに設置した. Nd 下地層の厚みは, 成膜速度より 1, 3, 3.5, 5 μm の 4 水準の厚みに制御した. レーザパワーを 4 W, ターゲットと基板間の距離を 10 mm に固定し, 成膜直後のアモルファス状態の試料を保持時間約 3.5 sec のパルス熱処理により, Nd₂Fe₁₄B 相を形成した. 磁気特性の測定は VSM, 膜組成の評価と表面観察には SEM(EDX 機能付き)を用いた.

3. 実験結果 Fig.1 は, 各厚みの Nd 下地層の上に, Nd-Fe-B 系磁石膜を成膜し, 熱処理後に「Si 基板からの磁石膜の剥離」や「Si 基板自体の破壊」等が生じなかった試料に関して, 膜厚と組成の関係を示したものである. 縦軸の Nd 含有量は, Nd 下地層の上に Nd-Fe-B 膜を堆積した後の as-depo 試料において評価したものであり, 10 μm 以上の Nd-Fe-B 膜の厚みを鑑みると下地層が組成評価へ及ぼす影響は少ないものと判断した. 更に, Fig.中の横線は Nd₂Fe₁₄B の化学量論組成付近の Nd 含有量を示すものである. Nd 下地層の厚みの増加に伴い, 得られる磁石膜の最大膜厚が増加する傾向が観察される. 例えば, Nd 下地層の厚みを 5 μm まで増加すると, Nd-Fe-B 系磁石膜の膜厚は最大で 60 μm 程度まで向上できることが明らかとなった. 既報の Nd 下地層を施さずに Nd₂Fe₁₄B 組成付近の試料を Si 基板上に直接成膜した際に, 機械的破壊が生じず再現性良く得られた試料の膜厚は最大で 10 μm 程度⁽²⁾であり, 本実験では, 同程度の Nd 含有量の Nd-Fe-B 系磁石膜に対し, Nd 下地層を用いることで大幅にその膜厚が増加できる事を明らかにした.

その一方で, Fig.1 の実験においては, 試料の破壊現象も

一部観察された. 例えば, Nd 下地層の 1 もしくは 3 μm の薄い下地層を施した際, Nd-Fe-B 系磁石膜の厚みが 30 μm の範囲において, Si 基板内部からの破壊が生じる現象が一部見られた. これは, 短時間の成膜により島状の下地層が形成され, Si 基板上に直接 Nd-Fe-B 系磁石膜が成膜された箇所が一部生じ, 応力緩和が不十分な箇所が生じたためと考えられる. 加えて, Nd 下地層の厚みを 5 μm とした際, 60 μm までの厚膜化を達成した一方, 20 μm 程度の薄い Nd-Fe-B 系磁石膜において, 基板から Nd-Fe-B 系磁石膜が剥離する現象が一部見られた. この結果は, 既報の自然に形成された Nd 層⁽²⁾と本実験での人工的に作製した Nd 下地層では, 基板と試料の界面に働く密着力に果たす役割が異なることを示唆している. 以上の再現性の問題を鑑みて, 発表迄に Fig.1 に関しデータの積み重ねを行う予定である.

Fig.1 において, 最も厚い磁石膜の試料 (Nd 下地層: 5 μm) の減磁曲線(実線)を Fig.2 に示す. ここでは, 従来の手法である Si 基板に Nd 下地層なしで直接成膜したほぼ同程度の膜厚を有する Nd-Fe-B 系磁石膜を併せて記載する(破線). ただし, その試料の Nd 含有量は約 23 at.%である. Nd 下地層を用いることで, 60 μm 程度の厚みの試料において, Nd 含有量を大幅に低減でき, 残留磁気分極と $(BH)_{\text{max}}$ を向上できた. 今後, 下地層に Nd リッチな Nd-Fe-B 膜も検討する.

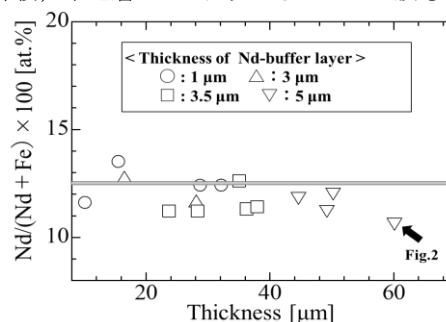


Fig.1 Nd-Fe-B film magnets deposited on Nd under-layers with various thickness.

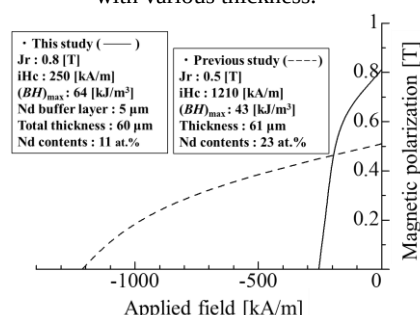


Fig. 2 Demagnetization curves of Nd-Fe-B films deposited on Si substrates with Nd under-layer or without Nd under-layer.

文 献

- (1)小峠ら, 電気学会マグネティクス研究会資料, MAG-12-170(2012).
- (2) M. Nakano et. al., IEEE Trans. Magn. 51, #2102604(2015).

MEMS 応用を鑑みガラス基板上に成膜した Pr-Fe-B 系磁石膜の諸特性

廣瀧 敬士* 柳井 武志 中野 正基 福永 博俊 (長崎大学)

Various properties of Pr-Fe-B thick films deposited on glass substrate for the application of MEMS

Keishi Hirotsaki *, Takeshi Yanai, Masaki Nakano, Hirotoshi Fukunaga (Nagasaki University)

はじめに

MEMS(Micro-electromechanical system)技術への磁石膜の応用を考慮し、金属基板以外のガラス基板⁽¹⁾や Si 基板⁽²⁾への異方性 Nd-Fe-B 系磁石膜の成膜が報告されている。それらの試料は、磁気特性は優れているものの、(1)厚みが 20 μm 程度にとどまっており、十分な磁界を外部へ供給するには更なる厚膜化が望まれる、(2)微細加工において支障を生じる「Ta 下地層の利用」を極力避けたい等の要望が指摘されている。本研究では、成膜速度が数 10 $\mu\text{m}/\text{h}$ 以上の PLD(Pulse Laser Deposition)法を用い、下地層施さないガラス基板上に Pr 含有量を制御した等方性 Pr-Fe-B 系磁石膜を成膜し、100 μm までの厚膜化と微細加工への応用を検討した。

実験方法

約 6.5 rpm で回転させた $\text{Pr}_x\text{Fe}_{14}\text{B}$ ($x=1.6\sim 2.4$)合金ターゲットに、波長 355 nm の Nd:YAG レーザを照射し、ターゲットーガラス基板間の距離を 10 mm として成膜した試料は非晶質であったため、熱処理時間 3.8~4.1 s 程度でパルスアニーリングを施し等方性 Pr-Fe-B 系磁石膜を作製した。熱処理後の試料に、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。膜厚はマイクロメータで、組成は SEM-EDX で Pr と Fe の含有量を測定した。微細構造は透過電子顕微鏡で観察した。

実験結果

ターゲットの Pr 含有量を変化させ、ガラス基板上に直接成膜した磁石膜の Pr 含有量を 12.5 at.%以上にするこで、試料の破壊(剥離や基板の破壊)を抑制できることを確認した。膜厚 30 μm 以上、Pr 含有量 12.5 at.%以上の試料に関し、磁気特性の Pr 含有量を評価した結果を Fig.1 に示す。Pr 含有量の増加に伴い残留磁気分極は低下し、保磁力は向上する。これは、Pr 含有量の増加に伴い、Pr を含む非磁性成分が粒界層に析出し、残留磁気分極

(飽和磁気分極)を下げる一方で、粒界の交換結合を低減させ保磁力が向上したものと考えられる。Fig.2 に膜厚 100 μm 以上の試料において、最も優れた磁気特性を有する J-H ループを示す。試料の Pr 含有量 14.6 at.%において、最大値 $(BH)_{\text{max}}:70 \text{ kJ}/\text{m}^3$ を確認した。本学会発表では、XRD や TEM による結晶構造ならびに微細構造の観察と微細加工を施した結果についても併せて報告する。

参考文献

- (1) 上原, 日本応用磁気学会誌, **28**,1043-1048(2004).
- (2) Chao Zhi *et al.*, *Int. J. Automation Technplogy*, **7**, 196(2013).

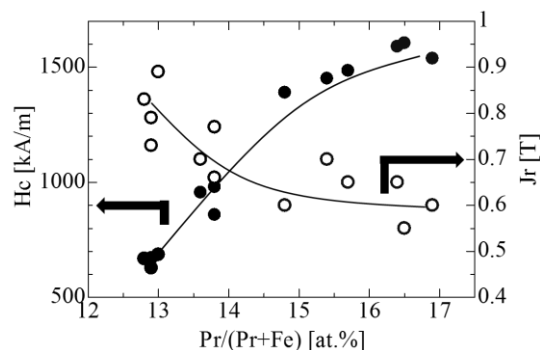


Fig.1 J_r and H_c as a function of Pr contents (Glass substrate)

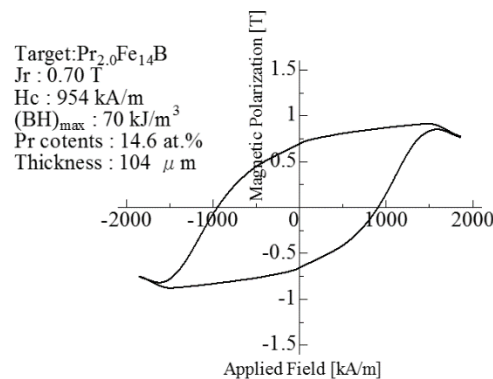


Fig.2 J-H loop of Pr-Fe-B film on glass substrate

マルチターゲット利用レーザー蒸着法により作製した Pr-Fe-B 系ナノコンポジット磁石膜の微細構造ならびに磁気特性

山下 昂洋* 黒崎 陽 柳井 武志 中野 正基 福永 博俊 (長崎大学)

Microstructure and magnetic properties of Pr-Fe-B nano-composite film magnets prepared using laser deposition technique with a multi-target

A. Yamashita*, A. Kurosaki, T. Yanai, M. Nakano and H. Fukunaga (Nagasaki University)

1. はじめに

Pr₂Fe₁₄B 磁性相は、室温での飽和磁気分極値(1.56 T)が Nd₂Fe₁₄B 磁性相の値(1.61 T)に比べ劣るものの、その結晶磁気異方性定数 ($K_u=6.8 \text{ J/m}^3$) が, Nd₂Fe₁₄B 磁性相($K_u=4.5 \text{ J/m}^3$)に比べ 1.5 倍程度の値を有するため⁽¹⁾, ナノコンポジット磁石のハード相として期待され、いくつかの報告がなされてきた⁽²⁾。

本研究では、上記の Pr-Fe-B と高飽和磁気分極を有する Fe-Co のマルチターゲットを用いたナノコンポジット磁石膜を作製し、その微細構造ならびに磁気特性を評価したので報告する。

2. 実験方法

真真空度 $2 \sim 6 \times 10^{-5}$ Torr のチャンバー内で約 6.5 rpm で回転させた Pr_xFe₁₄B($x=2.2, 2.4$) ターゲットに Fe₆₆Co₃₄ ターゲットを表面積の割合として 10 % マスクしたマルチターゲットの表面に、 10 J/cm^2 以上の高エネルギー密度の Nd:YAG レーザ(波長:355 nm)を 30 もしくは 60 分照射し、Pr-Fe-B/Fe-Co ナノコンポジット磁石膜を成膜した。成膜後の試料は、Pr-Fe-B 層がアモルファス構造であったため、結晶粒の微細化に有効であるパルス熱処理を用い、結晶化させた。具体的な熱処理条件として、 $2 \sim 6 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ の高真空中に試料を設置し、定格出力 8 kW の赤外線出力で 2.0~2.2 s 程度の著しく短い時間により熱処理を施した。試料の微細構造観察ならびに元素マッピングには、透過電子顕微鏡 (日本電子製: JEM-ARM200F ならびに JEM-2100F) を用いた。

3. 実験結果

図 1 は、Pr₂Fe₁₄B 相をハード相、ソフト相に Fe-Co 系磁性膜を採用した Pr-Fe-B/Fe-Co ナノコンポジット磁石膜に関して、保磁力ならびに残留磁気分極値の Pr 含有量依存性を示している。図には比較のため、我々が過去に報告した Pr-Fe-B/ α -Fe ナノコンポジット磁石膜の磁気特性も併せて示している⁽³⁾。特に Pr 含有量が 8~9 at.% 付近の両試料を比較すると、

Fe-Co 系磁性膜をソフト相に用いた試料は、既報の試料に比べ残留磁気分極値の向上を確認した。

更に本研究では、熱処理後ならびに成膜直後の試料に対して透過型電子顕微鏡により断面を観察した。成膜直後の試料を観察すると、Pr-Fe-B 相と Fe-Co 相が積層周期 30 nm 程度の積層型構造を有していたものの、熱処理を施すことにより、結晶粒径は 10~30 nm 程度の分散型ナノコンポジット磁石膜に変化することが確認された。本発表では上述の熱処理を通じて微細構造が変化する原因に関し、微細構造観察ならびに元素マッピングの結果も踏まえて報告する。

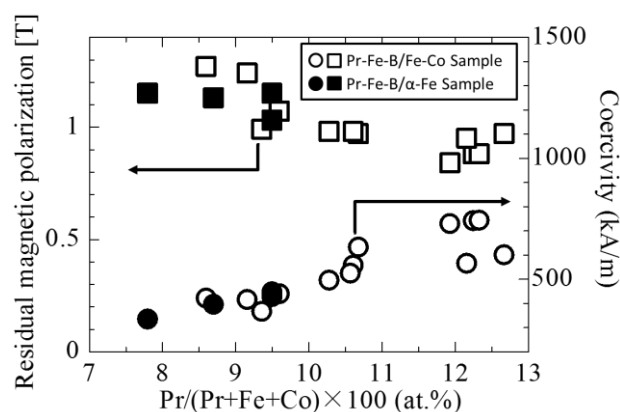


図1 Pr-Fe-B/ α -Fe ならびに Pr-Fe-B/Fe-Co ナノコンポジット磁石膜における磁気特性の Pr 含有量依存性

Fig. 1 Magnetic properties as a function of Pr contents in Pr-Fe-B/ α -Fe together with Pr-Fe-B/Fe-Co film magnets.

謝辞 本実験での微細構造観察は、日本電子株式会社所属の森山和彦様ならびに鈴木敏之様に行って頂きました。紙面をお借りして、感謝申し上げます。

参考文献

- 1) S. Hirose et al., *Journal of Applied Physics*, Vol. **59**, pp. 873-879 (1986).
- 2) F. Yamashita, et al., *Journal of Applied Physics*, Vol. **109**, No.7, pp. 07A701-1~3(2011).
- 3) A. Yamashita et al., *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. **55**, No.7A3, (2016) (in press) .

$L1_0$ (FeMn)Pt 薄膜の強磁性－反強磁性相変化と磁気相図

長谷川崇, 伊藤光祐 (院生) 中根大斗 (院生), 石尾俊二
(秋田大理工)

Magnetic phase diagram of $L1_0$ (FeMn)Pt films

T. Hasegawa, K. Ito, H. Nakane, S. Ishio

(Akita Univ.)

はじめに

$L1_0$ 型 FePt 規則合金は高い結晶磁気異方性を有する強磁性 (FM) 材料である. FePt の各サイトを適切な第三元素 (Mn, Rh 等) で置換すると反強磁性 (AF) が発現することが知られている^[1]. 本研究では, 実験的に (FeMn)Pt 薄膜の磁気相図を作成して, 先行研究の理論計算と比較することで磁気構造の考察を行った.

実験方法

マグネトロンスパッタリング法により, MgO (001) 単結晶基板上に膜厚 6.12 nm の $\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Pt}$ を室温成膜し, 次いで急速加熱処理 (300°C/s, 700°C, 20 分) を行った. 組成比 (x) は Fe と Mn の膜厚比を変えることで制御した. 結晶構造解析には X 線回析装置, 磁気特性評価には振動試料型磁力計および超電導量子干渉素子磁束計を用いた.

実験結果

Fig.1 は, $L1_0$ $\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Pt}$ 薄膜の格子定数比 c/a の x 依存性である. ▲印は本研究の実験値, ×印は先行研究のバルクの実験値^[1], それ以外は理論計算値^[2]である. 実験値の c/a は, x が増加するにつれて直線的に減少し, $x = 0.46$ 付近で直線の傾きが変化している. 実験と理論計算の結果を比較すると, $0 \leq x \leq 0.46$ の実験値は, 理論計算の FM に近い値をとっている. また $0.48 < x$ では, 実験値は理論計算の AF1 または AF2 に近い値をとっている. ここには示していないが, 磁化温度履歴曲線を測定すると, $0 \leq x \leq 0.46$ の試料では温度低下に伴い磁化は増加したが, 一方で $0.48 < x$ の試料では温度低下に伴う磁化の減少が観測された. 以上より, 本試料の磁気構造は, $0 \leq x \leq 0.46$ では Fig.2a に示す FM 型, $0.48 < x$ では Fig.2b, c に示す AF1 型あるいは AF2 型である可能性が考えられる.

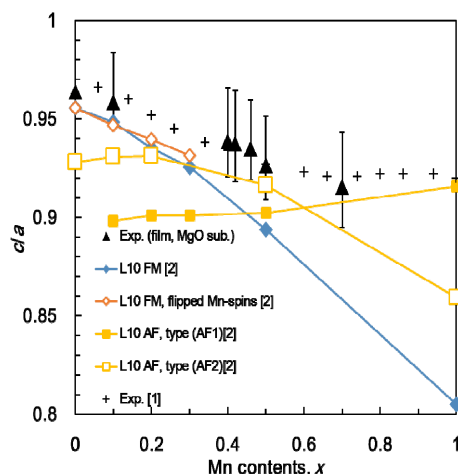


Fig.1 Dependence of c/a ratio on Mn composition (x).

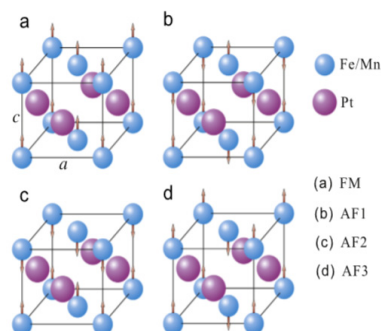


Fig.2 Ferromagnetic and antiferromagnetic spin configurations.^[3]

参考文献

[1] A. Z. Menshikov et al., J. Magn. Magn. Mater. 65, 159 (1987). [2] M. E. Gruner et al., Beilstein J. Nanotechnol. 2, 162-172 (2011). [3] H. B. Luo et al., J. Magn. Magn. Mater. 378, 138-142 (2015).

謝辞: 本研究は科研費 (15H05518) の助成を受けて行われた. また測定の一部は東北大学金属材料研究所との共同研究 (16K0099) により行われた.

$L1_0$ FePt 薄膜の磁気特性に与える格子歪みの影響

中根大斗, 長谷川崇, 石尾俊二
秋田大理工

Influence of lattice distortion on the magnetic properties of $L1_0$ FePt thin films.

H. Nakane, T. Hasegawa, S. Ishio
(Akita Univ.)

はじめに

$L1_0$ 型 FePt 規則合金は $7 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ の高い結晶磁気異方性 (K_u) を有するため、次世代の超高密度磁気記録媒体材料として期待されている。また、 $L1_0$ FePt に関する第一原理計算からは、軸比 (c/a) と K_u や T_c 等の磁気特性に相関があることが示されている¹⁾。しかしそれを実験的に評価した報告は少ない²⁾。そこで本研究では、MgO、STO、 MgAl_2O_4 の異なる基板上に FePt を成膜することで格子歪みを導入し、磁気特性に与える影響を調査した。

実験方法

成膜には酸化物マルチチャンバスパッタ装置 (到達真空度 $< 5 \times 10^{-7} \text{ Pa}$) を用いた。各基板上に $\text{Fe}_{50}\text{Pt}_{50}$ を (001) 配向させるため、STO(100)、 MgAl_2O_4 (100) 単結晶基板では基板温度 640°C で成膜を行った。MgO(100) 単結晶基板では室温で成膜を行い、成膜後に 300°C/s 、 800°C 、20 分の急速加熱処理を行った。結晶構造解析には X 線回折装置 (XRD)、磁気特性の評価には振動試料型磁力計を用いた。

実験結果

Fig.1 に、MgO、STO、 MgAl_2O_4 の異なる基板上に成膜した FePt 薄膜の XRD パターンを示す。MgO 基板と STO 基板を用いた試料では、FePt (001)、(002) ピークのみが観測されることから、良好に $L1_0$ 規則化・配向した試料が得られていることがわかる。 MgAl_2O_4 基板を用いた試料では、FePt(001)、(002) ピークの他に FePt(111) ピークも観測されており、部分的にはあるが配向していない領域が存在することがわかる。Fig.2 は、Fig.1 における FePt(001) ピークと、ここには示していないが In-plane XRD から得られた FePt(200) ピークを用いて格子定数 c と a をそれぞれ算出し、その軸比 (c/a) に対して K_u をプロットしたものである。Fig.2 より、MgO 基板を用いた試料において格子歪みが最大となり、その歪み量は 0.78 % 程度 (理論値は 9.4 %) であると見積もられた。また軸比 (c/a) と K_u との間には相関関係がみられる。

参考文献

- 1) X. B. Liu et al., J. Appl. Phys. 109, 07B762 (2011).
- 2) T. Hasegawa et al., 日本金属学会誌 第 79 巻 第 9 号 423-428 (2015).

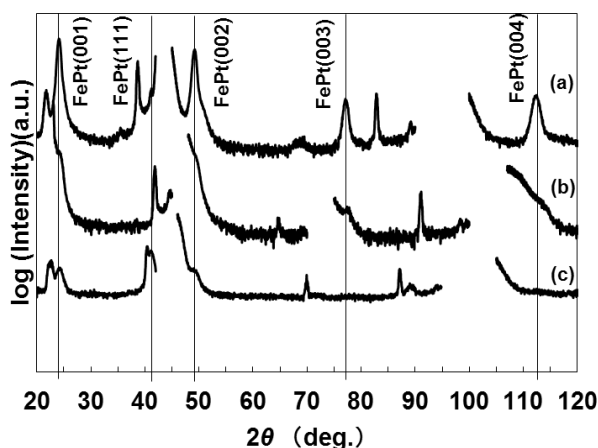


Fig.1 XRD spectra of (a) MgOsub./FePt (6nm), (b) STOSub./FePt (6nm), (c) MgAl_2O_4 sub./FePt (6nm).

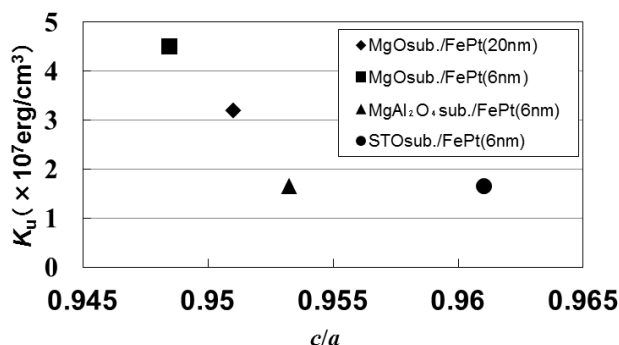


Fig.2 Lattice distortion dependence of K_u .

下地層材料および結晶性が FePt 合金薄膜の構造に及ぼす影響

清水智貴¹・中村将大¹・落合亮真¹・大竹充^{1,2}・二本正昭¹・桐野文良³・稲葉信幸⁴

(¹中央大, ²工学院大, ³東京藝大, ⁴山形大)

Influence of Underlayer Material and Crystallographic Quality on the Structure of FePt Alloy Thin Film

Tomoki Shimizu¹, Masahiro Nakamura¹, Ryoma Ochiai¹, Mitsuru Ohtake^{1,2},

Masaaki Futamoto¹, Fumiyoshi Kirino³, and Nobuyuki Inaba⁴

(¹Chuo Univ., ²Kogakuin Univ., ³Tokyo Univ. Arts, ⁴Yamagata Univ.)

はじめに $L1_0$ -FePt規則合金は 6.6×10^7 erg/cm³の高い K_u を持つ。合金薄膜が高密度磁気記録媒体やMRAMへの応用が検討されているが、磁化容易軸である c 軸を基板面に対し垂直方向とすることが必要であり、(001)配向した下地層や結晶基板への製膜が行われている^{1,2)}。本研究では、MgO(001)、SrTiO₃(001)基板および自然酸化膜付のSi基板上に、NaCl構造を持つ下地層を形成し、下地層材料がFePt膜の構造に及ぼす影響を系統的に調べた。

実験方法 膜形成には超高真空RFマグネトロンスパッタリング装置を用いた。基板上に2 nm厚の下地層、次いで10 nm厚のFePt膜を形成した。試料作製法として、600 °Cの高基板温度で製膜する方法(1段階法)と200 °CでFePt膜を形成した後、600 °Cで熱処理を行う方法(2段階法)の2種類を用いた。構造評価にはRHEED, XRD, AFM, 磁気特性測定にはVSMを用いた。

実験結果 Fig. 1 にRHEEDパターンを示す。MgOとSrTiO₃基板上に形成したMgO下地層は(001)配向しており、その上に形成したFePt膜も配向成長していることが回折パターンから分かる。一方、Si基板上ではMgOおよびFePt膜の回折はリング状で、いずれも多結晶膜であることが分かる。Fig. 2 に面外XRDパターンを示す。MgOおよびSrTiO₃基板上ではFePt(001)超格子反射が認められるが、Si基板上では観察されていない。Fig. 3 のAFM像から1段階法で形成したFePt膜は{111}ファセットなどに囲まれた起伏の多い島状結晶から成っているのに対し、2段階法で形成した膜では良好な表面平坦性が得られることが分かる。NaCl構造を持つ他の下地層(VN, VC)がFePt膜の形態や結晶配向に及ぼす影響については当日発表予定である。

参考文献

- 1) Y. K. Takahashi, K. Shima, and K. Takanashi: *J. Magn. Magn. Mater.*, **267**, 248 (2003).
- 2) T. Suzuki, K. Handa, and K. Ouchi: *J. Magn. Magn. Mater.*, **193**, 85 (1999).

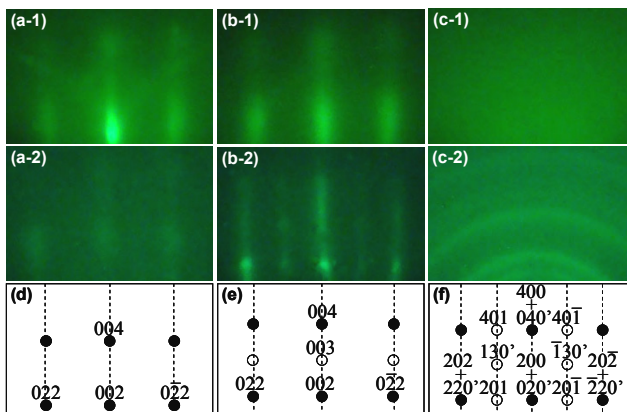


Fig. 1 (a)–(c) RHEED patterns observed for (a-1)–(c-1) MgO single-layer and (a-2)–(c-2) FePt/MgO bi-layer films deposited on (a) MgO(001), (b) SrTiO₃(001), and (c) SiO₂/Si substrates at 600 °C. (d)–(f) Schematic diagrams of RHEED patterns simulated for (d) B1(001), (e) L1₀(001), and (f) L1₀(100)+(010) crystals.

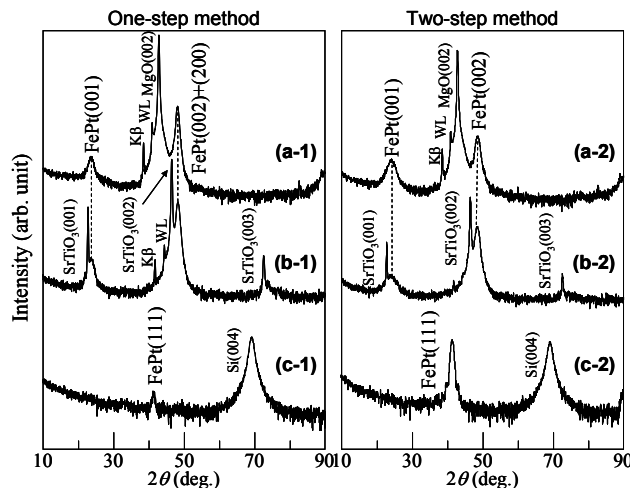


Fig. 2 Out-of-plane XRD patterns measured for FePt/MgO bi-layer films formed on MgO(001), (b) SrTiO₃(001), and (c) SiO₂/Si substrates (a-1)–(c-1) by deposition at 600 °C (one-step method) and (a-2)–(c-2) by deposition at 200 °C followed by annealing at 600 °C (two-step method).

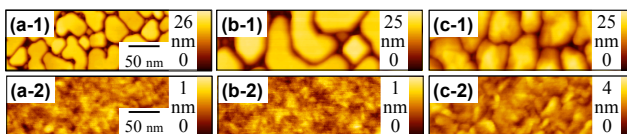


Fig. 3 AFM images observed for FePt/MgO bi-layer films formed on MgO(001), (b) SrTiO₃(001), and (c) SiO₂/Si substrates (a-1)–(c-1) by deposition at 600 °C (one-step method) and (a-2)–(c-2) by deposition at 200 °C followed by annealing at 600 °C (two-step method).

$L1_0$ - Mn_xGa エピタキシャル薄膜の作製と磁気特性

高橋勇圭、手代木元太、嶋敏之、土井正晶
(東北学院大学大学院工学研究科)

Fabrication and their magnetic properties of $L1_0$ - Mn_xGa epitaxial thin films

Y. Takahashi, G. Teshirogi, T. Shima, M. Doi

(Graduate School of Engineering, Tohoku Gakuin University)

はじめに

近年では Mn-Ga 合金薄膜は高結晶磁気異方性($\sim 10^7$ erg/cc)¹⁾を示すことから新規永久磁石材料やスピントロニクスデバイスの次世代材料として注目されており、Mn-Ga 合金薄膜の研究が多く行われている。 $L1_0$ 型 Mn-Ga 薄膜は強磁性で比較的高い飽和磁化を示し、高結晶磁気異方性を有するとされているが、バルクにおける $L1_0$ 型 Mn-Ga (1 対 1) 合金は平衡状態図では存在しない。また、蒸着法を用いて作製された Mn-Ga 合金薄膜の報告も少なく、基板に対して容易軸が垂直に向いた高い垂直磁気異方性を有する薄膜も報告されていない。本研究では超高真空電子ビーム蒸着装置を用いて作製した $L1_0$ 型 Mn_xGa エピタキシャル薄膜の規則度および表面粗さに対する磁気特性の関係を明らかにすることを目的とした。

実験方法

薄膜試料は超高真空電子ビーム蒸着装置を用いて作製し、蒸着ソースは到達真空度 5×10^{-3} Pa 以下の状態でアーク溶解法により作製した $Mn_{1.0}Ga$ 合金を用いた。到達真空度 8.9×10^{-7} Pa 以下、基板温度 $T_s = 300$ °C、熱処理温度 $T_a = 300 \sim 600$ °C、熱処理時間 3h、成膜速度 Cr は 0.1 (Å/s)、Mn-Ga は 0.3 (Å/s)とした。また膜構成は MgO(100) 基板上にバッファ層として Cr を 5 nm、磁性層として MnGa を 5~100 nm、キャップ層として Cr を 10 nm とした。作製した試料は組成をエネルギー分散型 X 線(EDX)分析装置、結晶構造を X 線回折装置(XRD)、結晶化評価を反射高速(RHEED)、磁気特性を(SQUID)により評価した。

実験結果

Fig.1 に薄膜作製時の MgO 基板と Cr バッファ、磁性層の $L1_0$ -MnGa[100]azimuth をその場観察した RHEED パターンを示す。RHEED パターンではそれぞれのストリーク間隔が下の層に合うように成長しており、 $L1_0$ -MnGa 層では表面再配列構造も観察された。これは原子レベルで平坦な表面が成膜されたエピタキシャルな薄膜であるといえる。Fig.2 に $Mn_{1.3}Ga$ 薄膜における X 線回折パターンを示す。X 線回折パターンでは熱処理前、熱処理後のいずれも $L1_0$ -MnGa の(001)超格子ピークと(002)基本ピークが観察され、高い垂直磁気異方性を有する薄膜が得られた。講演では Mn 組成と膜厚を変化させた薄膜の基板温度や熱処理温度における規則度および表面粗さと磁気特性の関係について報告する。

参考文献

- 1) S. Mizukami, T. Kubota, F. Wu, X. Zhang, T. Miyazaki, H. Naganuma, M. Oogane, A. Sakuma, and Y. Ando, *Phys. Rev. B* **85**, 014416 (2012).

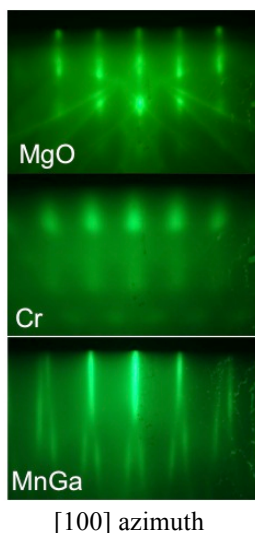


Fig.1 RHEED patterns of $L1_0$ -Mn-Ga epitaxial

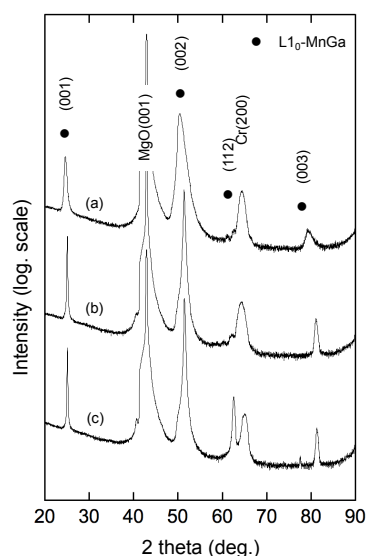


Fig.2 XRD patterns of Mn-Ga thin films $T_s = 300$ °C, $T_a =$ (a) Without annealing, (b) 500 °C, (c) 600 °C.

$L1_0$ -MnGa 円形ドットにおける磁気特性のサイズ依存性

幕田 裕和、高橋 勇圭、嶋 敏之、土井 正晶
(東北学院大学)

Magnetic properties dependence on size of $L1_0$ - MnGa circular dots

H. Makuta, Y. Takahashi, T. Shima, M. Doi
(Tohoku Gakuin Univ.)

背景

$L1_0$ -MnGa 合金は高い一軸磁気異方性($\sim 10^7$ erg/cm³)¹⁾を示すことから、希土類元素、貴金属元素を含まない高性能磁性材料として注目を集め、スピンエレクトロニクスデバイス分野などへの応用に向けた数多くの研究が行われてきた²⁾。しかしながら、微小サイズにおける $L1_0$ -MnGa 合金の磁気特性に関する研究報告は少なく、高密度メモリや微小デバイスへの応用のためにはこの解明が望まれる。本研究では、電子線リソグラフィ用いた微細加工によって $L1_0$ -MnGa 円形ドット配列試料を作製し、ドットサイズと磁気特性の関係を調査した。

実験方法

薄膜試料は高周波マグネトロンスパッタリング装置を用いて MgO(100)基板上に Cr バッファ層、MnGa 層、Cr キャップ層の順に積層し作製した。MnGa 層の成膜には Mn 及び MnGa (40:60 at. %)合金ターゲットを用い、Mn と MnGa を交互に積層し、これに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。薄膜の微細加工には電子線リソグラフィ及び Ar イオンミリング装置を用い、様々な直径の円形ドットを作製した。特性評価は、組成分析にエネルギー分散型 X 線分析(EDX)、結晶構造解析に X 線回折(XRD)、磁気特性評価に超伝導量子干渉素子 SQUID)及びマイクロ磁気光学 Kerr 効果測定(μ -MOKE)、薄膜表面形態、ドット形状観察に原子間力顕微鏡(AFM)、磁区構造観察に磁気力顕微鏡(MFM)をそれぞれ用いた。

実験結果

MnGa 層成膜時の基板温度 T_s の最適条件を検討するため、後熱処理温度を 300 °C に固定し、 T_s を変化させて結晶構造と磁気特性の評価を行った。MnGa 層の総膜厚は 20 nm とした。これら薄膜の XRD パターンから $T_s = 100$ °C から 300 °C の範囲において $L1_0$ -MnGa の (001)、(002)ピークが明瞭に観察されたことから、 $L1_0$ 構造に規則化した MnGa 相が得られていることが確認された。磁化曲線を Fig.1 に示す。磁化測定の結果、 $T_s = 100$ °C において最も高い 288 emu/cm³ の飽和磁化が確認され、さらに T_s を増加させると飽和磁化が低下した。講演では、これら薄膜試料を微細加工して作製された円形ドットの、磁気特性のサイズ依存性について詳細に報告する。

参考文献

- 1) S. Mizukami *et al.*, Phys. Rev. B **85**, 014416 (2012)
- 2) Q. L. Ma *et al.*, Phys. Rev. Lett. **112**, 157202 (2014)

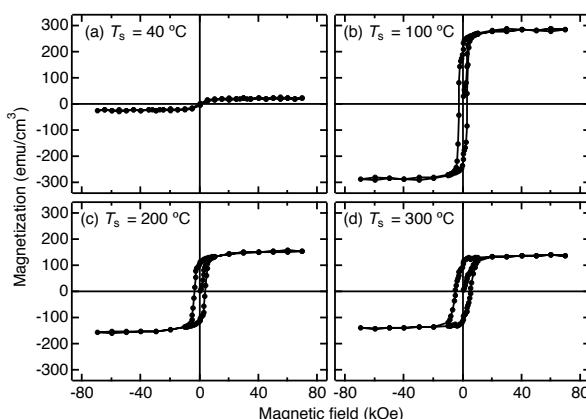


Fig. 1 Magnetization curves for the MnGa thin films with (a) $T_s = 40$ °C, (b) 100 °C, (c) 200 °C, and (d) 300 °C. The field was applied to out-of-plane direction.

垂直磁化強磁性トンネル接合のための L1₀型 MnAl 薄膜の作製と磁気特性

渡部健太, 大兼幹彦, 窪田美穂, 安藤康夫
(東北大学大学院工学研究科)

Magnetic Properties of L1₀-MnAl Thin Films for Perpendicular Magnetic Tunnel Junctions

K. Watanabe, M. Oogane, M. Kubota, Y. Ando
(Graduate School of Engineering, Tohoku University)

【背景】

G-bit クラスの磁気ランダムアクセスメモリ (STT-MRAM) を実現するために、新しい磁性材料の開発が求められている。STT-MRAM の超高集積化に伴い、熱揺らぎによる磁性層の超常磁性化が問題となる。数十 nm の素子サイズにおいて強磁性状態を 10 年以上維持するためには、 10^7 erg/cc 程度の高い結晶磁気異方性が必要である。また、書き込み電力を低減するためには、低飽和磁化と低ダンピング定数を併せ持つ必要がある。我々は G-bit クラスの STT-MRAM の実現に向けて、高い結晶磁気異方性($K_u = 1.5 \times 10^7$ erg/cc)、低飽和磁化($M_s = 550$ emu/cc)、小さなダンピング定数($\alpha \sim 0.006$ ※in-plane)を有する L1₀型 MnAl に着目した。¹⁾本研究では、高い結晶磁気異方性($K_u \geq 10^7$ erg/cc)、低ラフネス($R_a \leq 0.5$ nm)を有する L1₀型 MnAl 薄膜をスパッタリング法により作製し、垂直磁化強磁性トンネル接合への応用可能性を明らかにすることを目的とした。

【実験方法】

薄膜試料は、超高真空多元マグネトロンスパッタ装置を用いて MgO(100)単結晶基板上に成膜した。膜構成はバッファ層として CrRu を 40 nm、磁性層として MnAl を t_{MnAl} nm、酸化保護層として Ta を 5 nm とした。到達真空度は 4.0×10^{-7} Pa 以下で成膜を行った。MnAl 層の膜厚は $t_{\text{MnAl}} = 3 \sim 50$ nm、基板温度は $T_s = 200 \sim 400$ °C、ポストアニール温度は $T_a = 300 \sim 400$ °C で変化させた。成膜後、結晶構造は X 線回折法(XRD)、磁気特性は超伝導量子干渉型磁束計(SQUID)、表面平坦性は原子間力顕微鏡(AFM)を用いて評価した。

【結果】

Fig. 1 に、 $t_{\text{MnAl}} = 50$ nm 試料の飽和磁化(M_s)と表面粗さ(R_a)の基板温度依存性を示す。 $T_s = 350$ °C において飽和磁化 $M_s = 561$ emu/cc と非常に大きな結晶磁気異方性 $K_u = 1.2 \times 10^7$ erg/cc を得た。一方、表面粗さは $R_a = 1.1$ nm と大きく、強磁性トンネル接合の電極に応用するには不十分であった。この表面粗さを改善する目的で、ポストアニールの検討を行った。ポストアニール温度を最適化した結果、表面粗さが改善し、垂直磁化トンネル接合に応用可能な MnAl 薄膜を得ることができた。講演では、磁気特性の膜厚依存性についても述べる。

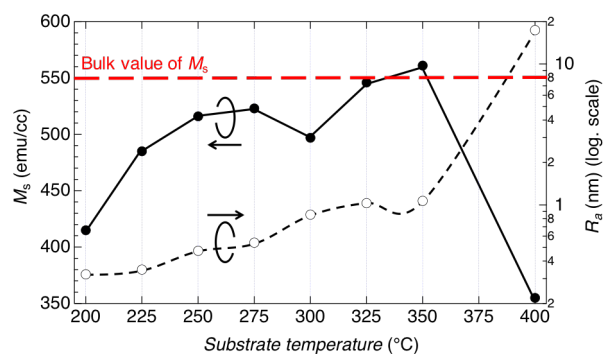


Fig. 1 Substrate temperature dependence of M_s and R_a .

謝辞: 本研究は文部科学省「未来実現のための ICT 基盤技術の研究開発」および科学研究費補助金基盤 S (No. 24226001)の支援により行われた。

参考文献

- 1) M. Hosoda, M. Oogane *et al*, J. Appl. Phys., 111, 07A324 (2012).

Mn₂VAl/Fe 積層膜における交換バイアス効果

土屋朋生¹, 小林亮太¹, 窪田崇秀^{1,2}, 高梨弘毅^{1,2}

(¹ 東北大学金属材料研究所, ² 東北大 スピントロニクス学術連携研究教育センター)

Exchange bias field of epitaxially grown Mn₂VAl/Fe bilayers

Tomoki Tsuchiya, Ryota Kobayashi, Takahide Kubota, and Koki Takanashi

(¹Institute for Materials Research, Tohoku Univ., ² CSRN, Tohoku Univ.)

緒言

ハードディスクドライブ (HDD) の磁気センサや磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) などのスピントロニクスデバイスにはスピンバルブ構造が用いられている。スピンバルブ中の反強磁性体は一方向磁気異方性により隣接する強磁性層の磁化を固定する役割を担っている。Mn₃Ir は高交換結合磁界と高ブロッキング温度を両立する魅力的な材料であるため、スピンバルブ構造に広く用いられているが、Ir は希少金属であり、元素戦略的な観点から使用量の削減が望まれる。本研究では、Mn₃Ir を代替しうる材料として反強磁性体のホイスラー合金に着目した。反強磁性ホイスラー合金は、Co-Fe 合金やハーフメタルホイスラー合金などのスピン偏極率が高い強磁性体材料と格子整合性が良く特性の向上が期待できる。他方、反強磁性ホイスラー合金を用いた交換バイアス効果の研究は少なく、系統的な実験による知見の蓄積が必要である。本研究では Mn₃Ir の代替材料として、ホイスラー合金 Mn₂VAl に注目した。Mn₂VAl はバルクにおいて A2 構造の時に反強磁性となり、そのネール温度は 600 K 以上と室温よりも十分に高い値であることが報告されている[1]。そこで、A2 構造の Mn₂VAl と強磁性体 Fe との積層膜を作製し、その結晶構造、磁気特性を系統的に調査することを目的とした。

実験方法

薄膜試料は MgO(100)単結晶基板上に DC マグネトロンスパッタ法を用いて作製した。Mn₂VAl の膜厚は 100 nm とし、成膜温度を室温から 700°C の範囲で変化させた。Mn₂VAl 薄膜上に強磁性層の Fe とキャップ層の Cr をそれぞれ 3 nm、室温で成膜した。試料は全層成膜後に 1 T の磁場を印加しながら 200 ~ 500°C でポストアニールを行った。Mn₂VAl 薄膜の組成は同時スパッタ法により化学量論組成に近づくように調整した。作製した試料の結晶構造は X 線構造回折法(XRD)、磁気特性は振動試料型磁力計(VSM)と超伝導量子干渉磁束計(SQUID)により測定した。

結果

XRD 測定の結果、全ての試料において、Mn₂VAl が MgO (100)単結晶基板上に(001)配向でエピタキシャル成長していることが確認された。また、成膜温度が室温、300°C、700°C の試料は A2 相、500°C の試料は L2₁ 相となることが確認された。一方、印加磁場 1 T において磁場中冷却を行った後に積層膜の磁化曲線を測定した結果、200 ~ 400°C でポストアニールを行った試料については、測定温度 10 K において磁化曲線の交換バイアスシフトが観察され、その最大値は 45 Oe であった。500°C でポストアニールを行った試料は、Fe 層の Mn₂VAl 層への拡散に起因すると考えられる磁化の消失が確認された。今後、室温での交換バイアスシフトの発現、シフト磁場の増大に向けて組成等の最適化を進める予定である。

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) および新素材共同研究開発センター共同利用研究 (課題番号: 16G0407) の支援を受けて行われた。

参考文献

- [1] 貝沼亮介、日本金属学会 2015 年秋期講演大会、S4・12、(2015)

IrMn/CoCr 交換結合膜における交換結合磁界 H_{ex} の時間変化

山内飛輝、遠藤拓*、鈴木良夫*

(日本大学大学院、*日本大学)

Time dependence of exchange coupling field H_{ex} in IrMn/CoCr exchange coupled film

T. Yamauchi, H. Endo, Y. Suzuki

(Nihon Univ. Graduate school, *Nihon Univ.)

はじめに

HDD の GMR ヘッド・TMR ヘッドには強磁性層と反強磁性層で構成される交換結合膜が利用されており、強磁性層と反強磁性層の界面における磁気的な作用の強さは交換結合磁界 H_{ex} で表される。

本研究の主な目的は H_{ex} を増大させる成膜条件の検討であるが、研究中に作製した試料を室温・大気中で保存した際に H_{ex} が時間の経過と共に増加する現象が見られた。保護膜の機能不全による試料の酸化を疑い、保護膜材料の違いによる影響を調べた。また、基板加熱を行いながら試料を作製し、基板加熱が H_{ex} の増加現象に与える影響を調べた。これらの結果から H_{ex} 増加現象を説明できる Mn 拡散モデルを考案した。

実験方法

交換結合膜は Ta/CoCr/IrMn/NiCr/Si(111) の構成とし、約 120 [Oe] の磁界を印加しながら DC マグネトロンスパッタ装置で成膜した。また、Pt を保護膜とした試料と保護膜なしの試料も作製した。基板加熱試料として加熱温度 50 [°C]、100 [°C] の二種類を作製した。全ての試料において IrMn ターゲットの組成は Ir₂₀Mn₈₀ [at%] のものを使用した。

実験結果

試料の酸化によって H_{ex} が時間と共に増加したという可能性について調べるため、保護膜の厚さや材料を変えた試料を作製し、比較した。Fig. 1 に Ta 保護膜の有無および厚さを変えて成膜した試料を室温で放置した際の H_{ex} の経時変化を示す。保護膜の厚さ、有無に関わらず、両者の H_{ex} は同様の傾向で増加した。ここで、室温放置のみで大きな H_{ex} の変化が発生したことに注目した。Pt 保護膜を使用して作製した試料でも同様の結果が得られ、 H_{ex} 増加現象の原因は保護膜の厚さや有無、膜の酸化によるものではないと推測される。

基板加熱が H_{ex} 増加現象へ与える影響を調べるため、基板加熱を行いながら試料を作製した。Fig. 2 に基板温度を変えて作製した試料の H_{ex} の変化を示す。基板加熱をした試料の H_{ex} は、全ての温度で基板加熱なしの試料の H_{ex} よりも減少した。この原因として、IrMn の組成変化が考えられる。反強磁性を得るには Ir₂₀Mn₈₀ [at%] が最適組成であると報告されている¹⁾。基板加熱により高温になるほど Mn が交換結合界面から拡散し、その結果、交換結合が弱まり H_{ex} が低下したことが考えられる。また、 H_{ex} が時間と共に増加する現象に関しては、基板加熱なしの試料と基板加熱 50°C の試料では見られたが、基板加熱 100°C の試料ではほとんど見られなかった。基板加熱 50°C の試料では Fig. 3 に示すように、基板加熱によって界面から離れていた Mn (白丸) の一部が室温の熱によって徐々に界面付近に戻り、 H_{ex} が増加したと解釈できる。基板加熱 100°C の試料では、Mn が界面からより離れた位置まで移動してしまい、時間経過後の H_{ex} の変化がなかったと考えられる。

参考文献

- 1) K. Hoshino et al., Jpn. J. Appl. Phys., 35, pp. 607-612(1996).

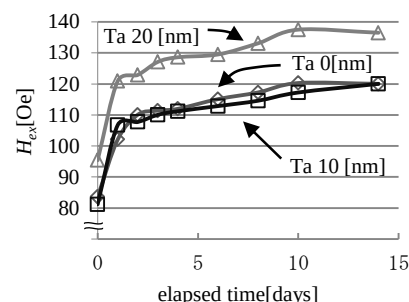


Fig. 1 Time dependence of H_{ex} for films with Ta capping layer of different thickness

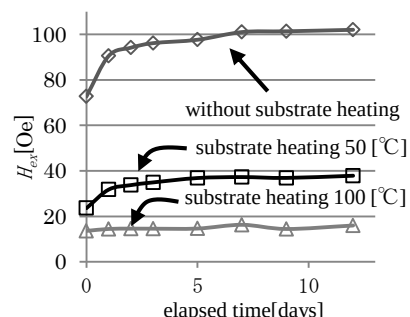


Fig. 2 Time dependence of H_{ex} for films deposited at different substrate temperatures

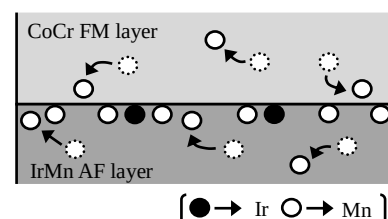


Fig. 3 Model of Mn dispersion in exchange coupled films (substrate heating 50 [°C])

低キュリー温度 CoPd/Pd 多層膜を用いた交換結合膜の磁化反転

董夏茵, 大島大輝, 加藤剛志, 園部義明*, 岩田聡

(名大, *サムスン日本研究所)

Magnetization switching of exchange coupled bilayers with low Curie temperature CoPd/Pd multilayers

X. Dong, D. Oshima, T. Kato, Y. Sonobe*, S. Iwata

(Nagoya Univ., *Samsung R&D Institute Japan)

1. はじめに

スピン注入磁化反転は, 大容量 MRAM を実現する技術として開発が進められているが, Gbit を超える容量の実現には, 高い熱安定性と低い臨界電流を両立させる高効率な磁化反転手法の開発が求められる. 我々は高効率な磁化反転を実現するメモリ層として, 低いキュリー温度 (低 T_C) と高い垂直磁気異方性 (高 K_u) を有する層と高 T_C , 低 K_u の層を交換結合させた積層型メモリ層に注目し, 低 T_C 層として CoPd/Pd 多層膜, 高 T_C 層として Co/Pd 多層膜を用いた積層膜の磁化反転特性を調べたので報告する.

2. 実験方法

熱酸化膜付 Si 基板上にマグネトロンスパッタ法により, Si sub. / Ta (10) / Pd (5) / [Pd (1.2) / Co (0.3)]₆ / Pd (t_{Pd}) / [Pd (1.2) / Co₄₅Pd₅₅ (0.3)]₆ / Pd (1.2) / Ta (2) (膜厚の単位は nm) を作製した. Co/Pd 多層膜と CoPd/Pd 多層膜の間の Pd 層厚 t_{Pd} は 0~10 nm で変化させた. 磁化の温度依存性, 加熱による磁化反転は, サンプルをヒーターの上に固定し, Kerr 効果を観測することにより調べた.

3. 実験結果

Co/Pd 多層膜および CoPd/Pd 多層膜の Kerr 回転角の温度依存性から, Co/Pd 多層膜の T_C は 300 °C 以上であるのに対し, Co 層を Co₄₅Pd₅₅ 合金層とした多層膜では, T_C を 75 °C まで低くできることを確認した. 図 1 は Co/Pd 多層膜と CoPd/Pd 多層膜を積層した交換結合膜について, 昇温, 冷却過程における Kerr 回転角を観測した結果である. なお, ここでは $t_{Pd} = 0$ nm の結果を示している. まず, (I) +7 kOe の磁界を印加して, 二つの層の磁化を上向きに飽和させた後, (II) 無磁場状態で試料を 180 °C まで昇温しながら Kerr 回転角の変化を調べた (●で示す). 約 90 °C で Kerr 回転角の低下が緩やかになっているが, これは CoPd/Pd の磁化が消失することに対応している. 次に 180 °C で, (III) -2 kOe の磁界を印加したところ, 回転角は大きく減少した. これは高 T_C 層の Co/Pd が磁化反転したことを示している. さらに (IV) Co/Pd の保磁力以下である +0.05 kOe の磁界を印加しながら室温まで冷却した際の Kerr 回転角の変化を調べた (■で示す). 上向きの磁界を印加しながら冷却したにもかかわらず, 低 T_C 層の CoPd/Pd の磁化は高 T_C の Co/Pd 層との交換結合により Co/Pd の磁化方向と平行 (下向き) になっていることが分かる. この結果から, 低 T_C /高 T_C 二層積層膜では高温で高 T_C 層のみを磁化反転させることで, 低 T_C 層の磁化も反転させられることが分かった.

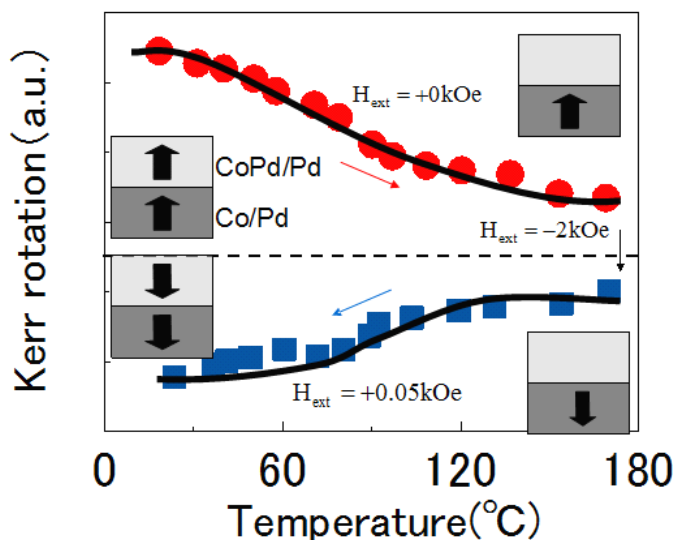


Fig. 1 Kerr signal monitored during heating and cooling of the [Pd / Co] / [Pd / CoPd] hybrid stack. No field was applied during the heating, and at 180 °C, negative field of -2 kOe was applied. Then small positive field +0.05 kOe was applied during the cooling.

対向ターゲット式スパッタ法を用いた FeCoB/SmCo₅ 薄膜の作製

田中純太、高村陽太、中川茂樹
(東京工業大学)

Fabricating FeCoB/SmCo₅ film prepared by Facing Target Sputtering

J.Tanaka, Y.Takamura, S.Nakagawa
(Tokyo Institute of Technology)

はじめに

最大エネルギー積が高くかつ耐熱性の高い永久磁石薄膜は、様々な環境下で使用が想定されるマイクロアクチュエーターやマイクロセンサー等の用途に需要がある。現在最も高い最大エネルギー積を持つ Nd₂Fe₁₄B は、キュリー点が 315℃ ほど低く耐熱性に難があるため、本研究では SmCo₅ を用いて永久磁石薄膜の作製を行った。この際に高飽和磁化を達成するために下地には、SmCo₅ の配向制御も期待し、高飽和磁化の FeCoB を採用した。FeCoB 層の厚さと成膜温度を変化させて薄膜を作製し、結晶構造、磁気特性の評価を行った結果を報告する。

実験方法

試料は対向ターゲット式スパッタ法により成膜した。

Si/SiO₂/FeCoB/SmCo₅/Ta 積層膜を基板温度 375-500℃で成膜し、結晶構造を X 線回折法(XRD)、磁気特性を振動試料型磁力計(VSM)、深さ方向組成分布を X 線光電子分光(XPS)、オーグジュ電子分光法(AES)により評価した。

実験結果

Fig.1 に Si/SiO₂/FeCoB/SmCo₅/Ta 多層膜において FeCoB シード層の膜厚を変化させた場合の XRD ダイアグラムの変化を示す。FeCoB 層は 5 nm 以下で(110)配向が得られ、それに伴い Sm-Co 合金相の(110)優先配向が得られていることがわかる。また、FeCoB の膜厚を薄くするに従い Sm-Co(110)ピークが広角にシフトすることが確認された。この原因を調べるため XPS により深さ方向の組成分布を測定したところ、FeCoB の厚さ 2 nm の試料は 20 nm の試料と比べ Sm-Co 層中の酸素濃度が高いことが確認された。また Sm のケミカルシフトの結果では、FeCoB が 2 nm の試料において Sm が選択的に酸化されていることが分かった。その結果 Sm-Co が Co リッチになり、1-5 系から 2-17 系へと組成が変化し回折ピーク位置がシフトしたと考えられる。

次に Si/SiO₂/Ta(5)/FeCoB(5 nm)/SmCo₅(20 nm)/Ta(20 nm)多層膜を、成膜温度を 375-500℃で成膜した。VSM で磁気特性を測定したところ、成膜温度 375℃では軟磁気特性を示し、400℃以上で硬磁気特性を示した (Fig.2)。また XRD の測定結果と合わせ、400℃以上での Sm-Co の結晶化を確認した。

参考文献

- 1) J. M. D. Coey, IEEE Trans. Magn. **47**, 12 (2011)

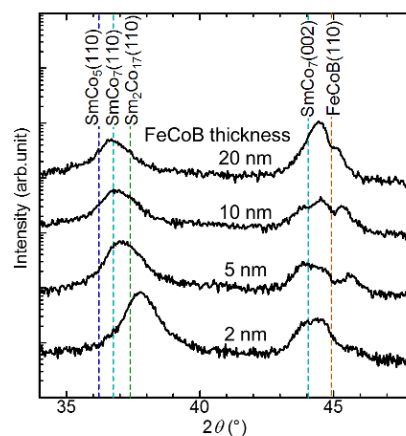


Fig.1 XRD diagram of FeCoB/SmCo₅(100 nm) multilayer

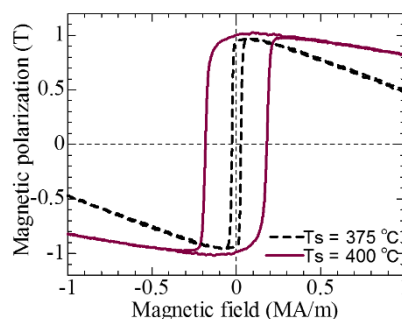


Fig.2 J-H loop of FeCoB/SmCo₅ multilayer prepared at Ts = 375, 400℃

エピタキシャル FePt/Co および FePd/Co 二層膜の構造解析

落合亮真¹・中村将大¹・大竹充^{1,2}・二本正昭¹・桐野文良³・稲葉信幸⁴

(¹中央大, ²工学院大, ³東京藝大, ⁴山形大)

Structural Characterization of Epitaxial FePt/Co and FePd/Co Bilayer Films

Ryoma Ochiai¹, Masahiro Nakamura¹, Mitsuru Ohtake^{1,2},

Masaaki Futamoto¹, Fumiyoshi Kirino³, and Nobuyuki Inaba⁴

(¹Chuo Univ., ²Kogakuin Univ., ³Tokyo Univ. Arts, ⁴Yamagata Univ.)

はじめに 硬磁性と軟磁性材料から構成される積層膜は異方性ナノコンポジット磁石の構造検討で活用されている。硬磁性材料として、 SmCo_5 や $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ などの希土類系合金材料が検討されているが、薄膜磁石応用では、高 K_u を持つ L_{10} -FePt, FePd 合金なども候補となる。しかしながら、形成報告例は殆ど無い¹⁻³⁾。本研究では、MgO 単結晶基板上に FePt もしくは FePd, Co からなる二層エピタキシャル膜を形成し、構造解析を行った。

実験方法 製膜には超高真空 RF マグネトロンスパッタ装置を使用し、基板には MgO(001), (110), (111)単結晶を用いた。基板上に 200 °C の基板温度で、FePt もしくは FePd 層, Co 層の順で形成した二層膜と、積層順を逆にした二層膜を形成した。膜形成後、 L_{10} 相への規則化を促進させるために 600 °C で熱処理を施した。構造解析には RHEED, XRD, AFM, 磁気特性評価には VSM を用いた。

実験結果 Fig. 1(a)に FePd/Co/MgO(001)試料で測定した面外および面内 XRD パターンを示す。面外パターンでは Fe-Pd(001)超格子反射, Fe-Pd(002)基本反射が観察されている。一方、面内 XRD パターンでは Fe-Pd(200)基本反射は観察されているが、 L_{10} -Fe-Pd 結晶からの超格子反射は認められない。従って、FePd 層は c 軸が面直に向いた L_{10} (001)結晶から構成されていることが分かる。Fig. 1(b)に FePt/Co/MgO(001)試料に対して測定した XRD パターンを示す。この場合は面外および面内パターンから Fe-Pt(001)超格子反射が観察されているため、 c 軸が面直に向いた L_{10} (001)結晶に加えて面内に向いた L_{10} (100)および L_{10} (010)結晶が混在していることが分かる。Fig. 1(c)および(d)に Co/FePd/MgO(001) および Co/FePt/MgO(001)試料で測定した XRD パターンを示す。どちらの試料においても面外パターンでのみ超格子反射が観察されているため、FePd, FePt 層は c 軸が面直に向いた L_{10} (001)結晶から構成されていることが分かる。

- 参考文献** 1) T. Teranishi, A. Wachi, M. Kanehara, T. Shoji, N. Sakuma, and M. Nakaya: *J. Am. Chem. Soc.*, **130**, 4210 (2008).
2) J. P. Liu, C. P. Luo, Y. Liu, and D. J. Sellmyer: *Appl. Phys. Lett.*, **72**, 483 (1998).
3) Y. K. Takahashi, T. O. Seki, K. Hono, T. Shima, and K. Takanashi: *J. Appl. Phys.*, **96**, 475 (2004).

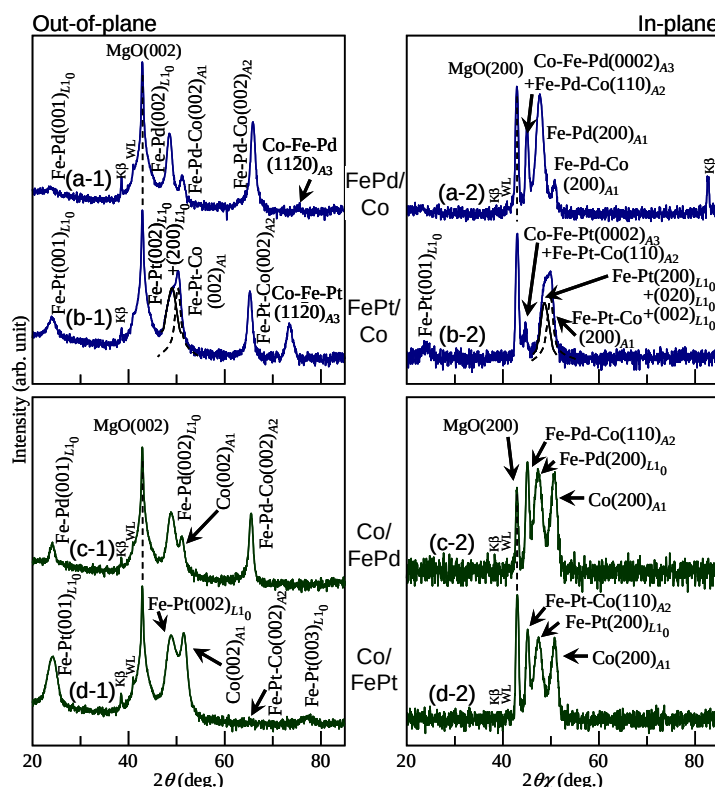


Fig. 1 (a-1)–(d-1) Out-of-plane and (a-2)–(d-2) in-plane XRD patterns of (a) FePd/Co and (b) FePt/Co and (c) Co/FePd, and (d) Co/FePt films formed on MgO(001) substrates.

キャップ層材料および層厚が FePt 合金薄膜の構造に及ぼす効果

大竹 充^{1,2}・中村 将大¹・二本 正昭¹・桐野 文良³・稲葉 信幸⁴

(¹中央大, ²工学院大, ³東京藝大, ⁴山形大)

Effects of Cap-Layer Material and Thickness on the Structure of FePt Alloy Thin Film

Mitsuru Ohtake^{1,2}, Masahiro Nakamura², Masaaki Futamoto², Fumiyoshi Kirino³, and Nobuyuki Inaba⁴

(¹Chuo Univ., ²Kogakuin Univ., ³Tokyo Univ. Arts, ⁴Yamagata Univ.)

はじめに FePt 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。デバイス応用では、磁化容易軸 (c 軸) が膜面垂直に向くように構造制御を行う必要がある。しかしながら、(001) 基板もしくは(001)下地層上に FePt 膜をヘテロエピタキシャル成長させる場合、 c 軸が面直に向く $L1_0$ (001) 結晶に加え、 c 軸が面内に存在する $L1_0$ (100), (010) 結晶 (面内バリエント) が混在する可能性がある¹⁻³。最近、我々は、MgO(001)キャップ層/FePt 膜/MgO(001)基板の積層構造で不規則構造を持つ FePt 膜を形成し、その後、 $L1_0$ 相へ規則化のための熱処理を施すことにより、FePt 結晶より大きな格子を持つ MgO 結晶との格子不整合によりもたらされる応力を FePt 膜に加え、 $L1_0$ -FePt 膜の配向制御を行ってきた³。本研究では、キャップ層材料および層厚が FePt 膜の構造に及ぼす効果について調べた。

実験方法 膜形成には超高真空 RF マグネトロンスパッタリング装置を用いた。MgO(001)基板上に 10 nm 厚の FePt 膜、2~10 nm 厚のキャップ層を形成した。キャップ層材料として、MgO および C を用いた。また、キャップ層無しの FePt 単層膜も形成した。膜形成時の基板温度は 200 °C とした。その後、600 °C で熱処理を施すことにより FePt 膜を $L1_0$ 相へ変態させた。構造評価には RHEED, XRD, AFM, 磁化曲線測定には AFM を用いた。

実験結果 MgO(001)基板上に形成した FePt 膜およびその上に形成した MgO キャップ層は(001)単結晶としてエピタキシャル成長しており、一方、FePt 膜上に形成した C キャップ層は非晶質となっていることを RHEED 観察により確認した。

Fig. 1(a)にキャップ層無しの FePt 膜の面外および面内 XRD パターンを示す。面外パターンに加え、面内パターンにおいても低強度ではあるが FePt(001)超格子反射が観察されており、面内バリエントが混在していることが分かる。Fig. 1(b)に 2 nm 厚の C キャップ層を持つ FePt 膜の結果を示す。キャップ層無しの場合と同様に、面内 FePt(001)反射が現れている。キャップ層無しおよび C キャップ層有りの FePt 膜の軸比 c/a および規則度 S は、それぞれ、 $(c/a, S) = (0.978, 0.58)$, $(0.978, 0.62)$ となり、ほぼ同様な値となった。Fig. 1(c)および(d)に 2 および 10 nm 厚の MgO キャップ層を持つ FePt 膜の XRD パターンを示す。面外パターンでは FePt(001)超格子反射が観察されており、面内パターンでは FePt(001)反射が現れていないため、 $L1_0$ (001)結晶のみに配向制御ができていることが分かる。2 および 10 nm 厚の MgO キャップ層を持つ FePt 膜の $(c/a, S)$ は、それぞれ、 $(0.960, 0.82)$, $(0.959, 0.83)$ となり、規則化に加え、正方晶歪が促進されていることが分かる。C キャップ層の場合、非晶質であるため FePt 膜と格子が連続になっておらず、一方、MgO キャップ層の場合、連続となっているため、格子不整合による応力が効果的に FePt 膜に加わり、規則化および正方晶歪が促進されたものと推察される。

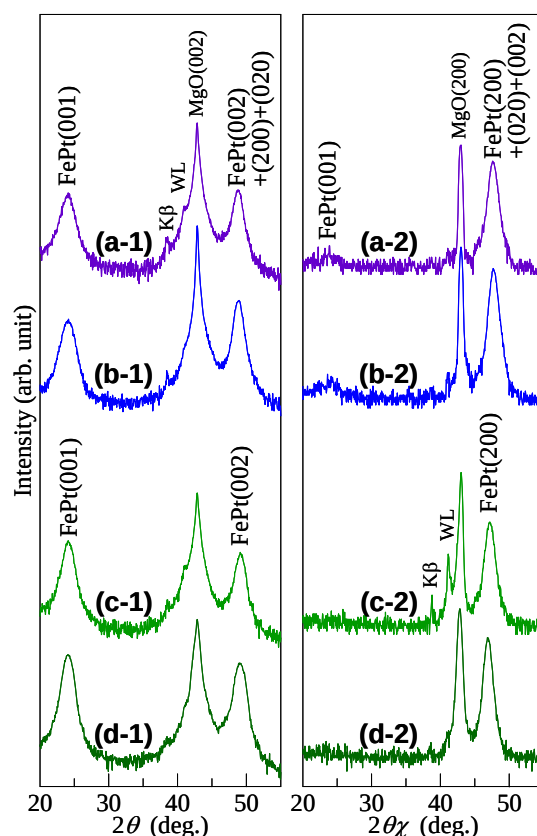


Fig. 1 (a-1)–(d-1) Out-of-plane and (a-2)–(d-2) in-plane XRD patterns of FePt films (a) without and (b)–(d) with (b) 2-nm-thick C, (d) 2-nm-thick MgO, and (e) 10-nm-thick MgO cap-layers. The scattering vector of in-plane XRD is parallel to MgO[100]. The intensity is shown in logarithmic scale.

- 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, A. Itabashi, M. Futamoto, F. Kirino, and M. Inaba: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **39**, 167 (2015).

磁性ナノ粒子の磁気緩和とパンケーキ型コイルを用いた誘導加温

青戸知広¹、高橋克希¹、星山弘樹¹、由岡友太¹、山田努¹、
 大多哲史²、池畑芳雄³、山田外史³、竹村泰司¹
 (横浜国立大学¹、静岡大学²、金沢大学³)

Relaxation of magnetic nanoparticles and inductive heating using a pancake-type applicator

T. Aoto¹, K. Takahashi¹, H. Hoshiyama¹, Y. Yoshioka¹, T. Yamada¹,
 S. Ota², Y. Ikehata³, S. Yamada³, Y. Takemura¹

(Yokohama National University¹, Shizuoka University², Kanazawa University³)

はじめに

我々はハイパーサーミア応用に向けた交流ヒステリシス測定や磁気緩和の解明などを行っている¹⁾。今回は、それらに加え、人体サイズで励磁することを目的に設計されたパンケーキ型コイルを用いた加温実験を行った。

実験方法

Figure 1 にパンケーキ型コイル²⁾の概観を示す。人体に交流磁場を印加する仕様として設計・作製されたものであり、コイル外径 360 mm である。リッツ線束 (直径 0.06 mm の素線を 250 本で束ねたもの) を 24 本で紐状に編み、中空で直径約 10 mm としたものを 5 ターン巻いている。コイルの周囲は冷却液 (フッ素系不活性液体) で満たされており、励磁電流は 400 A_{rms} 通電することが可能である。

試料は市販されている磁性流体 (株式会社シグマハイケミカル、M-300、一次粒径 11±3 nm、二次粒径 52±15 nm のマグネタイト Fe₃O₄) を用いた。

本加温実験では試料 135 μl (鉄 50 mg 含有) を Fig.1 下部に示した人体ファントム中でコイルから 90 mm 離れた地点に設置した。パンケーキ型コイルに 185 A_{rms}、周波数 142 kHz の交流電流を通電した。印加磁界強度は 2.48 kA/m である。また純粋な試料の発熱によるものであることを確かめるために、試料を設置せずに同条件で温度上昇を測定した。

実験結果

Figure 2 に測定結果を示す。磁性流体試料は 10 分間で 20℃以上の温度上昇が観測された一方で、試料を設置しなかった場合は温度上昇が観測されなかった。これによりコイルの輻射熱の影響は無いことがわかる。

当日は、人体ファントムを用いた実験や磁気緩和特性の詳細を報告する。

謝辞: 本研究の一部は JSPS 科研費 26289124、及び 15H05764 の助成を受けて実施した。



Fig. 1 Pancake-type applicator and human-body phantom.

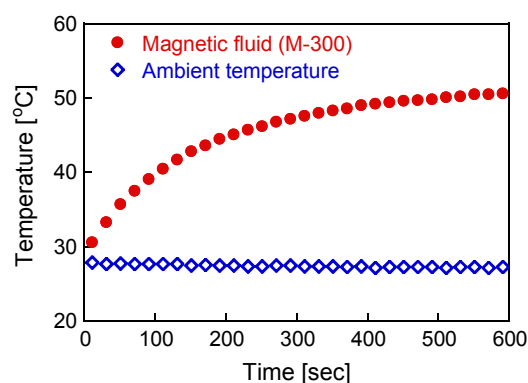


Fig. 2 Temperature rise of magnetic nanoparticles.

参考文献

- 1) 北口了一、大多哲史、山田努、竹村泰司 : “磁性ナノ粒子の磁気緩和特性とその液中濃度・粘度依存”、第 39 回 日本磁気学会学術講演会、09aE-5、名古屋、2015 年。
- 2) 山田外史、池畑芳雄、林亮平、山崎涼平、大田貴司 : “癌温熱療法のためのダブルパンケーキ形コイルシステムの開発”、電気学会マグネティックス研究会、MAG-15-013、金沢、2015 年。

磁性ナノ粒子の形態に依存した磁気緩和機構の評価

大多哲史¹、大橋成美¹、Subbiah Latha²、Chakrapani Prabu²、Palanisamy Selvamani²、竹村泰司³

(¹ 静岡大学、² Anna University、³ 横浜国立大学)

Evaluation in magnetic relaxation of magnetic nanoparticle influenced by its condition

S. Ota¹, N. Ohashi¹, S. Latha², C. Prabu², P. Selvamani², Y. Takemura³

¹Shizuoka University, ²Anna University, ³Yokohama National University

はじめに

磁性ナノ粒子の磁気緩和機構の評価は、がん温熱治療や磁気粒子イメージングへの応用をする上で重要な課題である。本研究では、水中、固体状態、細胞環境の粒子の磁気緩和機構を交流磁化曲線の測定により評価した。また腫瘍内において粒子の磁化が低下により発熱量が低下することは、直流磁化曲線の評価することで明らかになっている¹⁾。

実験方法・結果

コア粒径が 9.8 nm のマグネタイト粒子について最大磁場 4, 8 kA/m、周波数 100-500 kHz の条件で交流磁化測定を行った。水中分散試料(Liquid)、エポキシ樹脂による固体試料(Fixed)に加えて、がん細胞に粒子を添加し、その細胞を剥離・回収した細胞試料(Cellular)を用意し、それぞれについて交流磁化測定を行った。

Fig. 1 に各試料の交流磁化曲線を示す。Liquid においてはネール緩和に加えてブラウン緩和も生じるため Fixed に比べて磁化、保磁力共に大きいことが確認された。また Cellular は Fixed に比べて磁化が小さくなった。これは細胞内において粒子の凝集が生じて、磁気相互作用が大きくなったためと考えられる²⁾。磁気相互作用による磁化の低下は濃度を变化させた水中分散粒子においても確認されている³⁾。Fig. 2 は交流磁化曲線の面積から算出した発熱量(Specific loss power: SLP)の励磁周波数依存性を示している。SLP について、Liquid は Fixed よりも大きく、Cellular は Fixed よりも小さくなった。これらは、Liquid は Fixed よりも磁化が大きく、磁気緩和における位相遅れが大きいこと、Cellular は Fixed よりも磁化が小さく位相遅れが同程度であることにそれぞれ起因する。また機能化させた磁性ナノ粒子などの磁化特性についても当日発表する。

謝辞：

本研究の一部は JSPS 科研費 26289124、及び 15H05764 の助成を受けて実施した。

参考文献

- 1) S. Dutz, M. Kettering, I. Hilger, R. Müller, M. Zeisberger: *Nanotechnol*, **22**, 265102, 2011.
- 2) S. Ota, T. Yamada, Y. Takemura: *Nanomater.*, **2015**, 836761, 2015.
- 3) S. Ota, T. Yamada, Y. Takemura: *J. Appl. Phys*, **117**, 17D713, 2015.

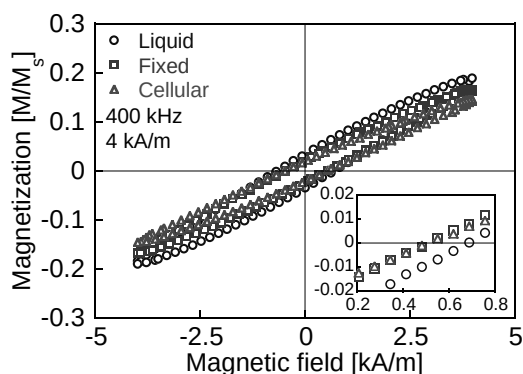


Fig. 1 水中、固体、細胞試料における磁化曲線

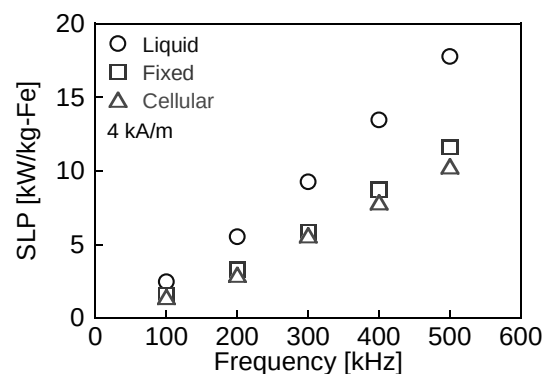


Fig. 2 各試料における SLP の周波数依存性

Single-Sided 磁気粒子イメージング システムの開発

山本 和志*, 笹山 瑛由, 松尾 政晃, 吉田 敬, 圓福 敬二
九州大学システム情報科学府

Development of Single-sided Magnetic Particle Imaging system

Kazushi Yamamoto, Teruyoshi Sasayama, Masaaki Matsuo, Takashi Yoshida, Keiji Enpuku
Kyushu Univ.

1. はじめに

磁気マーカーを体内に注入し、その磁気信号を検出することで癌等の疾病領域を高感度・高分解能に画像化する磁気粒子イメージング (MPI) 技術が医療診断において注目されている。本研究では、センチネルリンパ節生検への応用を想定した MPI システムの開発を行っている。これまでの研究ではサンプルの下側に FFP(Field Free Point) を含む傾斜磁界を作り出す傾斜磁界コイルを配置し、上側にその他システムを配置してイメージングを行っていた。しかし、医療応用を想定すると検査対象である患者の上下にシステムを配置するのは利便性に欠ける。今回、システム全体をサンプル上側に集積した状態で MPI を行う Single-Sided MPI システムを用いて 2 つのサンプルの識別に成功したため、以下に報告する。

2. 磁気粒子イメージング

本システムでは、サンプル (Resovist; 500 μg を直径 6 mm ϕ の容器に入れたもの) に交流励起磁界 1 mT (周波数 10 kHz) とこれに直交する直流傾斜磁界を印加し、サンプルからの第三高調波を検出している。Fig.1 に今回用いたイメージングシステムの写真を示す。磁気ナノ粒子は、交流励起磁界に直流磁界が重畳されたとき、粒子の磁化飽和によりその応答信号は抑制されるという特徴を持つ。このため、直流磁界がゼロとなる点 (FFP) を持つ直流傾斜磁界を用いることで、FFP 上にある粒子からのみ信号を得ることができる。この FFP を含む直流傾斜磁界を作り出すのが Fig.1 に示す傾斜磁界コイルである。

本システムでは、FFP を電氣的に走査する方法を用いてイメージングを行っている。Fig.1 に示す様に FFP の電氣的走査用のシフトコイル (銅線径 1 mm、巻数 88 turns) が傾斜磁界コイルの外周に巻いてあり、それぞれに適当な電流を印加することにより、FFP を走査することができる。これによりサンプルを中央に配置したままでイメージングを行うことが可能となった。

今回、リンパ節がイメージング範囲内に複数ある場合を想定し、サンプルを 2 つ配置し、傾斜磁界コイルに 5A、シフトコイルに 9 A_{p-p} の三角波 (周波数 2 Hz) を印加して、32 mm 四方の範囲でイメージングを行った (Fig. 2)。図に示す様に磁界マップにはサンプル位置に対応する二つのピークが観測された。すなわち、二つのサンプルを識別するとともに、このピーク位置からサンプルの場所の特定をすることが出来る。

3. まとめ

Single-Sided 磁気粒子イメージングシステムを開発し、サンプル 2 つのイメージングを行った。傾斜磁界コイルを用いて空間分解能を向上させることで 2 つ配置されたサンプルの識別に成功した。

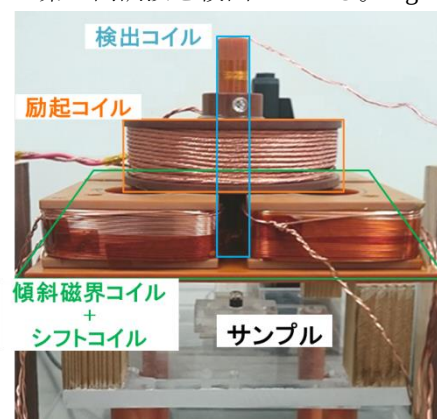


Fig.1. Picture of Single-Sided MPI system

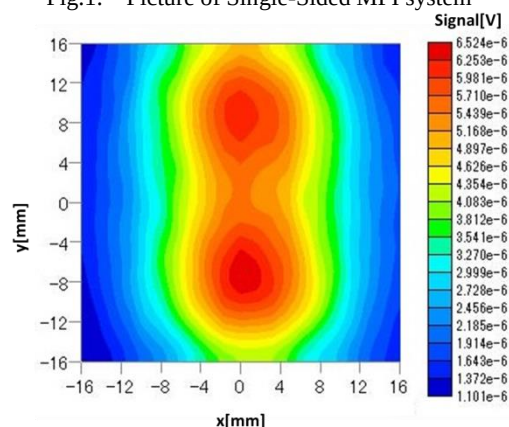


Fig. 2. Contour map of the magnetic field using Single-Sided MPI system. The gradient field is 0.4 T/m.

磁気ナノ粒子の交流磁化特性の磁界強度および周波数依存性

笹山 瑛由、吉田 敬、圓福 敬二
(九州大学)

Intensity and Frequency Dependence of AC Magnetization Characteristics of Magnetic Nanoparticles

Teruyoshi Sasayama, Takashi Yoshida, Keiji Enpuku
(Kyushu University)

1. はじめに

ナノメートルサイズの磁気ナノ粒子を高分子でコーティングし、その表面に検査試薬や薬剤を固定したものは磁気マーカーと呼ばれる。磁気マーカーの交流磁化特性は、ネール緩和およびブラウン緩和などの緩和時間の存在により、磁気粒子イメージング (MPI) の感度や空間分解能に影響を与える。本研究では、磁気マーカー (Resovist、富士フイルム RI ファーマ製) について交流磁界の磁界強度および周波数を変化させながら交流ヒステリシスループの測定を行い、交流磁界の磁界強度および周波数が磁気マーカーの交流磁化特性に及ぼす影響について検討を行った。なお、生体内に磁気マーカーを導入したときにはブラウン運動が抑制されてネール緩和が支配的になると考えられるため、磁気マーカーを固相化して検討を行った。

2. 方法¹⁾

磁気ナノ粒子を励起する交流磁場の生成にはリッツ線 ($\phi 0.1$ mm、600 本) を 64 回巻いたソレノイドコイル (内径 20 mm、長さ 40 mm) を用いた。LC 共振回路により励起し、キャパシタの容量を変化させて共振周波数を変化させた。磁化検出には単線 ($\phi 0.2$ mm) を 9 回巻いた検出コイルを用いた。検出コイルに誘起された電圧をアイソレーションアンプ (エヌエフ回路設計ブロック、5325) で増幅した後、A/D コンバータ (NI、PXIe-5122) にて取得し、その電圧値を積分することで磁化 M を求めた。磁界 H はシャント抵抗 (N4L、HF001) に流れる励磁電流を計測して求めた。

3. 結果

図 1 に 5 mT (rms) および 15 mT (rms) で励起時の交流ヒステリシスループを示す。高周波であるほど交流ヒステリシスループが開いていることから、MPI において走査速度が速いほど検出信号に遅れが生じることを示唆している。

図 2 に 5 mT (rms) および 15 mT (rms) で励起時の検出信号 ($V = -dM/dt$) の高調波スペクトルを示す。励起磁界が低磁界あるいは高周波であるほど高調波信号の減衰が大きくなっている。高調波信号を利用する MPI の場合、図 2 の特性を考慮しながら励起磁界強度および周波数を設定する必要がある。

謝辞：本研究は JSPS 科研費 (16K18114) の助成により行った。

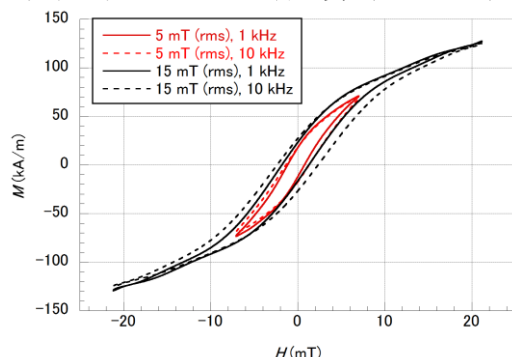


Fig. 1 AC hysteresis loops.

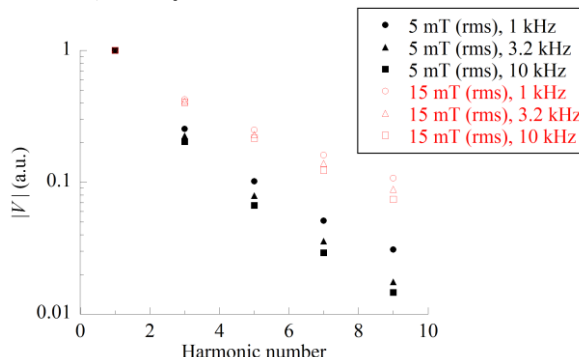


Fig. 2 Harmonic spectrum.

参考文献

- 1) T. Sasayama, T. Yoshida, K. Tanabe, N. Tsujimura, and K. Enpuku, IEEE Trans. Magn. 51, 5101504 (2015)

周波数及び磁界強度に依存した 超常磁性ナノ粒子の磁化ダイナミクス計測

大多哲史¹、竹田遼二²、山田努²、竹村泰司²
(¹静岡大学、²横浜国立大学)

Measurement of magnetization dynamics in superparamagnetic nanoparticle
depended on field frequency and intensity

S. Ota¹, R. Takeda², T. Yamada², Y. Takemura²

¹Shizuoka University, ²Yokohama National University

はじめに

磁性ナノ粒子の磁化ダイナミクスを理解することはがん温熱治療や磁気粒子イメージングといった粒子の医療応用を行う上で必要である。本研究では、特に励磁周波数、磁界強度に依存した超常磁性ナノ粒子の磁化回転を観測した。

実験方法・結果

コア粒径が 5 nm のマグヘマイト粒子（フェルカルボトラン）について最大磁場 2–10 kA/m、周波数 0.2–400 kHz の条件で交流磁化測定を行った。測定は粒子を水中に分散させた液中試料(Liquid)および寒天により固定した固体試料(Fixed)について行った。

Fig. 1 は、各磁界強度における ILP (Intrinsic loss power)の周波数依存性を表している。Liquid において確認されたピークが Fixed には存在しないことから、ブラウン緩和によるピークであると考えられる¹⁾。またピーク周波数が磁界強度の増加に伴い上昇した。これは粒子回転が磁気トルクにより生じているためブラウン緩和時間が磁気トルクの増加に伴い短くなるためと考えられる²⁾。また 0.2 kHz などの低周波では ILP が Liquid よりも Fixed の方が小さい値を示している。この傾向は従来研究でも確認されていて³⁾、本傾向からも超常磁性ナノ粒子の磁化回転に関する知見を示した。さらに Fig. 2 は 1 kHz における Liquid 及び Fixed の磁化と Liquid と Fixed の差を取ることで算出した粒子回転による磁化の増加分についての波形を表している。この見積もりにより粒子回転の位相遅れを算出可能である。本発表では交流磁化測定から見積もった超常磁性ナノ粒子の液中及び固体状態の磁化回転モデルを示す。

謝辞：

本研究の一部は JSPS 科研費 26289124、及び 15H05764 の助成を受けて実施した。

測定に使用した磁性ナノ粒子は、名糖産業株式会社より提供いただきました。ここに深謝申し上げます。

参考文献

- 1) S. Ota et al. *J. Appl. Phys.*, **117**, 17D713, 2015.
- 2) T. Yoshida and K. Enpuku, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **48**, 127002, 2009.
- 3) R. Hergt et al., *J. Magn. Mater.*, **280**, 358, 2004.

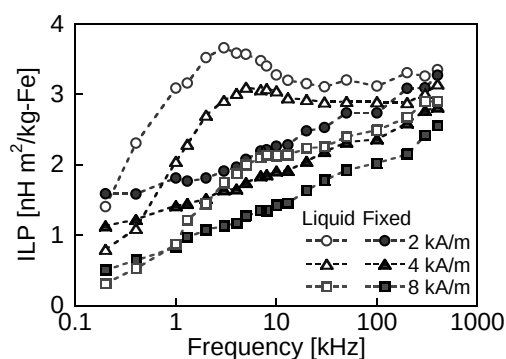


Fig. 1 ILP の励磁周波数及び磁界強度依存性

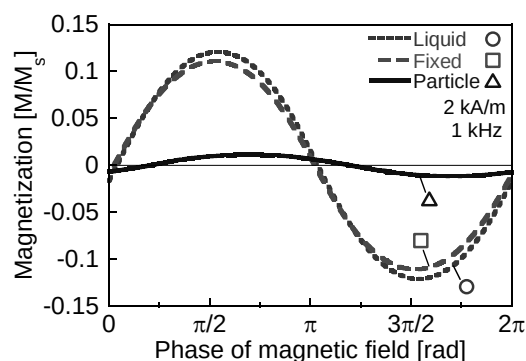


Fig. 2 各試料条件の磁化信号波形

水溶液中のイオン濃度と磁性ナノ粒子のブラウン緩和との相関

小田翔也、北本仁孝
(東京工業大学)

Study of relationship between Brownian relaxation and ionic concentration in aqueous solution

Shoya Oda, Yoshitaka Kitamoto
(Tokyo Institute of Technology)

諸言

体内の体液中には様々なイオンが溶けている。例えば Na, Cl, K イオン等が存在する。イオンは体液の循環や神経の伝達に作用している。これらのイオンのバランスは適度に保たれているが、腎臓に疾患がある場合などはイオン濃度が定常値からずれる。そのため体液のイオン濃度を測定することで疾患の有無を検査することができる。NaCl を用いて、水溶液のイオン濃度を増加させた場合に交流磁場に応答する磁気信号を測定した結果、高調波信号が低下したことを報告した[1]。交流磁化応答の遅れが顕著になる周波数領域まで測定を行い、粒子の振舞により高調波信号がどのように変化するかを調べた結果を報告する。

実験方法

磁性粒子を励磁するためにソレノイドコイルを使用した。印加する磁場強度は最大で $120 \text{ G}_{\text{p-p}}$ 、測定周波数は 510 Hz から最高で 10000 Hz までとした。また磁場検出のために、もう一つのソレノイドコイルを用いた。測定用コイルは励磁用コイルの内側に設置した。磁性流体はカプセル状の容器に内包し、カプセルは測定用コイルの内部に設置した。磁性流体中に含まれる磁性粒子は酸化鉄粒子（平均直径約 13 nm ）を使用した。加えたイオンは NaCl であり、 0.18 mol/L 、 0.35 mol/L に調整し、それぞれ $25 \mu\text{L}$ 採取し、 $5 \mu\text{L}$ の磁性流体に加えた。最終的な NaCl 濃度はそれぞれ 0.14 mol/L 、 0.29 mol/L である。

実験結果

Fig. 1 に交流磁化率の周波数依存性を示す。交流磁化率の結果より、イオン濃度が高くなるに従って磁化率が低下することがわかった。イオン濃度の増加による粒子同士の凝集により、流体力学的径が増加したために緩和時間が長くなることが原因と考えられる。また周波数が高くなるとイオン濃度に関わらず信号が低下した。この結果は粒子が次第に励磁信号に応答出来なくなることと示していると考えられる。Fig. 2 には第五次高調波信号の基本波の周波数に対する依存性を示した。Fig. 2 に示されているように、高調波信号はある周波数において極小値を持つことがわかった。またこの極小値はイオン濃度の増加、すなわち緩和時間に関係しており、緩和時間が長くなるとともに極小値をとる周波数は低下した。この原因として、周波数が高くなるに伴い、ヒステリシスを描くなどランジュバン関数で描かれる磁化曲線から外れていくことなどが考えられる。今回得られた結果より力学的な運動を伴う高調波信号測定は、粒子周りのイオン濃度などの環境に応じて極小値を持つことから、結果を考察することによって粒子の振舞を解明できるものと期待できる。

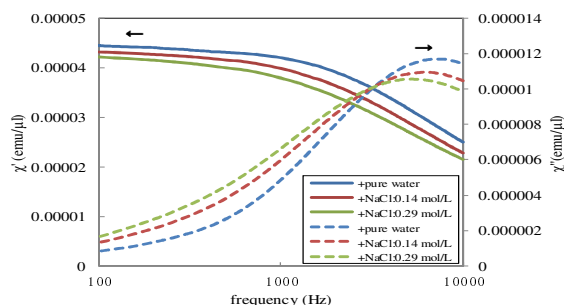


Fig. 1 AC susceptibility of magnetic fluid

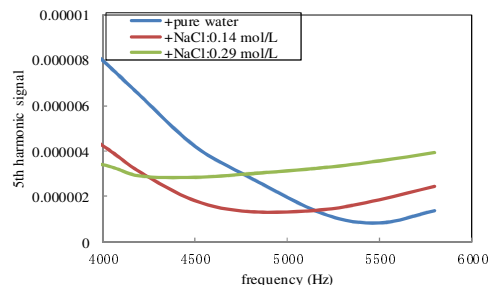


Fig. 2 Dependence of 5th harmonic signal on frequency

参考文献

- 1) 小田翔也, 他, 第 39 回日本磁気学会学術講演会, 8pE-2 (2015).

Low oscillatory-field relaxometry for estimating hydrodynamic-size distribution of magnetic nanoparticles dispersed in a liquid medium

S. B. Trisnanto¹, Y. Kitamoto¹

¹Tokyo Institute of Technology, Yokohama 226-8052, Japan

The relaxation behaviors involving both magnetic moment and particle rotations are key phenomena in a dynamically-magnetized magnetic nanoparticle suspension, which are practically observable through its magnetization responses. For a ferrofluid, the varying primary and secondary (hydrodynamic) sizes of the suspended particles are responsible for the broadening relaxation-time distribution which leads to technical disadvantage toward magnetic biosensing (*i.e.*, liquid-phase magnetic immunoassay) in term of accuracy. As an alternative method of preliminary particle-size characterization, we developed a low oscillatory-field relaxometry which is, in principle, an estimation of relaxation-time distribution corresponding to frequency-dependent complex magnetic susceptibility, further addressable to the particle-size distribution. Practically, we implemented a coil-based inductive magnetometry which measures the inductive voltage triggered by a frequency-modulated magnetic field, further converted into a frequency-domain transfer-function to obtain signal components: magnitude and phase. Comparing these parameters of a colloidal magnetic sample to that of the reference (*i.e.*, free sample) in terms of magnitude ratio and phase difference estimates complex magnetic susceptibility of the sample, which is further correlated with the Debye relaxation model to generate a discrete probability density function (PDF) of relaxation-time distribution. The corresponding hydrodynamic-size is then calculated by satisfying the well-known Brownian relaxation-time equation¹⁾ on each sampling point of the PDF. To demonstrate the performance of the system, we, here, evaluated two water-based iron oxide nanoparticle suspensions having roughly 0.5 wt. % particle-concentration and different surface-coating; these suspensions are sufficiently-dense to be accurately-characterized by dynamic light scattering (DLS) measurement. A chirp ac current with the logarithmic instantaneous sampling-frequencies ranging from 275 Hz to 325 kHz was fed to an impedingly-controlled induction coil, thus producing a relatively-constant 1 Oe_{rms}-magnetic field at the operating frequency range. Under this synthesized magnetic-field, the frequency-dependent magnetic moments of the 80 μ l samples were characterized, as shown in Fig. 1a. Since the applied field is considerably-small, thermal energy should be dominant to kinetically-randomize the particle motions, instead of particle rotation. This system, therefore, indirectly measures translational Brownian relaxation, as well as nanoscopic single-particle vibration of the weakly-clustered-particles, in which the resulting magnetization dynamics are coherent with the applied field. Correspondingly, the hydrodynamic-size distribution $\rho(D_h)$ extracted from Fig. 1a indicates that the samples were polydisperse ferrofluids with the overlapped lognormal size-distributions (Fig. 1b). For sample 1 (having 15.85 and 20.01 nm in mean primary-sizes), there are 2 mean secondary-particle-sizes at 34.12 and 66.69 nm, in which the smaller D_h is attributable to single-particle dispersion, whereas the larger one may include the cluster formed. Meanwhile, for sample 2 (having 6.35 nm in mean primary particle-size), we indicated the multiple mean secondary-particle-sizes at 19.11, 35.87, 48.42, and 121.51 nm, suggesting that the suspended particles exist as a particle-cluster. In conclusion, we have shown that a low oscillatory-field relaxometry is capable of analyzing hydrodynamic size distribution of ferrofluid. However, our current system can only characterize magnetic samples which have magnetic moment more than 1×10^{-5} emu.

Reference

- 1) W. T. Coffey *et al*, Adv. Chem. Phys., **83** (2007) 263.

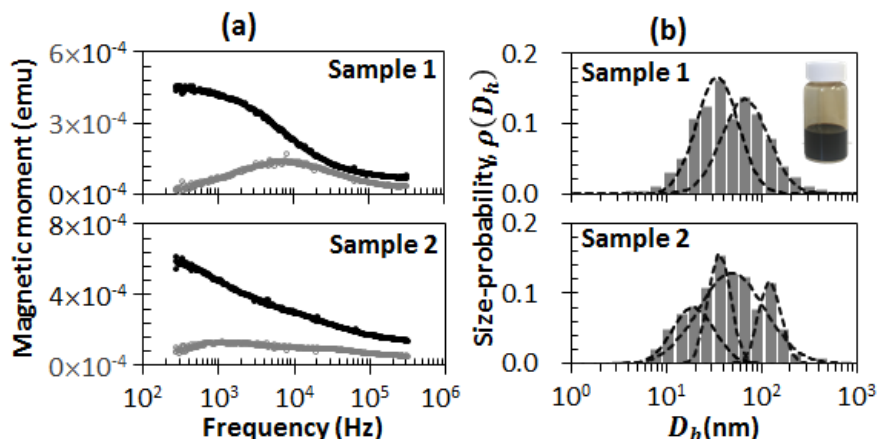


Fig. 1 (a) Frequency-dependent magnetic moment of magnetic suspensions measured at 1 Oe_{rms} and (b) numerical estimation of the corresponding hydrodynamic size distribution of the suspended particles

高感度 MI センサによる誘発性脳磁場 N100 信号検出の試み

沈 清如、王 可望、内山 剛

(名古屋大学)

N100 Brain Waves Detection Using Highly Sensitive MI Sensor

Q. Shen, K. Wang, T. Uchiyama

(Nagoya University)

はじめに

脳の活動によって、頭部周辺には微小な磁場が誘発される。これは脳磁図と呼ばれ、地磁気の1億分の1以下と微弱であるため、測定には超高感度センサが必要である。パルス通電による磁化回転を用いた磁気インピータンス (MI) センサは、pT(10-12T)オーダーの磁界検出分解能が実現でき、平滑筋などの細胞組織の電気活動に伴う電流の変化を磁場の形で捉えることが可能である。刺激に対し、刺激呈示後、潜時100ミリ秒前後で発生する陰性電位がN100と呼ぶ。本研究では、MIセンサを用いて脳波N100に対応する磁気信号の検出を試みた。

実験方法と結果

事象関連電位N100信号を検出するため、座った状態の被験者に一種類の刺激音(1000Hz)をランダムに聞かせた。MIセンサは被験者の右側頭部に設置され、頭との間隔が約5mmである。音源も右側に設置されている。図1は、実験の図である。図2に、今回の実験により得られた側頭部の生体信号の時間領域波形を示す。測定したデータは200回の加算平均を行って求めた3回の試行実験の結果である。信号は-100msから0msの平均値をオフセットとして補正した。100ms付近にN100に対応すると考えられる、陰性信号のピークが観察されているが、信号の大きさにばらつきが見られる。加算回数を増やした実験により計測精度を確認する予定である。

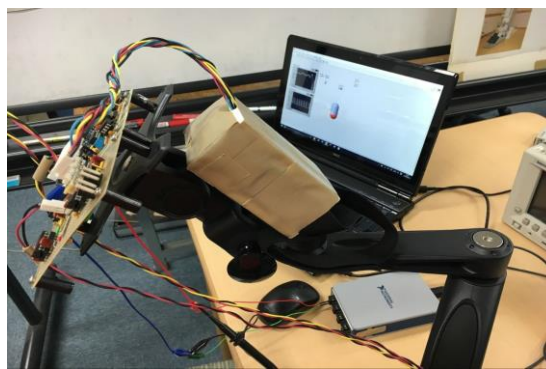


Fig1. Magnetic field measurement system at the temporal region using MI sensor

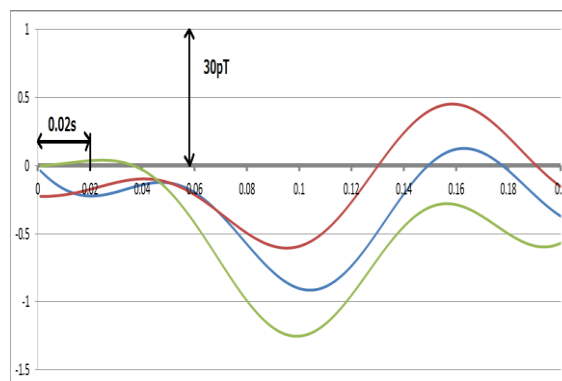


Fig 2. Time series of magnetic wave forms in the temporal region due to single stimulus

[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] Pause.B.M, Sojka.B, Krauel.K, Ferstl.R.(1996). "The nature of the late positive complex within the olfactory event-related potential (OERP)". Psychophysiology vol 33, no.4, pp.376-384.

MI センサを使用した通常環境下での心磁図計測

田中武, 畑善之, 緒方祐史, 柿沼文一, 上田智章*, 小林宏一郎**
((株)アドバンテスト研究所、*(株)フォスメガ **岩手大学)

Magnetocardiogram measurement using MI sensor outside magnetically shielded room

T. Tanaka, Y. Hata, Y. Ogata, B. Kakinuma, T. Ueda*, and K. Kobayashi**

(Advantest Laboratories Limited, *PhosMega Co., Ltd, **Iwate University)

はじめに

心磁図は心電図よりも高確率で虚血を発見できる臨床事例が報告されていることから¹⁾、虚血性心疾患の検出に有効であるが、これまで心磁図計測に使用されてきた SQUID 磁束計は、装置自体の価格が高いこと、液体ヘリウムによる冷却が必要であるためランニングコストが高いこと、及び計測には磁気シールドルームが必要であるという3つの問題がある。そのため、装置の低価格化、及び小型化は非常に困難であり、生活中での常時モニタは事実上不可能である。そこで、比較的安価であり、かつ常温で動作するセンサを用いて、心磁図計測を行うことで、虚血性心疾患の早期発見の一助となると考えられる。本研究では常温動作可能な磁気検出素子を使用し、磁気シールドルームを用いずに心磁図計測を試みた。

実験方法

常温磁気検出用センサとして採用した MI センサ²⁾は原理的に低ノイズレベルであることが報告されていることから³⁾、微弱な生体磁気を検出できる可能性が高いと考えられる。具体的には、アイチ・マイクロ・インテリジェント社製の高感度磁気センサ(型式: MI-CB-1DJ)を使用し、Ch 数は 25、5cm 間隔で縦 5×横 5 の正方形のアレイを構成した。測定条件は図 1 に示すように、被験者が寝た状態で、上からセンサをかざして Z 方向(体表面の向き)とし、Ch.22 を剣状突起の位置に合わせた。体表面からセンサまでの距離は、最接近チャンネルで約 5mm、心電図(I 誘導)も同時に計測を行った(計測時間は 5 分)。商用電源ノイズは移動平均処理での除去、外来磁気ノイズは多 Ch のデータを使用しての除去、心電同期加算処理による除去、及び 25Ch のデータを 9Ch に圧縮することによる空間的平均化処理による除去を行った。

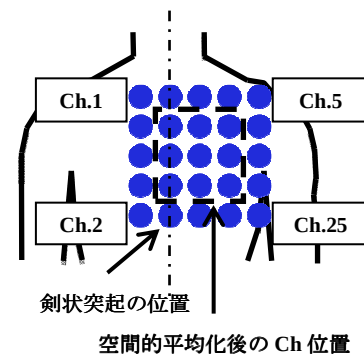


図 1. 計測位置の概略図

実験結果

測定結果を図 2 に示す。図中の実線が心磁図、点線が心電図を表す。外来磁気ノイズ、及び MI センサ自身のノイズが低減されることにより、心電図と同期したタイミングで R 波、S 波、及び T 波が観測できた。また、心臓を挟んで波形が反転していることも考慮すると、心磁図を計測していることが分かる。また、SQUID と比較してセンサの距離を近づけることが出来ることにより、商用電源ノイズ除去のための移動平均処理、及び空間的平均化処理を行っているにもかかわらず R 波は最大で 60pT の信号を検出できた。

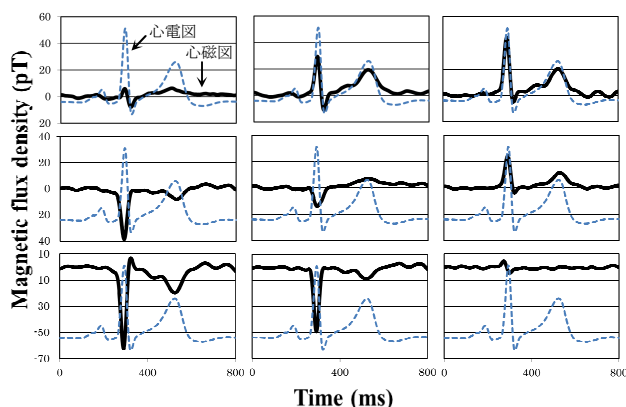


図 2 心磁図計測結果.

参考文献

- 1) 神鳥明彦:心磁計の基本技術と臨床応用技術, 電気学会論文誌 A 125 巻 2 号, pp.81-84, (2005)
- 2) L. V. Panina and K. Mohri: Appl. Phys. Lett. Vol.65 (9), pp.1189-1191, (1994)
- 3) L. G. C. Melo et al : J. Appl. Phys. 103, pp.033903-1-6, (2008)

脳磁計ファントムを利用した磁気センサの評価手法

小山大介, 足立善昭, 上原弦

(金沢工業大学 先端電子技術応用研究所)

Evaluation Method of Magnetic Sensors Using Phantom for Magnetoencephalography

Daisuke Oyama, Yoshiaki Adachi, Gen Uehara

(Applied Electronics Laboratory, Kanazawa Institute of Technology)

はじめに 近年, 冷媒による冷却が不要な磁気センサの高感度化が進み, 心磁図や脳磁図等の生体磁気計測への応用に関する研究が進められている. しかし, 生体計測ではいわゆる「正解」の信号がはっきりしないため, 実際の生体磁気信号計測だけではセンサシステムの評価が難しい. そこで著者らは, システムの定量的な評価を目的として, 脳磁計用ファントムを利用した評価方法を提案している. 本研究ではその一例として, ファントムによって発生させた磁界分布を市販の磁気センサを用いて計測した結果について発表する.

実験方法 Fig. 1 に実験方法の概要を示す. ファントムは著者らが開発した乾式ファントム¹⁾を利用した. ファントムを構成する二等辺三角形コイルに周波数 11 Hz, 振幅 $10\ \mu\text{A}$ の正弦波電流をバースト状に印加して磁気信号を発生させた. ここで, 振幅 $10\ \mu\text{A}$ の電流を印加した場合の等価電流双極子の大きさは約 $50\ \text{nA}\cdot\text{m}$ であり, 脳磁計によってヒトの聴覚誘発磁場を計測した場合に推定される等価電流双極子の大きさと同程度である. 本研究では室温の磁気センサとして, 市販の MI センサ (アイチ・マイクロインテリジェント株式会社, MI-CB-1DH) を用いた. 鉛直方向 (z 方向) の磁気センサの移動と, 鉛直方向を回転軸としたファントムの回転 (θ) により, ファントム周辺の磁界分布を計測した.

実験結果 Fig. 2 に計測した波形を示す. 本実験では位置の異なる 48 点で計測を行ったので, その各点で記録された波形を重畳させて描いた. ファントムからの磁気信号が検出されていることがわかる. なお, 記録したデータには加算平均処理 (1600 回) 及び移動平均処理 (平均化幅 16.5 ms) を施した.

Fig. 2 の矢印に示す時刻における信号強度を等磁界線図として描いた図を Fig. 3 に示す. 等価電流双極子周辺の磁界分布として特徴的な湧き出し, 吸い込みの両極性が得られていることが分かる. Fig. 2 及び Fig. 3 の結果から, 本センサを用いた脳磁図検出の可能性が示唆された.

一方, 得られた磁界分布データから等価電流双極子の位置を推定したところ, ファントムの持つ「正解の位置」からは $3.7\ \text{mm}$ ずれた結果となり, 従来の脳磁計で計測した場合¹⁾に比べて大きくなった. 生体磁気計測装置による信号源推定で良好な結果を得るには, 高い信号/雑音比を実現するだけでなく, センサの位置決め精度の向上が重要である. 本研究により, 生体磁気計測装置の統合的な評価にファントムが有効であることが分かった.

参考文献

- 1) D. Oyama, Y. Adachi, M. Yumoto, I. Hashimoto, G. Uehara, Journal of Neuroscience Methods, 251 (2015) 24-36.

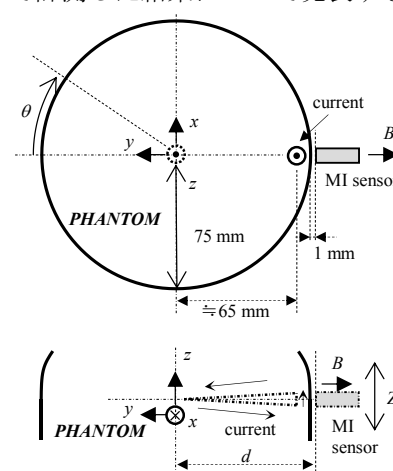


Fig. 1 Schematic diagram of experiment

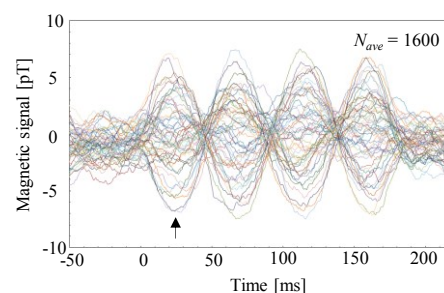


Fig. 2 Measured waveforms.

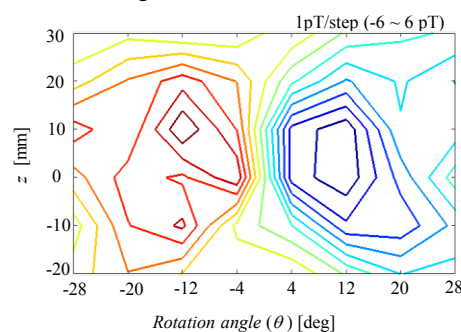


Fig. 3 Isofield contour map.

交流磁界曝露による細胞への抗がん剤取り込み量および細胞生存率への影響

松居大輔、柿川真紀子、山田外史
(金沢大学)

Effect of magnetic fields on anticancer drug uptake to human cells and cell viability

D. Matsui, M. Kakikawa, S. Yamada

(Kanazawa University)

はじめに

磁界曝露により大腸菌において薬剤作用が増強されたことをうけて、ヒトのがん病巣に磁場曝露することにより標的部位の薬剤作用を高め、投薬量の減少が可能となれば、副作用も抑えられ、磁場によるがん標的薬剤療法の確立が期待できる。また、大腸菌の場合には、磁場曝露により薬剤の細胞内への取り込み量が増加し、その結果として薬剤作用が高まったことが実験的に示唆されている。本研究ではヒト細胞への薬剤作用への交流磁界の影響メカニズムの解明を目的とし、抗がん剤の取り込み量と細胞生存率への磁場影響評価を行ったので報告する。

磁界発生装置および実験方法

今回、実験対象としてヒト細胞 A549 株 を使用した。A549 は付着細胞でディッシュに付着して増殖を繰り返すことから、細胞生存率の交流磁界影響の評価方法にはコロニーアッセイ法を用いた。

細胞内への薬剤取り込み量の測定については、抗がん剤ドキソルビシンの場合、蛍光(excitation : 485 nm、emission : 590 nm)を有しているため、培地へドキソルビシン添加、反応後、磁場曝露群および非曝露群それぞれの培養液（細胞外に残るドキソルビシン含む）を取り出し、細胞内に入ったドキソルビシンの蛍光をプレートリーダーで計測する。一方、抗がん剤シスプラチンはドキソルビシンのような蛍光特徴を持たないため、細胞内への取り込み量を物質量として計測するのではなく、細胞内に入った薬剤の作用および細胞外（培養液）に残る薬剤作用を細胞生存率から測定した。具体的には細胞ディッシュの培養液にシスプラチンを添加し、反応後、磁場曝露群および非曝露群それぞれの培養液を取り出し、細胞はそのディッシュ上でコロニーアッセイを行い（細胞内へ取り込まれたシスプラチンによる生存率）、取り出した培養液は別の新しい細胞ディッシュに添加し、反応後（どちらの群も非曝露で）その細胞の生存率を測定し、細胞外に残るシスプラチンを測定した。

実験結果および考察

ヒト肺がん細胞 A549 株に抗がん剤シスプラチンを 10 $\mu\text{g/mL}$ 添加したときの磁場曝露群および非曝露群の 0~4 時間反応の生存率（細胞内に入ったシスプラチンによる）を Fig.1 に示す。Fig.1 より抗がん剤シスプラチンを添加すると同時に交流磁界を曝露することで細胞生存率は減少し、4 時間反応では曝露群は非曝露群に比べ細胞生存率は 70%減少し、薬剤作用が増強されていることがわかる。

今回、ヒト肺がん細胞株 A549 において反応時間により交流磁界影響が異なることが確認できた。しかし、現在なぜ交流磁界曝露により抗がん剤作用が増強されるか不明な点が多い。今後、細胞内に取り込まれた薬剤量について検討を行う。

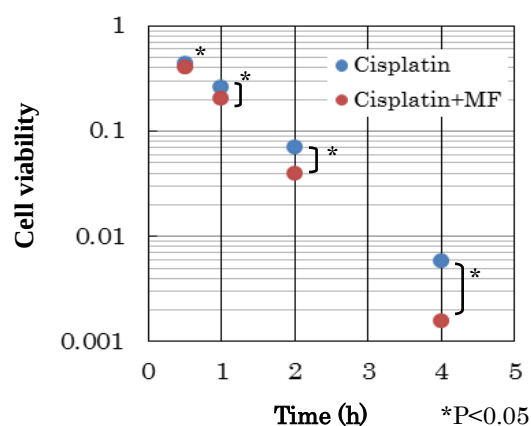


Fig.1 Effect of magnetic fields on Cisplatin potency (intra cellular)

多剤耐性を有するヒトがん細胞への抗がん剤作用に 対する交流磁界影響

大野洋靖, 柿川真紀子, 山田外史
(金沢大学)

Effect of magnetic field on anticancer drug in multidrug-resistant cancer cells

H. Ohno, M. Kakikawa, S. Yamada
(Kanazawa University)

はじめに

これまで当研究室では、大腸菌およびヒトがん細胞に対する薬剤作用が交流磁界影響によって増強されることを確認した。また、薬剤作用の増強度は細胞によって異なることも確認され、その増強度は大腸菌が大きかった。大腸菌とヒトがん細胞では細胞膜の構造が異なることが知られている。一方、臨床では、多くの抗がん剤が効かなくなるがん細胞が出てくるケースがあり、これらは薬剤を排出する膜タンパク質を含め、細胞膜構造やその機能の変化が原因といわれている。本研究では、多剤耐性を獲得したヒトがん細胞における薬剤作用への交流磁界影響を検討した。また、膜タンパク質は細胞の膜電位によって制御されていると考えられているため、交流磁界が細胞膜電位に与える影響についても調べた。

交流磁界影響の評価方法

まず本研究では抗がん剤の投与により多剤耐性を獲得したヒト子宮頸がん細胞 MES-SA/Dx5 を使用した。MES-SA/Dx5 はヒト子宮頸がん細胞 MES-SA に抗がん剤 Doxorubicin を投与し耐性を持つようになった細胞である。抗がん剤作用に対する交流磁界影響の評価では MES-SA/Dx5 に抗がん剤 Cisplatin を投与し実験を行った。抗がん剤を投与した細胞を曝露群、非曝露群に分け、曝露群では、37°C、5%CO₂ の環境で交流磁界(周波数 60Hz、磁束密度 50mT)を曝露し、非曝露群では、同環境下で磁界を曝露せず反応させた。MES-SA/Dx5 は接着性の細胞でありコロニーアッセイによる細胞の生存率評価が可能のため、反応後、抗がん剤を除去しコロニーアッセイにより抗がん剤作用に対する交流磁界影響を検討した。交流磁界による膜電位変化の評価方法には、同細胞 MES-SA/Dx5 に膜電位感受性色素 DiBAC₄(3)を用いた。DiBAC₄(3)は膜電位に応じて細胞膜内外に分布し、細胞内に取り込まれると蛍光強度増強を起こす。その蛍光強度の変化を測定することで交流磁界による膜電位変化を測定した。抗がん剤作用に対する交流磁界影響の評価方法と同様に、細胞を曝露群、非曝露群に分け、曝露群では同条件の交流磁界を曝露し、非曝露群では磁界を曝露せず細胞を培養した。細胞培養後、マイクロプレートリーダーにより膜電位感受性色素による蛍光強度を測定し、曝露群、非曝露群で比較することにより交流磁界影響による膜電位変化を検討した。

交流磁界影響の結果

多剤耐性細胞 MES-SA/Dx5 に抗がん剤 Cisplatin を投与した反応後の細胞生存率について、非曝露群に対する曝露群の生細胞数の相対比を Fig.1 に示す。すべての薬剤濃度で相対比が 1 より小さいことから、磁界により薬剤作用が増強されることが明らかとなった。また、薬剤濃度が大きくなるほど交流磁界影響が大きくなる傾向が確認できた。現在、交流磁界による膜電位変化について検討している。

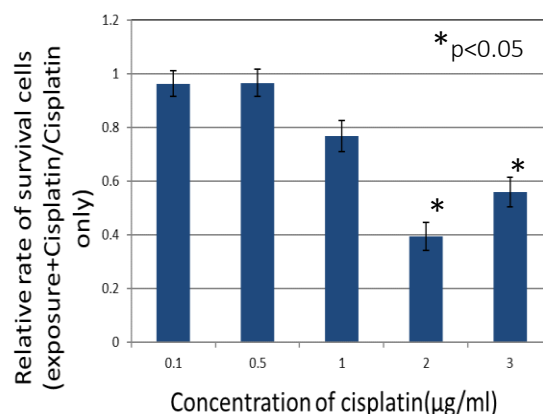


Fig.1 Effect of magnetic fields on cisplatin in multidrug resistant cells

MgFe₂O₄ ナノ粒子の合成と交流磁場下での発熱による ヒト乳がん細胞の死滅誘導

金津真帆, 松田翔風, 中西卓也, 柏俣佑果, 門間聰之, 逢坂哲彌
(早稲田大学)

Synthesis of magnesium ferrite nanoparticles and their induction of cell death in human breast cancer cells at elevated temperature under alternating magnetic field

M. Kanazu, S. Matsuda, T. Nakanishi, Y. Kashimata, T. Momma, T. Osaka
(Waseda Univ.)

はじめに

MgFe₂O₄ は、粉体において他のフェライトより高い発熱効率が報告され^{1,2)}、生体に対し安全性の高い元素のみで構成されているため、磁気ハイパーサーミアの発熱体として期待できる。MgFe₂O₄ ナノ粒子の合成にはゾル-ゲル法や燃焼合成法等による報告例が数多く存在し、磁気ハイパーサーミアへの応用も検討されているが、MgFe₂O₄ ナノ粒子ががん細胞に及ぼす影響を議論している報告は少ない。本検討では、MgFe₂O₄ ナノ粒子を合成し、ヒト乳がん細胞を用いて磁気ハイパーサーミアの発熱体としての可能性を評価した。

実験方法

モル比 1:2 で混合した MgCl₂·6H₂O と FeCl₃·6H₂O を含む水溶液を NaOH と反応させて得られた前駆体を、大気雰囲気中で熱処理 (800 °C, 保持時間 10 分) することで MgFe₂O₄ ナノ粒子を作製した。熱処理は、昇温速度約 20 °C/min・降温速度約 6 °C/min の条件と急速加熱 (約 260 °C/min)・急速冷却 (約 140 °C/min) 条件で行った。得られた粒子を添加した培地でヒト乳がん細胞 MCF-7 を 24 時間培養した後、粒子添加に伴う死滅率と粒子を取り込んだ細胞の割合を、フローサイトメトリーによりそれぞれ評価した。また、1 細胞あたりの粒子取り込み量を鉄錯イオンの吸光度測定により評価した。粒子発熱の効果の評価は、粒子を取り込んだ細胞のみを磁気分離し、交流磁場 (磁場強度約 500 Oe, 周波数 325 kHz) を 20 分間印加した際の細胞懸濁液の温度変化および細胞死滅率を測定した。

実験結果

XRD パターンおよび TEM 像よりいずれの熱処理条件でも一次粒径が約 40 nm である MgFe₂O₄ ナノ粒子の生成が示されたが、急熱急冷処理で得た粒子のほうが 70 kOe における磁化が高く (Fig. 1)、粒子分散溶液の交流磁場下での到達温度も高くなった。これは急冷により A サイトに占める Mg²⁺の割合が上昇したため³⁾だと考えられる。この急熱急冷粒子を用いて細胞実験を行ったところ、粒子添加 (磁場印加なし) に伴う MCF-7 の細胞死滅率は、添加量の増加に伴い若干増加する傾向にあるものの 10 %未満であった。また、粒子 5 mg 添加時には、1 細胞あたり 3 ng の粒子が取り込まれ、交流磁場下での粒子発熱に伴う 53 °C までの温度上昇により約 90 %の細胞死滅率が得られた (Fig. 2)。以上より、急熱急冷処理による発熱効率の高い MgFe₂O₄ ナノ粒子合成と、それらを取り込んだ MCF-7 への交流磁場印加による効率的な細胞死滅の誘導が示された。

参考文献

- 1) T. Maehara et al., *J. Mater. Sci.* 40 (2005) 135-138.
- 2) M. Jeun et al., *Appl. Phys. Lett.*, 95 (2009) 082501.
- 3) Y. Ichiyanagi et al., *J. Magn. Magn. Mater.* 310 (2007) 2378-2380.

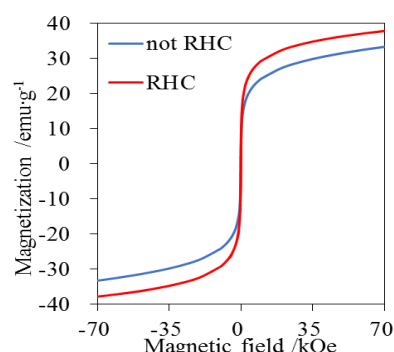


Fig. 1 Magnetization curve of synthesized MgFe₂O₄ nanoparticles. RHC: Rapid heating and cooling.

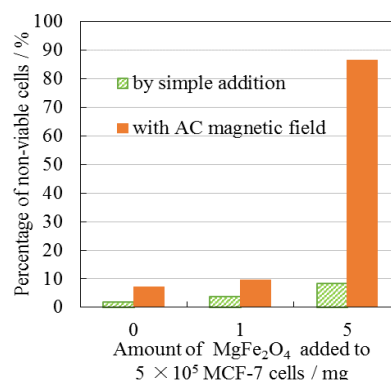


Fig. 2 Percentage of non-viable MCF-7 cells at various doses of RHC MgFe₂O₄ nanoparticles before (shaded) and after (filled) AC magnetic field application.

充電式心臓ペースメーカを想定した矩形波ワイヤレス電力伝送の検討

佐藤拓, 伊藤敦弥*, 加藤立太*, 轡田拓也*

(仙台高専 電気システム工学科, *仙台高専 専攻科)

A Study of the Wireless Power Transmission Used Square Wave Supply For Rechargeable Cardiac Pacemaker

Taku Sato, Atsuya Ito*, Ryuta Kato* and Takuya Kutsuwada*

(Department of Electrical Engineering, National Institute of Technology, Sendai College,

*Advanced Course Production System and Design Engineering, National Institute of Technology, Sendai College)

1. はじめに

徐脈性不整脈の治療として絶大な治療効果をもたらす臓ペースメーカは体内植込機器として有名であるが、電池消耗に伴って外科手術により本体ごと取り替える必要がある。そこで我々は電磁誘導によるワイヤレス給電を採用した電池交換不要のペースメーカを開発し、電池残量を体外から計測するシステムを提案している^[1]。本稿では新たな試みとして、交流波形として正弦波ではなく矩形波を用いた場合のワイヤレス電力伝送について考察したので報告する。

2. 実験方法

2.1 正弦波および矩形波でのワイヤレス電力伝送の比較

Fig.1の実験回路において、ファンクションジェネレータ(FG-281)により 10kHz の正弦波、矩形波(duty 比 10-90%)を生成してアンプで増幅し、送電コイルへ印加する。そのときの伝送効率 η 、力率 λ_1 、受電電圧 V_2 、受電電力 P_2 を測定し比較する。また、同様の実験を 1 次および 2 次側共振コンデンサ C_1 、 C_2 有無の条件で行う。測定にはパワーアナライザ(PZ 4000)を用いた。

2.2 RLC 直列共振回路での挙動

矩形波を用いたワイヤレス電力伝送の挙動がワイヤレス給電に特有な現象であるかを確認するために、RLC 直列共振回路を構成し、10kHz 矩形波(Duty 比 10-90%)を印加した場合に各測定パラメータがどのような特性を示すかを確認する。実験装置は 2.1 と同じである。

3. 結果および考察

3.1 正弦波および矩形波でのワイヤレス電力伝送の比較

Fig.2 に測定結果を示す。矩形波において効率は duty によらずほぼ一定であり、力率 λ_1 と受電電圧 V_2 、受電電力 P_2 は Duty 比 50% を極大としてそこから離れるにつれ減少する特徴的な傾向が確認された。

共振コンデンサ有無でのワイヤレス給電において、 C_1 の有無により伝送特性が大きく異なることが分かった。 C_1 有では Fig.2 と同様の傾向を示すが、 C_2 無しでは Duty を変えても受電電力は一定のままであった。

矩形波で電力伝送が可能であった理由として、矩形波はフーリエ級数展開することで様々な正弦波の重ね合わせで再現できるため、電気回路においても正弦波電圧の重ね合わせが成立したと考えられる。

$$f(\theta) = \frac{4}{\pi} \left(\sin\theta + \frac{1}{3}\sin3\theta + \frac{1}{5}\sin5\theta + \dots \right) \quad (1)$$

(1)式は duty50 の矩形波をフーリエ級数展開したものであるが、各高調波成分による受電電力を見積もると、

全受電電力に対して約 4% しか占めていないことが分かった。これはすなわち、高調波の影響が限りなく小さく、基本波でのワイヤレス電力伝送と同等の電力が伝送されたものと考察できる。

3.2 RLC 直列共振回路での挙動

RLC 直列共振回路に矩形波 (Duty 比 10-90%) を印加した結果、Duty 比によらず効率は常に一定で、受電電力と 1 次力率は Duty 比によって変化することが分かり、ワイヤレス電力伝送回路での伝送特性と類似した傾向を示した。この結果より、Fig.2 の特性はワイヤレス電力伝送に特有なものではなく、RLC 共振系に見られる興味深い特性であることが確認された。

謝辞 本研究は JSPS 科研費 26350687 の助成を受けたものである。

参考文献

[1] T. Sato, F. Sato, H. Matsuki, T. Sato, J. Magn. Soc. Jpn., Vol.32, No.1, pp29-35, 2008

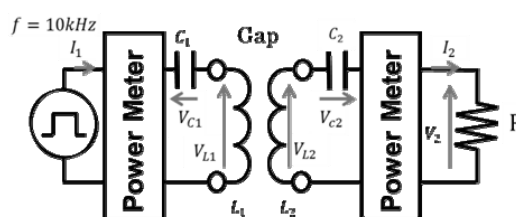


Fig.1 Experiment circuit.

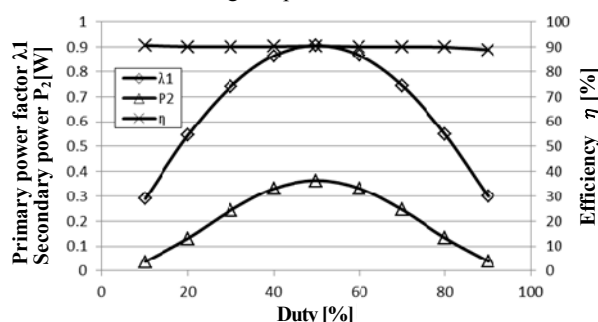


Fig.2 Electrical parameters of wireless power transmission used sine wave supply or square one.

ヒト磁気知覚の可能性と現状

高橋康介
(中京大学)

Feasibility of magnetoreception in human
K. Takahashi
(Chukyo University)

1 ヒト磁気知覚研究の歴史と背景

多くの動物は地磁気を感じナビゲーションなどに利用していると言われるが、ヒトが磁気感覚を有しているかどうかについては結論は出ていない。認知心理学の分野では1980年代にBakerら^{1,2)}がヒトの地磁気利用の可能性を示す実証研究データを公表したものの、その後の検証はなされていない。現在においても、ヒトの磁気知覚の神経生理学的及び認知的メカニズムは、そもそも可能であるのかという点も含め謎のままである。

しかしながら、生物学的研究からはヒト生体で磁気を感じるセンサーの存在が示唆されている。1990年代には脳内マグネタイトの存在を示す報告があった³⁾。また動物の磁覚はフラボタンパク質であるクリプトクロム(CRY)によっても受容されていることが示されているが、ヒトもhCRY2タンパク質を持っており、その発現は網膜に集中している。2000年代以降、遺伝子改変技術によりhCRY2の実効性が確認されている。Foleyら⁴⁾は遺伝子改変によりハエのCRY1を不活化させた。この操作でハエの磁覚は失われたが、その後さらに遺伝子導入を行いハエにhCRY2を発現させたところ磁覚が回復した。この発見はヒトが磁気を受容するセンサーを網膜に大量に有するという事実を端的に示すものである。このようにミクロレベルでの磁気受容センサーの存在が示唆され、この中でヒト磁気知覚の可能性が(一部のヒト研究者の中で)再燃している。しかし認知心理学的な観点から言えば、センサーを持つことと、センサーが受容するモダリティの情報を主観的に知覚できることは等価ではない。センサーが受容した信号の脳への伝達、及びその信号が持つ情報についての脳内の知覚・認知処理を経て初めて、主観的・意識的な知覚経験が可能となる。たとえ網膜や脳内に磁気受容物質があったとしても、経験的には我々自身は磁気を知覚しているようには感じていない。これには、磁気由来の信号が網膜から脳に到達していない可能性、或いは磁気信号は脳に到達しているが脳が磁気由来情報をノイズとして処理している。可能性、の二通りが考えられる。

2 現状と展望

このようなミクロレベルの生体磁気受容の研究を受けて、現在ではヒト磁気知覚の可能性を検討している研究グループは著者の知る限り世界で2グループある。眞溪、下條、KirschvinkらはHuman Frontier Science Program (HFSP)の支援のもと、マグネタイトに注目しヘルムホルツコイルで発生させた地磁気様の磁気変化に対する脳神経細胞の反応を脳波計により測定し、磁気刺激に相関する脳活動を見出している⁵⁾。一方、高橋はhCRY2に着目し、発現が集中している網膜付近に1から2Hz程度の周期的な磁気刺激を呈示し、ヒトが意識的に磁気存在に気づけるかどうかを検証している。これまで数10名程度の被験者に対して磁気変化への意識的な気づきが生じるかどうかを調べているが今のところ明確に磁気変化に気づいている被験者は存在していない。また、仮に脳が磁気由来情報をノイズとして処理していると仮定すると、何らかの手法でこれをシグナルとして処理させる必要がある。そこで聴覚刺激(音)と磁気刺激の同期した周期変化をヒトに対して呈示して、ヘップ学習様の相互増強を用いた磁気情報の知覚シグナル化を目指した。これも現在のところ少数サンプルであり、主観的磁気知覚の明確な証拠は得られていない。

以上のことから、磁気センサーとなる物質がヒト生体には存在していて、脳神経細胞が磁気刺激に反応している可能性も示されつつある。しかし行動に利用可能なシグナル(例えば警報装置)として磁気刺激が機能しうるか、という点に関しては明確な結論は得られていない、という点が現状であろう。30年前に比べてミクロレベルでの研究が進められ、またヒト計測の技術も進み、磁気知覚が決して夢物語ではない、ということは(両グループの研究がレビュー付きの公的な研究費の支援により実施されている点を考慮しても)間違いないだろう。ヒト磁気知覚は科学的意義もさることながら、その応用範囲も広い。残された主観的磁気知覚という課題に向けて、磁気の専門家とヒトの専門家の協力体制のもと磁気知覚を可能とする学習手法の開発が切望される。謝辞 本研究は科学研究費補助金(挑戦的萌芽研究 26640006「ヒトにおける磁気感覚の検討」)の補助を受けた。本研究を進めるにあたり有益な議論をしてくださった東京大学工学部眞溪歩准教授に深く感謝いたします。

References

- 1) R. R. Baker, "Goal orientation by blindfolded humans after long-distance displacement: Possible involvement of a magnetic sense," *Science*, vol. 210, no. 4469, pp. 555-557, 1980.
- 2) —, "Human navigation and magnetoreception: the manchester experiments do replicate," *Animal behaviour*, vol. 35, no. 3, pp. 691-704, 1987.
- 3) J. L. Kirschvink, A. Kobayashi-Kirschvink, and B. J. Woodford, "Magnetite biomineralization in the human brain," *Proceedings of the National Academy of Sciences*, vol. 89, no. 16, pp. 7683-7687, 1992.
- 4) L. E. Foley, R. J. Gegebar, and S. M. Reppert, "Human cryptochrome exhibits light-dependent magnetosensitivity," *Nature communications*, vol. 2, p. 356, 2011.
- 5) A. Matani, S. Shimojo, and J. L. Kirschvink, "An attempt to physiologically measure human magnetoreception," in *Neuroscience 2015*, 2015.

エピタキシャル Fe/Ag/Cr 三層膜における 量子井戸形成に起因した界面フラストレーション

和田詠史^{*}、横山京祐^{**}、加藤健人^{**}、小野寺蓮^{**}、赤星大介^{*,**}、齊藤敏明^{*,**}

(^{*}東邦大複合物性セ、^{**}東邦大理)

Interfacial frustration originating from quantum well formation in epitaxial Fe/Ag/Cr trilayers

E. Wada^{*}, K. Yokoyama^{**}, K. Kato^{**}, R. Onodera^{**}, D. Akahoshi^{*,**}, T. Saito^{*,**}

(^{*}Research Center for Materials with Integrated Properties, Toho Univ., ^{**}Dept. of Phys., Toho Univ.)

はじめに

前回我々はエピタキシャル Fe/Au/Cr 三層膜において、磁化のゆっくりとした緩和（スローダイナミクス）を観測し、その緩和の程度（磁気粘性 S ）が Au 膜厚に依存して周期 $\sim 14.7\text{\AA}$ で振動する振る舞いを示すことを報告した。また、この結果をもとに量子井戸形成によりスピン分極した Au と Cr の界面における磁気フラストレーションモデルを提案した^[1]。今回我々は Fe/Ag/Cr 三層膜においても同様の S の振動を確認した。さらに、Ag/Cr 界面の乱れを変化させたときの S の振動的振る舞いについても調べた。これらの結果をもとに Fe/Ag/Cr 三層膜における上記界面磁気フラストレーションモデルの適用性について報告する。

実験方法

エピタキシャル MgO(001)/Cr(50 Å)/Ag(z Å)/Fe(40 Å)/Ag cap(20 Å)膜を MBE 法を用いて作製した。まず、MgO 基板を 600°C で 1 時間アニールした後、成長温度 400°C の条件下で Cr 層を堆積させた。その後成長温度 T_s ($=100^\circ\text{C}$ 、 75°C) にて Ag/Fe/Ag cap 層を堆積させた。各層堆積の度に RHEED 観察でエピタキシャル成長を確認した。Ag 中間層の膜厚 z は $z=0\text{ Å}$ から 40 Å まで変化させ、熱残留磁化(M_{TRM})の緩和が z に対してどのように変化するかを SQUID を用いて調べた。この際、まず 300 K で 500 Oe の磁場を印加し、その後 250 K まで 10K/min で冷却し、250K 到達直後に磁場を切り 10000sec 間残留磁化 M_{TRM} の時間変化を測定、という手順で行った。

実験結果

Fe/Ag/Cr 三層膜においても Fe/Au/Cr 三層膜同様全ての z , T_s の試料で M_{TRM} は $M_{\text{TRM}}=M_0-S\ln t$ の式で表わされるような長時間にわたる緩和を示した。ここで、 t は時間、 M_0 は定数、 S はこのスローダイナミクスの程度を表す量で磁気粘性と呼ばれる。Fig.1 は(a) $T_s=100^\circ\text{C}$ 、(b) 75°C の試料における飽和磁化 M_s で規格化された S の z 依存性である。これをみると、一定の膜厚 z_c より厚い z で振動が起こり、この z_c は $T_s=75^\circ\text{C}$ の試料の方が $T_s=100^\circ\text{C}$ の試料に比べて小さい。これは、Ag/Cr 界面のより平坦な $T_s=75^\circ\text{C}$ の試料の方が薄い z で量子井戸が形成されることによるものと考えられる。Ag は Au に比べて Cr 上にエピタキシャル成長しづらいが、Fe/Ag/Cr 三層膜についても、本実験の結果は Ag 量子井戸形成によりスピン分極した Ag と Cr の界面で磁気フラストレーションが起こるモデルを支持していると言える。

参考文献

- 1) 和田詠史 他、第 39 回日本磁気学会学術講演概要集、8pB-9 (2015)

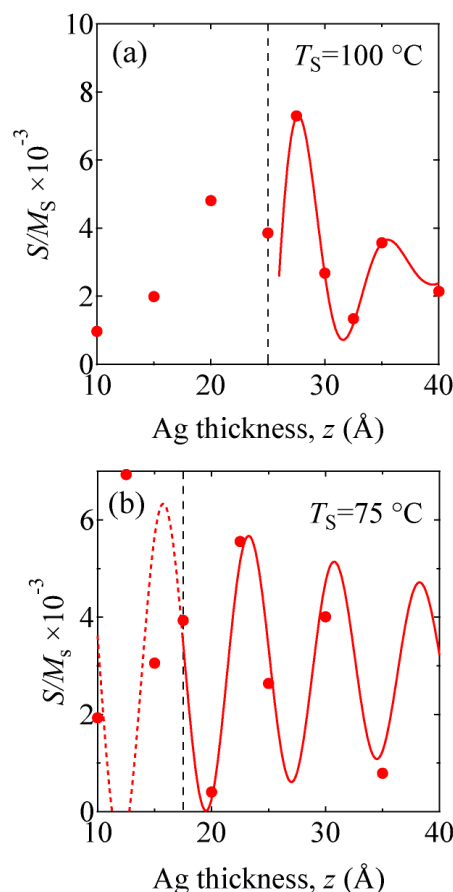


Fig.1 (a)成長温度 $T_s=100^\circ\text{C}$ 、(b) $T_s=75^\circ\text{C}$ のサンプルにおける規格化された磁気粘性 S/M_s の Ag 膜厚 z 依存性。破線で示した膜厚から S/M_s の振動が始まる。

シミュレーションによるジャロシンスキー・守谷相互作用の簡易測定法の検討

平野 安彦¹、山田 啓介²、仲谷 栄伸¹

¹電気通信大学、情報理工学研究科、²岐阜大学、工学部

Study on simple measurement method of Dzyaloshinskii-Moriya interaction by using simulations

Yasuhiko Hirano¹, Keisuke Yamada², Yoshinobu Nakatani¹

¹Graduate school of Informatics and Engineering, University of Electro-Communications

²Faculty of Engineering, Gifu University

はじめに

近年、ジャロシンスキー・守谷相互作用(DMI)が働く強磁性体薄膜において、スカーミオンの生成[1]や特異な磁壁移動[2]などが観測されており、DMI が有効に作用する系での研究が注目されている。しかしながら、DMI の大きさを直接測る手法は、実験的に高度な測定方法を要する[3]。他の DMI 値を測定する方法としては、磁壁移動を用いる間接的な方法などがあるが、より簡易に DMI 値が測定できる方法が求められている。本研究では、簡易に DMI 値を測定する方法を検討するために、DMI が働く垂直磁化膜を持つ円盤ディスク中の外部磁界による磁化反転シミュレーションを行った。反転磁界の円盤ディスク径と DMI 値依存性を調べることで、容易に DMI 値を求める方法を調査した。

計算条件

材料定数は、CoFeB の値を用い、飽和磁化 1.5 Kemu/cm^3 、磁気異方性定数 14 Merg/cm^3 、磁気回転比 $17.6 \text{ Mrad/(s} \cdot \text{Oe)}$ 、交換スチフネス定数 $3.1 \mu \text{ erg/cm}$ 、損失定数 1.0 とした[4]。シミュレーション内容は、円盤ディスク状の磁性体に対し、DMI の値を 0 から 1.0 erg/cm^2 の間で変化させ、それぞれ円盤ディスク面に平行な方向(x 方向)と面直方向(z 方向)へ外部磁界(H_x, H_z)を加えた。磁気モーメントが x, z 方向にそれぞれ反転したときの外部磁界の大きさ($H_x^{\text{sw}}, H_z^{\text{sw}}$)を求め、その値を比較した。比較して求めた値が DMI 値と円盤ディスク径にどのように依存するかを調べた。円盤ディスク径(D)は直径 $16 \sim 100 \text{ nm}$ 、膜厚 1 nm とした。

結果

図 1,2 にそれぞれ DMI= $0, 1.0 \text{ erg/cm}^2$ の x, z 方向の反転磁界のグラフを示している。図 3 は DMI= $0 \sim 1.0 \text{ erg/cm}^2$ を変化させ、 x 方向と z 方向の反転磁界の差分($\Delta H^{\text{sw}} = H_x^{\text{sw}} - H_z^{\text{sw}}$)を取ったグラフである。図 3 の結果より、DMI の値が 0 erg/cm^2 の場合、 ΔH^{sw} はサイズに依らず差分が小さいが、DMI の値が大きくなると ΔH^{sw} が大きくなる。DMI= 1.0 erg/cm^2 の場合、サイズ径が約 20 nm の時に ΔH^{sw} が最大になることもわかった。この結果より、 $H_x^{\text{sw}}, H_z^{\text{sw}}$ を測定し、その差分を測ることで DMI 値を簡易的に測定できることがわかった。またサイズ径に依存した ΔH^{sw} を測ることで、より正確な DMI 値を求めることができることがわかった。

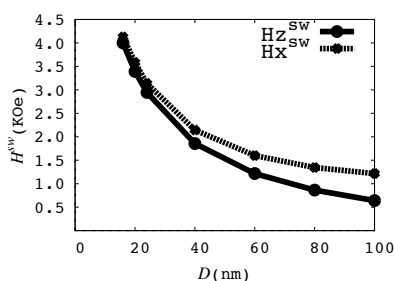


Fig.1 Switching field at DMI=0 erg/cm²

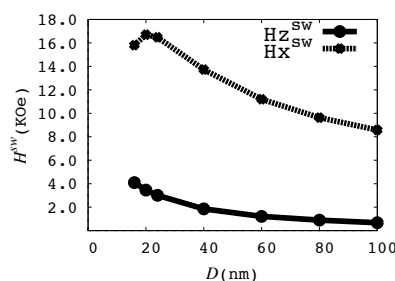


Fig.2 Switching field at DMI=1.0 erg/cm²

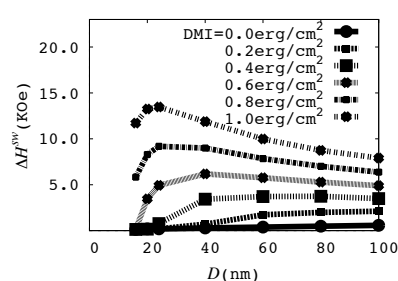


Fig.3 Difference of Switching field x and z

参考文献

- [1] X. Z. Yu, *et al.*, Nature. **465**, 901-904 (2010). [2] S. Emori, *et al.*, Nat. Mater. **12**, 611 (2013).
[3] V. E. Dmitrienko, *et al.*, Nat. Phys. **2859**, 202-206 (2014). [4] S. Kanai, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **101**, 122403 (2012).

二次元近藤格子系 $\text{CeFe}_{1-x}\text{Cr}_x\text{PO}$ の Mössbauer 分光及び比熱測定

谷中慎太郎, 井田和則, 岡野智宏, 北尾真司*, 瀬戸誠*, 金道浩一**, 小濱芳允**, 的場正憲, 神原陽一
(慶應大,* 京大,** 東大)

Mössbauer Spectroscopy and Heat capacity of two dimensional Kondo lattice $\text{CeFe}_{1-x}\text{Cr}_x\text{PO}$
S. Taninaka, K. Ida, T. Okano, S. Kitao*, M. Seto*, K. Kindo**, Y. Ohama**, M. Matoba, Y. Kamihara
(Keio Univ.* Kyoto Univ.** Tokyo Univ.)

1 はじめに

重い電子系とは局在する f 電子軌道の一部が伝導電子と混成することにより電子の有効質量が通常の数百~数千倍となる物質群である。重い電子系には、磁気秩序を抑制させる近藤効果と磁気秩序を安定化させる RKKY 相互作用の拮抗により、温度-化学組成相図上で、磁気秩序相と常磁性相の相境界が、0 K 付近で消失する磁気量子臨界点 (QCP) が存在する。例えば CeRhIn_5 の QCP 近傍では異方性超伝導や非フェルミ液体的挙動等、新たな量子相が出現することが、長年研究されている。^[1-3] 本研究は、 $4f$ 電子を有する Ce 化合物のうち、 Ce_2O_2 層と Fe_2P_2 層からなる層状構造を持つ二次元近藤格子系 CeFePO を母相とした $\text{CeFe}_{1-x}\text{Cr}_x\text{PO}$ (正方晶, $P4/nmm$)^[4] を研究対象とした。本物質は二次元近藤格子系の中でも希少な強磁性 QCP を示すことが確認されており^[4], 強磁性 QCP 近傍における新たな磁気秩序相や電子状態の解明が重要である。

そこで本研究は、 ^{57}Fe Mössbauer 分光測定及び高磁場極低温比熱測定により、Fe 原子核における局所微細構造、磁気相転移の存在及び Kondo 一重項の形成機構を明らかにすることを目的とする。

2 実験方法

本報告における多結晶試料は 2 段階に分けた固相反応により合成した。1 次熱処理は化学量論比で $\text{Ce} : \text{Fe} : \text{P}$ (以後 $\text{Ce} - 2\text{Fe} - 2\text{P}$) = $\text{Ce} : \text{Cr} : \text{P}$ (以後 $\text{Ce} - 2\text{Cr} - 2\text{P}$) = 1 : 2 : 2 に混合した後、石英管に真空封入して熱処理を行った。2 次熱処理は 1 次熱処理の物質および脱水した CeO_2 を用いて、化学量論比で $\text{Ce} - 2\text{Fe} - 2\text{P} : \text{Ce} - 2\text{Cr} - 2\text{P} : \text{CeO}_2 = 1 - x : x : 1$ に混合した。その後、ペレット状に成型し、石英管に減圧二重封入して熱処理を行った。

試料合成後、 ^{57}Co 線源を利用した ^{57}Fe Mössbauer 分光測定をコンベンショナルな透過法により、クライオスタットを用いて 4.2 – 300 K までの測定を $\text{CeFe}_{0.5}\text{Cr}_{0.5}\text{PO}$ において行った。

低温・磁場中での比熱測定は、片面を研磨した厚さ 50 μm , 質量 1 – 10 mg の多結晶試料を用い、低温・磁場下 (0.4 – 15 K, 0 – 9 T) において PPMS (Quantum Design 社) により行った。高磁場比熱測定の研究対象とする物質は Ce1111 系化合物 $\text{CeFe}_{1-x}\text{Cr}_x\text{PO}$ ($x=0.00, 0.200$) とした。 $\text{CeFe}_{1-x}\text{Cr}_x\text{PO}$ ($x=0.100, 0.500$) ではゼロ磁場下, 2 – 300 K において比熱測定を行った。

3 実験結果および考察

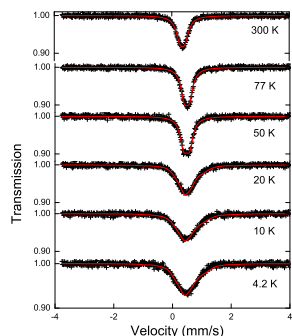


Fig.1. Observed ^{57}Fe MS of $\text{CeFe}_{0.5}\text{Cr}_{0.5}\text{PO}$ at several temperatures.

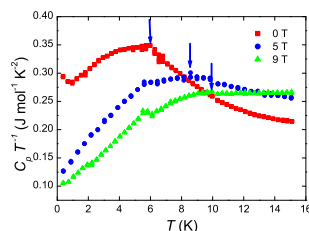


Fig.2. Temperature dependence of specific heat capacity in $\text{CeFe}_{0.8}\text{Cr}_{0.2}\text{PO}$ at several magnetic fields.

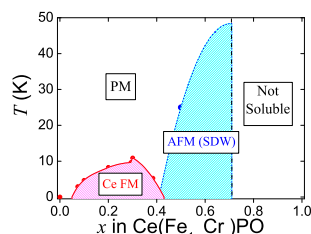


Fig.3. Phase diagram of $\text{CeFe}_{1-x}\text{Cr}_x\text{PO}$

$\text{CeFe}_{0.5}\text{Cr}_{0.5}\text{PO}$ の Mössbauer 分光測定の結果を Fig. 1 に示す。20 – 50 K の間で線幅の増大が確認され、しかしながら sextet も現れないことから、内部磁場分布の存在を仮定し、スペクトルのフィッティングを行った。その結果 25 K 付近において Fe の磁気状態がスピン密度波 (SDW) 状態を示していると結論した。

$\text{CeFe}_{0.8}\text{Cr}_{0.2}\text{PO}$ の比熱測定における $\text{Ce}4f$ の寄与を Fig. 2 に示す。Cr のドーピングによる強磁性転移 ($T_c=5.71$ K) の出現と電子熱容量の著しい減少が観られる。これは低温領域で形成されていた Kondo 一重項の RKKY 相互作用出現による消滅 (Kondo breakdown) が生じたためと考えられる。また、磁場の印加により磁気相転移温度の増大が確認された。これは強磁性相における強磁性揺らぎの存在を示す。

$\text{CeFe}_{1-x}\text{Cr}_x\text{PO}$ の低温における磁気相転移をまとめると Fig. 3 のようになった。

参考文献

- [1] G. Knebel, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **74**, 020501(R) (2006).
- [2] S. A. Grigera, *et al.*, Science **294**, 329 (2001).
- [3] H. Hegger, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84**, 4986 (2000).
- [4] T. Okano, *et al.*, J. Appl. Phys. **117**, 17E123 (2015).

有機無機層状遷移金属水酸化物 $M_2(OH)_2(TPA)$, ($M = \text{Fe, Co, Ni, Cu}$)の磁性と構造

穴井克樹、木田孝則*、萩原政幸*、福田武司、鎌田憲彦、本多善太郎
(埼玉大院理工、*阪大先端強磁場)

Magnetic properties and crystal structures of organic-inorganic
layered transition metal hydroxides $M_2(OH)_2(TPA)$, ($M = \text{Fe, Co, Ni, Cu}$)

K. Anai, T. Kida*, M. Hagiwara*, T. Fukuda, N. Kamata, Z. Honda
(Saitama Univ., *AHMF, Osaka Univ.)

[はじめに]

層状コバルト水酸化物は様々な結晶構造をとることが知られている。中でも CoO_6 八面体が辺共有と点共有で層状構造を形成した $\text{Co}_2(\text{OH})_2(\text{TPA})$, (TPA: テレフタル酸) は温度 $T = 2 \text{ K}$ で保磁力 $H_c = 50 \text{ k Oe}$ を示すことからレアアースを用いない高保磁力磁性材料の観点から研究されている。このような有機無機層状物質は層間有機分子や金属イオンの置換が比較的容易であり、一連の類似物質の磁性を比較することで高保磁力の原因解明が期待される。そこで我々は $\text{Co}_2(\text{OH})_2(\text{TPA})$ の高保磁力の原因・条件を明らかにすることを目的に層間分子及び中心金属を置換した一連の有機無機層状遷移金属水酸化物 $M_2(\text{OH})_2(X)$, ($M = \text{Fe, Co, Ni, Cu}$, $X = \text{TPA, NDCA, SDCA}$) を合成し、結晶構造と磁性を比較した。

[実験方法]

$M_2(\text{OH})_2(X)$ は遷移金属塩とジカルボン酸 X の水溶液に NH_3 を水酸化剤として加えた後、水熱法により合成した。合成の際、反応温度・時間、水酸化剤濃度等の最適値を検討した。各試料の結晶構造の同定には Bruker 社製粉末 X 線回折装置及びリートベルト法を用い、磁性の評価には Quantum Design 社製 SQUID 磁束計を用いた。

[結果]

図1にリートベルト法により推定した $\text{Co}_2(\text{OH})_2(\text{TPA})$ の結晶構造を示す。 $M = \text{Fe, Co, Ni}$ は単斜晶、 $M = \text{Cu}$ は三斜晶であり、 MO_6 により構成された無機層と TPA 有機層が交互に積層した構造であった。 $M = \text{Fe, Co, Ni}$ では無機層を形成する MO_6 八面体が一軸だけ短いに対し、 CuO_6 のみ一軸方向が大きく伸びており、ヤーン・テラー効果を示唆した。 $M_2(\text{OH})_2(\text{TPA})$ の磁性を測定したところ $M = \text{Fe}$ が反強磁性、 $M = \text{Co}$ が弱強磁性、 $M = \text{Ni, Cu}$ が強磁性を示し、Co のみ高保磁力 52 k Oe を示した。図2に各種 $M_2(\text{OH})_2(\text{TPA})$ の温度 2 K における磁化曲線を示す。 $M_2(\text{OH})_2(\text{TPA})$ の磁気モーメントの大きさを評価したところ、 $M = \text{Co}$ のみ軌道角運動量の残存を示す結果を得た。さらに $\text{Co}_2(\text{OH})_2(\text{TPA})$ の層間分子置換体を合成し、磁性を比較したところ保磁力にほとんど差は見られなかった。 $\text{Co}_2(\text{OH})_2(X)$ では残存軌道角運動量によって CoO_6 八面体の一方向にスピンの固定される強いイジング型磁気異方性が生じ、 CoO_6 八面体の結晶場の主軸の向きが隣同士で平行でないことから保磁力の大きい弱強磁性を示したと考えられる。

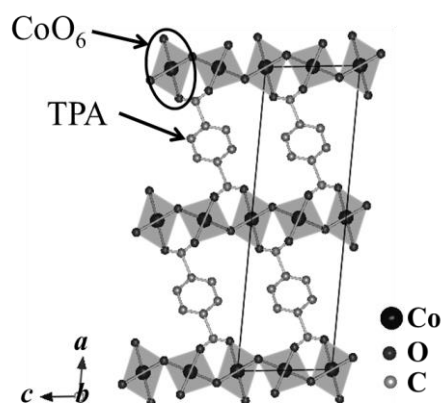


図1. $\text{Co}_2(\text{OH})_2(\text{TPA})$ の結晶構造

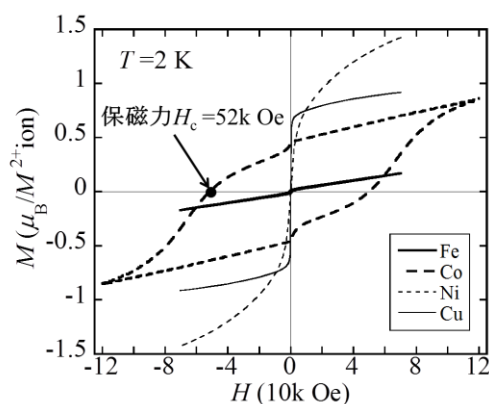


図2. 各種 $M_2(\text{OH})_2(\text{TPA})$,
($M = \text{Fe, Co, Ni, Cu}$) の磁化曲線

シュウ酸類架橋ハニカム配位高分子の磁性

林青、児玉貴文、奥谷顕*、木田孝則*、萩原政幸*、福田武司、鎌田憲彦、本多善太郎
(埼玉大院理工、*阪大先端強磁場)

Magnetic properties of oxalate like ligands bridged honeycomb coordination polymers

Q. Lin, T. Kodama, A. Okutani*, T. Kida*, M. Hagiwara*, T. Fukuda, N. Kamata, and Z. Honda
(Saitama Univ., * AHMF, Osaka Univ.)

初めに

配位高分子は金属イオンが有機配位子によって架橋され、秩序をもつ構造を形成した金属錯体である。また、金属間に架橋配位子を介して超交換相互作用が働くため、多様な構造の磁性体の構築が可能であると共にその磁性が理解しやすいことがその特徴として挙げられる。我々はこれまでにシュウ酸(略称ox)と類似した分子構造のピリジン-2-カルボン酸(略称pymca)と遷移金属との組み合わせにより新たな配位高分子磁性体を探索・合成してきた。その結果、その一部が2次元ハニカム構造を形成することを明らかにした。ハニカム格子上的スピンは再隣接原子数が3と少ないため磁気秩序の有無に興味を持たれる。また、ハニカム層間の機能性(分子吸着性など)も期待される。そこで本講演ではpymca架橋配位高分子 $M_2(\text{pymca})_3(\text{ClO}_4)$ ($M=\text{Fe}, \text{Co}, \text{Ni}, \text{Cu}$)を中心に複数のハニカム磁性体の結晶構造と磁性について報告する。

実験方法

水熱法を用い、2座架橋配位子pymcaまたはoxと遷移金属イオン($\text{Fe}^{2+}, \text{Co}^{2+}, \text{Ni}^{2+}, \text{Cu}^{2+}$)の複数の組み合わせにより配位高分子の合成を行った。水熱反応から得られた配位高分子単結晶及び粉末試料をX線回折(XRD)装置で測定し、単結晶構造解析法、リートベルト法で結晶構造解析を行った。更に超伝導量子干渉素子(SQUID)磁束計により各種ハニカム配位高分子の磁性を調べ、相転移の有無を調べるためマイクロカロリーメーターによる比熱測定を行った。

実験結果

遷移金属とpymca、oxの水熱反応を行った結果、化学式 $M_2(\text{pymca})_3(\text{ClO}_4)$ ($M=\text{Fe}, \text{Co}, \text{Ni}, \text{Cu}$)及び $(\text{H}_2\text{dab})M_2(\text{ox})_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ ($M=\text{Ni}, \text{Cu}$)の一連の配位高分子を得た。 $M_2(\text{pymca})_3(\text{ClO}_4)$ は三方晶であり、2価遷移金属イオンがpymcaにより架橋され、*ab*面内にハニカム構造を形成していた。また、ハニカム孔内には ClO_4 イオンが存在していた(図1)。

これらの配位高分子の磁気測定の結果、pymca及びoxを介したハニカム格子内の交換相互作用はいずれも反強磁性的であった。 $M_2(\text{pymca})_3(\text{ClO}_4)$ 及び $(\text{H}_2\text{dab})[M_2(\text{ox})_3] \cdot n\text{H}_2\text{O}$ ($M=\text{Ni}, \text{Cu}$)のキュリー定数は各金属イオンのスピンの基づく値とよく一致し、2次元ハニカムハイゼンベルグ反強磁性体モデルとよく一致した。 $\text{Cu}_2(\text{pymca})_3(\text{ClO}_4)$ の帯磁率 χ 温度 T 曲線とスピン1/2ハニカム格子反強磁性体モデルの比較を図2に示す。比熱測定の結果、 $M_2(\text{pymca})_3(\text{ClO}_4)$ ($M=\text{Co}, \text{Ni}$)は相転移を示したが、 $\text{Cu}_2(\text{pymca})_3(\text{ClO}_4)$ は $T=0.5\text{ K}$ まで相転移の兆候を示さなかった。

更にこれらの配位高分子のガス吸着能を調べたところ、いずれも酸素吸着性を示し、吸着された酸素分子の磁性が観測された。

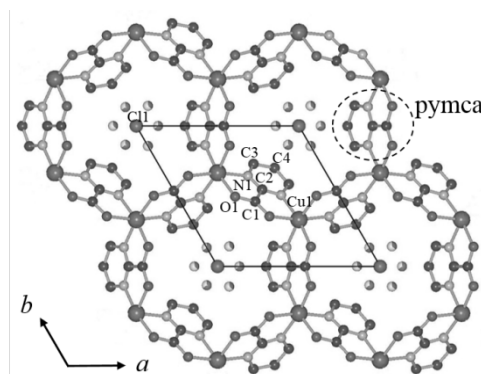


図1. $\text{Cu}_2(\text{pymca})_3(\text{ClO}_4)$ の結晶構造

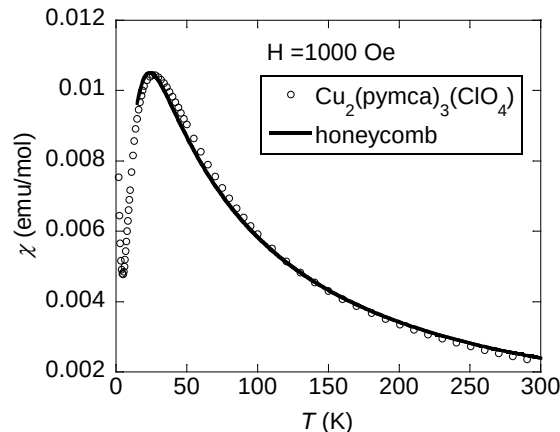


図2. $\text{Cu}_2(\text{pymca})_3(\text{ClO}_4)$ の χ - T 曲線とハニカムモデルとの比較

高勾配磁気分離における磁性フィルターへの粒子堆積過程のその場観察

廣田憲之、安藤 努*、高野真光*、岡田秀彦
(物材機構、*日大生産工)

In-situ observation of particles deposition process on a ferromagnetic filter during high-gradient magnetic separation

Noriyuki Hirota, Tsutomu Ando*, Tadamitsu Takano*, Hidehiko Okada
(NIMS, *Nihon Univ.)

高勾配磁気分離では強磁性フィルターを使用し、ワイヤーの磁化によりその周囲に急峻な勾配が形成されることを利用して、流体中に分散する磁性粒子を吸引し、フィルターワイヤー上に堆積させることで物質を分離する。フィルターの目は粒子のサイズよりも大きくても構わないため、圧損が小さい。また、磁場の印加をやめれば磁性粒子はフィルターから脱着するので、フィルターの再生が可能であるという特徴を有する。高勾配磁気分離はカオリン粘度の精製や環境水や排水の浄化に用いられているほか、近年では、放射性物質で汚染された土壌の浄化への利用が検討されている。

高勾配磁気分離の効率は、分離する粒子の磁化、磁性フィルターのメッシュサイズや枚数、フィルターワイヤーの直径、流体の流速、印加磁場などの様々なパラメーターにより決まる。磁性の小さな分離対象に対しても、磁性の大きな粒子に吸着させる“担磁”を行なうことで分離可能となる。磁気分離条件の最適化のために、しばしばシミュレーションも行われるが、そこでは、フィルターワイヤー上に堆積した粒子の体積が無視されることが多く、目詰まりの影響が適切に評価されていない。フィルターワイヤー上に粒子がどのように堆積するかがわかれば、実用のプロセスにおいて、分離に必要な条件の最適化に寄与すると考えられる。そこで、本研究では、超伝導磁石のボア中で高勾配磁気分離を行なう際にフィルター上への粒子の堆積過程をその場観察した。

実験にはヘリウムフリータイプで最大13 T印加可能な超伝導磁石を利用した。フィルターハウジングの外壁をアクリルで作製し、内部の観測が可能とした。その場観測にはELMO社製CCDカメラUN43Hを利用した。フィルターはSUS430製で直径25 mm、ワイヤー径0.22 mm、30メッシュのものをを用いた。分離する試料は0.6 μm のジルコニアフェライト粒子0.5 gを1 Lの純水中に分散させたものである。ジルコニアフェライト粒子の分散液をマグネット上から流し、磁場中心に設置したフィルター近傍での粒子挙動をその場観察する。印加磁場、流速をパラメーターとして実験を行なった。

図は10 Tの磁場を印加した場合に観測された粒子堆積の様子である。流れの上流側にスパイク状の構造を形成して粒子が堆積していることがわかる。観測の結果、印加磁場が低いほど、上流方向へ向かうスパイク構造が長くなり、また流速が速いほど短くなる傾向が観測された。これらは流体の作用や、ワイヤーの磁化が空間磁場に与える影響を考慮することで定性的に理解できた。当日は詳細について報告する。



Figure *In-situ* observation of deposition of magnetic particles on the ferromagnetic filter under 10 T

磁気アシストによる磁気ホログラムの回折効率向上に関する研究

白樫 善*, 後藤 太一***, 高木 宏幸*, 中村 雄一*, 林 攀梅*, 内田 裕久*, 井上 光輝*
(*豊橋技術科学大学, **JST さきがけ)

Improvement of diffraction efficiency of volumetric magnetic hologram with magnetic assist recording
Zen Shirakashi*, Taichi Goto***, Hiroyuki Takagi*, Yuichi Nakamura*,
Pang Boey Lim*, Hironaga Uchida, Mitsuteru Inoue*
(*Toyohashi University of Technology, **JST PRESTO)

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¹⁾。我々は、書き換えが可能で長期安定性に優れたビスマス置換型イットリウム鉄ガーネット膜を用いた磁気ホログラムを提案し、その記録・再生に成功している²⁾。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。磁気ホログラムの回折効率は、磁性膜のファラデー回転角 θ_F に依存するが、従来の熱磁気記録では十分な磁化反転が得られず、磁化に比例するファラデー回転角が小さい可能性がある。この改善方法の一つとして熱磁気記録時の浮遊磁界に加え、外部から磁界を印加し磁化反転を補助する磁気アシストがある。本研究では、磁気ホログラムの回折効率向上を目的に、磁気アシストによる熱磁気記録が回折効率に及ぼす影響について検討した。

実験方法

記録材料として RF マグネトロンスパッタリング法で成膜した BiDyAl:YIG 膜 (膜厚 0.7, 1.2, 2.7 μm) を用いた。パルス幅 50 psec, 波長 532 nm のレーザを用いて、二光束干渉法により記録を行った。アシスト磁界は、記録材料付近に設置した電磁石により印加した。実験では、磁気アシストしない ($H=0$) 場合と、磁性膜の初期磁化方向と逆方向に 10~60 Oe の磁界を印加した熱磁気記録を行った。また、周期間隔が 0.67 μm の磁気格子で各膜厚における消磁領域中心の浮遊磁界を有限要素法 (COMSOL Multiphysics) により評価した。

実験結果及び考察

Table 1 にシミュレーションにより求めた、膜厚 t_{YIG} と浮遊磁界 H_{stray} の大きさの関係を示す。膜厚が薄いほど消磁領域の浮遊磁界が小さいことがわかった。Fig. 1 に実験により求めた、各試料におけるアシスト磁界と回折効率の関係を示す。回折効率は磁気アシストしない ($H=0$) 場合の各膜厚における回折効率 $\eta_{0\text{Oe}}$ で規格化している。磁気アシストにより回折効率は向上し、今回使用した膜では、膜厚 0.7 μm の向上率が最も大きかった。しかし、印加磁界を大きくすると回折効率はピーク値を取り、その後、低下することがわかった。これは、アシスト磁界により反転磁化は大きくできても、初期磁化方向の磁化が小さくなるためであると考えられる。これより、0.7 μm の膜では、元々の浮遊磁界が小さく、アシスト磁界による初期磁化方向のファラデー回転角の減少も小さかったことから、磁気アシストの効果がより有効であったと考えられる。発表では、磁界中でのファラデー回転角の基礎的な温度特性や、二光束干渉パターンでの磁界計算について調査した結果の詳細についても報告する。

本研究の一部は科研費基盤研究(S) 26220902 および(A) 15H02240 の援助を受けて行ったものである。

参考文献

- 1) H.J. Coufal, D. Psaltis, et al., "Holographic Data Storage", Springer, New York (2000).
- 2) Y. Nakamura, et al., *Opt. Express* **22** (2014) 16439.

Table 1 Calculated stray magnetic field on interference pattern

Garnet film thickness t_{YIG} (μm)	0.7	1.2	2.7
Stray magnetic field H_{stray} (Oe)	53.8	59.2	60.9

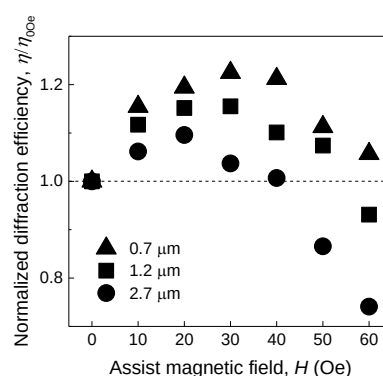


Fig. 1 Normalized diffraction efficiency of magnetic assist for Bi:YIG films.

α -TbFe/BiDyAl:YIG 積層構造を用いた 磁気光学 3 次元ディスプレイの高効率化

中村和樹*, 後藤 太一***, 高木 宏幸*, 中村 雄一*, 林 攀梅*, 内田 裕久*, 井上 光輝*
(*豊橋技術科学大学, **JST さきがけ)

Enhancement of efficiency of magneto-optic three dimensional displays
with α -TbFe/BiDyAl:YIG multilayer structure

Kazuki Nakamura*, Taichi Goto***, Hiroyuki Takagi*, Yuichi Nakamura*,
Pang Boey Lim*, Hironaga Uchida, Mitsuteru Inoue*
(*Toyohashi University of Technology, **JST PRESTO)

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(BiDyAl:YIG)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¹⁾。本ディスプレイのピクセル形成には、光吸収・キュリー温度を利用した熱磁気記録方式を用いている。再生される 3D 像の明るさは、参照光の強度と磁気光学効果による回折効率に依存しており、ISO13406 では、ディスプレイの輝度は 100 cd/m² 以上が推奨されている。光吸収を利用する書き込みエネルギーと光学的な応答に依存する回折効率はトレードオフの関係にある。そこで、熱磁気記録に必要なエネルギーが低く大きな残留磁化(1614 G)を持つアモルファステルビウム鉄(α -TbFe)をホログラムの記録層、回折効率が小さく小さな保磁力(200 Oe)をもつ多結晶 BiDyAl:YIG をホログラムの再生層とする積層膜構造を形成し、記録層から生じる磁界で再生層の磁化を制御することで、上述のトレードオフを解決できると考えた。

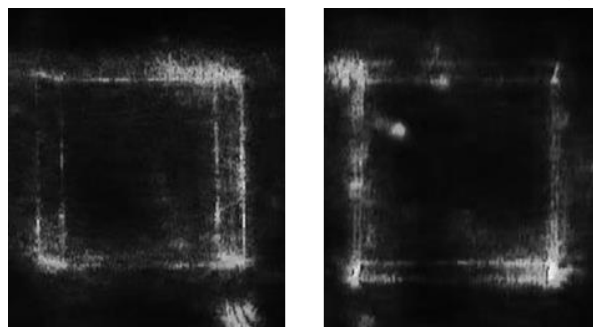
実験方法、結果および考察

α -TbFe と BiDyAl:YIG の積層構造は SiN (50 nm) / α -TbFe (100 nm) / Al (20 nm) / BiDyAl:YIG (576 nm)(以下、積層構造と略す)とし、イオンビームスパッタ法で作製した。Al 層は反射膜の役割を有し、各磁性層を光学的に分離する。比較のために、 α -TbFe 膜(SiN (50 nm) / α -TbFe (100 nm) / SiN (20 nm)), BiDyAl:YIG 膜(576 nm)(以下、単層膜と略す)も作製した。各試料の波長 532 nm における磁気光学特性および光学特性の評価を行った。この時、積層膜は BiDyAl:YIG 層からの反射光、 α -TbFe 膜は反射光、単層膜は透過光での評価を行った。残留回転角を単層膜と積層構造で比較したところ、積層構造は 1.5 deg. であり単層膜の 1.5 倍であった。残留回転角の大きさを使って理想的な回折効率 η を $\eta = (4/\pi^2) T \sin^2(\theta)$ でもとめた。ここで、 T は透過率、 θ は透過回転角である。反射膜に対してはそれぞれ反射率と反射回転角を用いた。積層膜および単層膜の回折効率は、 $7.0 \times 10^{-3}\%$, $8.2 \times 10^{-3}\%$ となった。次に記録条件を露光時間 2 msec, レーザパワー 2.7~26 mW の範囲で変化させ、最小の書き込みエネルギーを調査した。積層膜は α -TbFe 層に熱磁気記録を行い、BiDyAl:YIG 層から磁区を観察したところ磁気ピクセルの転写が確認された。各試料の最小の書き込みエネルギーを評価した結果、積層膜は 4.8 mJ/cm² と得られた。これは単層膜の約 1/4 であり、 α -TbFe 層を用いることで記録エネルギーの低減を行うことが出来た。ワイヤフレームの立方体を再生するホログラムを α -TbFe 層に記録した後、BiDyAl:YIG 側から反射再生を行うことで再生像が得られた(図 1)。ノイズの原因は BiDyAl:YIG 層の膜厚に起因する磁界の不均一性によるものと考えられる。今後、磁性フォトリソニック結晶構造等の導入によって、BiDyAl:YIG の膜厚を低減することでノイズの低減が期待できる。

本研究の一部は科研費基盤研究(S) 26220902 および JSPS 科研費 15J05710 の援助を受けて行ったものである。

参考文献

K. Nakamura, H. Takagi, T. Goto, P. B. Lim, H. Horimai, H. Yoshikawa, V. M. Bove and M. Inoue, Appl. Phys. Lett., 108, 2, 022404



(a) 左面図

(b) 正面図

図 1 積層構造膜による反射再生像

高耐熱ブラッグミラーを用いた 近赤外波長域用磁性フォトニック結晶の作製

吉本拓矢*, 後藤太一***, 高木宏幸*, 中村雄一*, 内田裕久*, 井上光輝*
(*豊橋技術科学大学, **JST さきがけ)

Fabrication of magnetophotonic crystals working at near-infrared region
using high thermal resistant Bragg mirrors

Takuya Yoshimoto*, Taichi Goto***, Hiroyuki Takagi*, Yuichi Nakamura*,
Hironaga Uchida*, Mitsuteru Inoue*
(*Toyohashi University of Technology, **JST, PRESTO)

はじめに

磁性フォトニック結晶 (MPC) は、イットリウム鉄ガーネット (YIG) などの透明磁性材料をブラッグミラー (BM) で挟んだ構造体であり、特定波長の光の磁気光学 (MO) 効果を増大する。透明磁性材料であるYIGの、YサイトをCeイオンで置換したセリウム置換YIG (CeYIG) は、近赤外波長域において、光吸収が小さく、大きなMO効果を有する¹⁾。このため、CeYIGを用いたMPCは近赤外波長域で非常に大きなMO効果を生ずる。しかし、これまでに作製されたCeYIGを含むMPCは、波長 1570 nmにおいてファラデー回転角は 3.0 度と大きかったが、透過率が 2.3%と低かった²⁾。これは、BM中のTa₂O₅が結晶化し、光散乱が生じたためであると考えられる。そこで、本研究ではTa₂O₅の結晶化温度をCeYIGの結晶化温度以上に上昇可能な、Ta₂O₅にY₂O₃を添加したY-Ta-O³⁾を用いることで、結晶化による光散乱を抑制したMPCを作製した。

実験方法

合成石英基板上に、イオンビームスパッタ法を用いてY-Ta-OとSiO₂を交互に16層、積層したBMを形成した。各層の膜厚は、共振波長においてBraggの回折条件を満たすように設計した。Y-Ta-Oの成膜ターゲットには、Ta₂O₅にY₂O₃を14 at.%添加した焼結体を使用した。このBM上に、高周波マグネトロンスパッタ法と真空熱処理を用いて多結晶CeYIGを形成した後、下部と同様にBMを形成した。

実験結果

形成したMPCは、Fig. 1に示すように、波長 1470 nmにおいて5.4度のファラデー回転角を示し、CeYIG単層膜と比較すると、約50倍回転角が増大した。また、Yを含まないTa₂O₅を使用して形成したMPCと比較すると、ファラデー回転角が1.8倍、透過率が15倍に向上した。講演会では、詳細な試料形成方法と、Y-Ta-Oの特性評価の結果、およびマトリクスアプローチ法を用いたMPCのMO特性の理論計算との結果について報告する。

謝辞

本研究の一部は、JSPS 科研費 26706009, 26600043, 26220902, 15H02240 の助成を受けて行われた。

参考文献

- 1) M. Gomi et al., J. Magn. Soc. Jpn. 13(2), 163-166 (1989).
- 2) T. Yoshimoto et al., Opt. Express, 24, 8, 8746-8753 (2016).
- 3) H. Fujikawa et al., R&D review of TOYOTA CRDL., 30, 4 (1995).

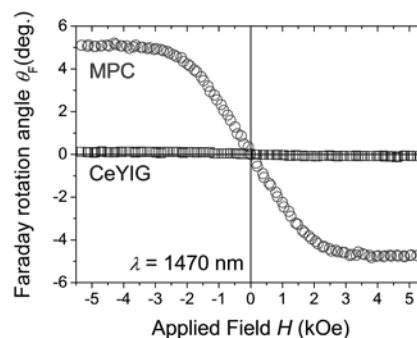


Fig.1 Faraday rotation loops of MPC comprising fused a silica substrate/(Y-Ta-O/SiO₂)⁸/CeYIG/(SiO₂/Y-Ta-O)⁸ and CeYIG film at a wavelength of 1470 nm.

偏光制御型軟 X 線光源による鉄ナノ薄膜の磁気光学効果の研究

久保田雄也^{A,B}、田口宗孝^C、平田靖透^{A,B}、保原麗^B、山本真吾^{A,B}、染谷隆史^{A,B}、横山優一^{A,B}、
山本航平^{A,B}、田久保耕^A、荒木実穂子^A、山本達^{A,B}、宮脇淳^A、藤澤正美^A、原田慈久^A、
角田匡清^D、和達大樹^{A,B}、辛埴^A、松田巖^{A,B}
(^A東大物性研、^B東大理、^C奈良先端大、^D東北大工)

Magneto-optic effect of Fe nanofilm using polarization-controlled soft X-ray source

Y. Kubota^{A,B}, M. Taguchi^C, Y. Hirata^{A,B}, R. Hobara^B, Sh. Yamamoto^{A,B}, T. Someya^{A,B}, Y. Yokoyama^{A,B},
K. Yamamoto^{A,B}, K. Takubo^A, M. Araki^A, S. Yamamoto^{A,B}, J. Miyawaki^A, M. Fujisawa^A, Y. Harada^A,
M. Tsunoda^D, H. Wadati^{A,B}, S. Shin^A, I. Matsuda^{A,B}

(^AISSP, the Univ. of Tokyo, ^BDepartment of physics, the Univ. of Tokyo, ^CNAIST, ^DDepartment of
Electronic Engineering, Tohoku Univ.)

はじめに

磁気光学カー効果 (MOKE) の測定には可視光領域の波長の光が一般的に用いられるが、その波長を VUV-X 線領域の磁性元素の吸収端に合わせることで、元素選択的測定が可能であるとともに、可視光を用いるよりも巨大なカー回転角を観測できることが知られている[1, 2]。本講演では、SPRING-8 BL07LSU にて実現した偏光制御型軟 X 線光源を用いて測定した、鉄ナノ薄膜の MOKE について報告する。

実験方法

我々のグループでは SPRING-8 BL07LSU にて世界唯一の分割型クロスアンジュレータを整備し、偏光制御された高エネルギー分解能・高輝度の軟 X 線光源を実現した。その光源を用いて、Fig. 1 (a) に示すような鉄ナノ薄膜の L 殻吸収端における共鳴 MOKE 測定を行った。

実験結果

鉄ナノ薄膜の L 殻吸収端におけるカー回転角を Fig. 1 (b) に示す。 L_2 と L_3 の吸収端においてカー回転角がピークを持ち、さらにその符号が反転していることを観測した。また、鉄の光学定数から[3]、古典電磁気学に基づくカー回転角スペクトルの計算を行い、実験結果を再現する結果が得られた。さらに、共鳴 X 線散乱理論を用いたクラスター計算結果[1]との比較も行った。この量子論に基づく計算から L_3 吸収端におけるディップ構造も再現することに成功した。本講演ではミクロとマクロ両視点からの磁気光学効果

(a) の考察に加え、SPRING-8 BL07LSU の偏光制御型光源を活かした、MOKE の偏光依存性についても報告する予定である。

参考文献

- 1) Sh. Yamamoto *et al.*, Phys. Rev. B **89**, 064423 (2014).
- 2) S. Valencia *et al.*, Physica B **345**, 189-192 (2004).
- 3) H.-Ch. Mertins *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **240**, 451-453 (2002).

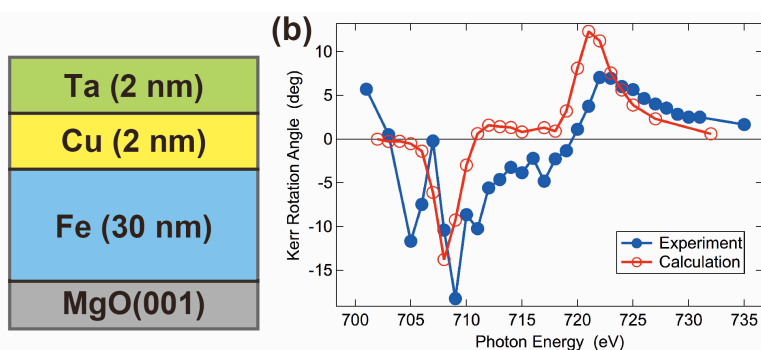


Fig. 1 (a) A schematic drawing of the 30-nm-thick Fe nanofilm on the MgO(001) substrate. Ta (2 nm) and Cu (2 nm) are capping layers. (b) Kerr rotation angle spectra of the Fe nanofilm at Fe $L_{2,3}$ -edges obtained by the measurement (filled circles) and the classic calculation with the empirical constants (open circles).

厚肉 Fe 基非晶質合金箔の軟磁気特性—2

佐藤 駿 小山 裕太 中村 吉男

(SACO 合同会社) (いすゞ自動車) (東工大 物質理工学院)

Soft magnetic properties of Fe-base thick amorphous alloy sheets-2

T. Sato¹⁾

Y. Koyama²⁾

Y. Nakamura³⁾

1) SACO LLC

2) Isuzu Motors

3) Tokyo Institute of Technology

はじめに

ダブルスリット法で作製した $50\mu\text{m}$ の厚肉 Fe 基非晶質合金箔 (準量産材) の磁気特性を過去 2 回にわたり報告してきた^{1,2)}. 今回は、磁場焼鈍後の特性を調べてまとめとする. 合わせて各社の材料設計思想を推量する。

実験方法

前回と同様に、板厚の異なる材料を用意する. B 社製の $50\mu\text{m}$ 厚肉材 (B-1) と $30\mu\text{m}$ の薄肉材 (B-3), 市販の $22\sim 28\mu\text{m}$ の薄肉材 (X, Y, Z) の 5 種類. 合金組成は各社すべて公称 $\text{Fe}_{78}\text{Si}_9\text{B}_{13}$ (原子%) である.

これらを幅 25mm, 長さ 100mm に切断し, 800A/m の磁場焼鈍をする. 条件は $375^\circ\text{C} \times 60\text{min}$ および $390^\circ\text{C} \times 60\text{min}$, N_2 気流中である. 磁気測定は岩通計測 (株) の SST (SY-956) を使い, 50, 60, 100Hz の 3 条件で測った鉄損を. 周波数法でヒステリシス損 (Wh) と渦電流損 (We) に分離した. さらに, XRD, VSM, DSC, 顕微鏡観察, 表面粗度測定を行い, 鉄損支配要因を分析する.

結果と考察

Fig. 1 のように, 磁界印加により厚肉材 B-1 の鉄損は改善し, 市販 2 社の薄肉材と同等になった. これは Wh の低減が無磁場焼鈍より大きいことによる. 各試料を磁場焼鈍より高い温度でアニールし XRD を調べた. 420°C で B-1, B-3 のロール面に鋭いピークが現れた. 440°C ではピークはさらに大きくなる. Y にはピークが現れず X, Z では比較的小さいピークである. このことから B-1 には実際の焼鈍温度でも XRD で検出できない微結晶が存在しているのではないかと. エアポケット周辺の微結晶は応力場を生じ複雑な磁区が形成されている可能性がある. 磁場焼鈍にはそのような磁区を解消する作用があると考えられる.

VSM で B_s (印加磁場 15kOe) を測定した. B-1, B-3, Z はほぼ同じ 1.548T . X: 1.595T , Y: 1.538T , Z: 1.545T であった. 結晶化開始温度は B-1, B-3: 500°C , X: 490°C , Y: 530°C , Z: 500°C であった. これを勘案すると, X 社は Fe 含有量が公称より高く, Y 社は逆に低いことが推定される. また, エアポケットと鉄損の関係は, 板厚が薄い場合はほぼ直線的であった. エアポケット密度とともに鉄損は増加した. 一方, B-1 は直線から低鉄損側に大きく外れた.

このことから, エアポケットを Y 社並みに低減できれば, 厚肉箔の鉄損を大幅に改善できると考えられる.

参考文献:

1) 佐藤: 第 38 回日本磁気学会講演概要集 2aE-11 (2014)

2) 佐藤, 小山, 中村: 第 39 回日本磁気学会講演概要集 11aB-10 (2015)

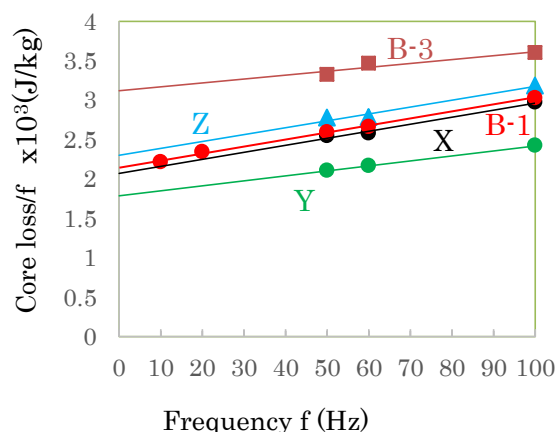


Fig.1. Core loss/f against frequency

厚肉非晶質合金箔の振動発電特性

佐藤 駿

(SACO 合同会社)

The Characteristics of Oscillation Power Generator Using Thick Amorphous Sheets

(SACO Liability Limited Company)

はじめに

板厚 $50\ \mu\text{m}$ の厚肉非晶質合金箔が準量産規模で製造できる見通しがたったことは、過去 2 回の本講演会で報告した。これらの用途は主に変圧器、モータを念頭においたものであったが、厚肉材の特長を生かした応用を考え実験した結果について発表する。具体的には振動発電素子である。厚肉材は非常にバネが強くはじくと振動が長続きする。この性質を生かそうと考えた。

実験方法

Fig. 1 に振動発電実験の概念図を示す。板厚が $65\ \mu\text{m}$ の Fe 基非晶質合金箔（幅 25mm）を長さ 80mm に切断し積層してコアとした。積層枚数 5 枚である。コアの一端を結束し、他端は固く束ねずに先端を伸縮性のある材料で押さえた。各箔は長手方向にずれ（すべり）の自由度を有する。コアに 0.4mm の被覆 Cu 線を 180 ターン巻いてコイルとした。コアの前方に永久磁石を配置する。磁石は中心軸上 2 cm 離れた位置で 30mT, 3cm で 10mT の磁界を示した。コイルの両端はデジタルテスターに接続した。このテスターは振動操作中の電圧 Max, Min(rms) を計測できる。コアの結束端部を手で押さえて上下に振りコアを振動させた。コア先端の振幅を特定するために高さの異なる振幅枠 (Amplitude frame) の中で振動させた。なお、結束部の振幅は約 1–2 cm, 振動数は約 3 Hz である。

実験結果

Fig. 2 にコアの自由端の振幅 (Peak to Peak) に対するコイルに誘起された電圧 V_{max} を示す。振幅とともに電圧は増加する。コイルの抵抗 $1.8\ \Omega$ を使って算出した発電出力 P_{max} は、電圧の 2 乗に比例するので V_{max} よりさらに急激に増加する。振幅 8cm (peak to peak) で振らせた場合の電圧値 49.9mV から計算した電力値 1.38mW は振動エネルギーから得られる電力としては報告例¹⁾に比べて桁違いに大きい。

この理由はコアのたわみ変形(しなり)によると推測して、たわみが生じない条件で同様の実験をした。コアに厚紙を当て、コアのたわみを抑えた振動では、同じ振幅 8cm に対して、電圧 V_{max} は、たわみ変形を許容した場合に比べて、電圧は 35% に、発電出力 (W) は 12% に低下した。以上の結果は、厚肉非晶質合金箔のたわみ振動を利用して、環境エネルギーを効率的に電気エネルギーに変換できることを示唆する。

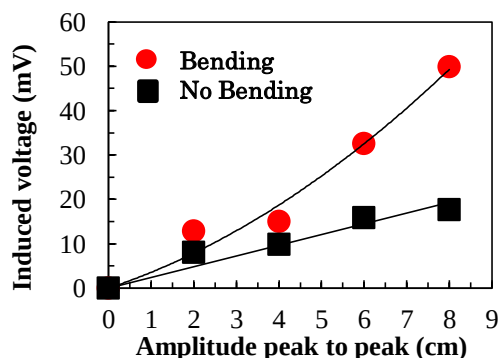
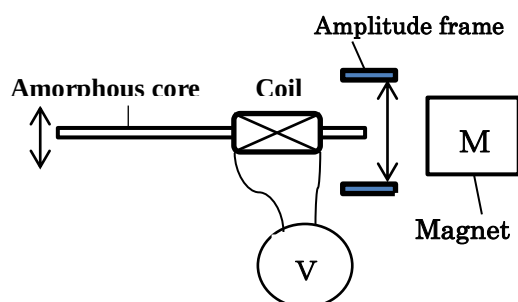


Fig.1 Image of oscillation generator experiments. Fig.2 Induced voltage against oscillation amplitude.

参考文献 1) M. Zucca et al: IEEE Trans. Mag. 50 (2014) 8002104

セラミックス層を導入した Co-SiO₂ ナノグラニューラー膜の構造と磁気特性

青木英恵、大沼繁弘*、増本博、山口正洋
(東北大、*電磁研)

Structure and magnetic properties of ceramics intercalated Co-SiO₂ nano-granular films

H. Aoki, S. Ohnuma, H. Masumoto and M. Yamaguchi

(Tohoku Univ., *DENJIKEN)

はじめに

Co-AlN 系グラニューラー膜は、50-85 at. %の広い Co 濃度において垂直磁化に起因する面内等方性と優れた高周波軟磁気特性を示すことを報告したり。これらの面内等方膜は、柱状組織や磁性粒子が垂直方向に結合した構造に起因する垂直磁化が膜の磁気異方性に寄与するが、異方性磁界は数 100 Oe であり 3-4 GHz の強磁性共鳴周波数(f_r)以上で透磁率(μ)は非常に小さい。また、電気比抵抗(ρ)も 100 $\mu\Omega\text{cm}$ と小さく、高周波デバイス応用上の障害となっている。前回の報告では、高抵抗な (Co-AlN)/SiO₂ 多層膜を作製したが、高抵抗な SiO₂ 層が挿入されて垂直方向の磁気異方性が減少したため、 f_r は 3 GHz 程度にとどまった。一方で、Co-SiO₂ 系グラニューラー膜は TMR を示す高抵抗膜²⁾であり、多層化した面内一軸異方性膜では優れた高周波軟磁性($f_r = 2.5$ GHz)も報告されている³⁾が、より高い抵抗、 f_r を有する面内等方膜の報告はない。本報告では、高抵抗な Co-SiO₂ 膜の構造と垂直磁化に起因する μ - f 特性を明らかにするとともに、タンデム法を用いてセラミックス層を導入した場合の挿入層の効果について検討した。

実験方法

SiO₂ 基板上に Co チップをのせた SiO₂ と AlN をターゲットに用いて、タンデムスパッタ法で室温下で交互に積層成膜した。グラニューラー層となる Co-SiO₂ 側の投入電力を 200 W で一定とし、いずれの (Co-SiO₂)/AlN 膜においても Co-SiO₂ 層の厚み(Co 粒子径)は 3-4 nm とした。一方、AlN 側の投入電力は 0-200 W と変化させ、AlN の成膜速度および層の厚みを変化させた。AlN の投入電力が 0-200 W へ減少するとともに、膜の成膜速度は 0-2.5 nm/min へと減少した。薄膜の組成分析は XRF および EDX、断面観察および結晶解析は TEM、 ρ は 4 端子法、磁化曲線は VSM、 μ - f 特性はマイクロストリップ線路法を用いて評価した。

実験結果

図 1 に投入電力 0 および 100 W で作製した Co-SiO₂ 膜および (Co-SiO₂)/AlN 膜の μ - f 特性を示す。1 GHz における膜の μ は 4 であり、 f_r はそれぞれ 12.5 および 13.4 GHz と高いため 5 GHz 付近まで損失が小さい。Co-SiO₂ 膜および (Co-SiO₂)/AlN 膜の面内飽和磁化はそれぞれ 11.4 および 10.0 kG であり、飽和磁界は 2.6 および 2.9 kOe であった。また、 ρ はそれぞれ 3600 および 2500 $\mu\Omega\text{cm}$ であり、従来の窒化物系グラニューラー膜に比べて高い。膜の高い飽和磁界(大きな垂直磁化成分)や膜の高 ρ が面内等方膜の高周波軟磁気特性に寄与していると考えられる。

参考文献

- 1) H. Kijima, S. Ohnuma, H. Masumoto, IEEE. Trans. Magn., 47-10 (2011) 3928.
- 2) S. Honda, Y. Yamamoto, J. Appl. Phys., 93 (2003) 7936.
- 3) K. Ikeda, T. Suzuki, T. Sato, IEEE. Trans. Magn., 45-10 (2009) 4290.

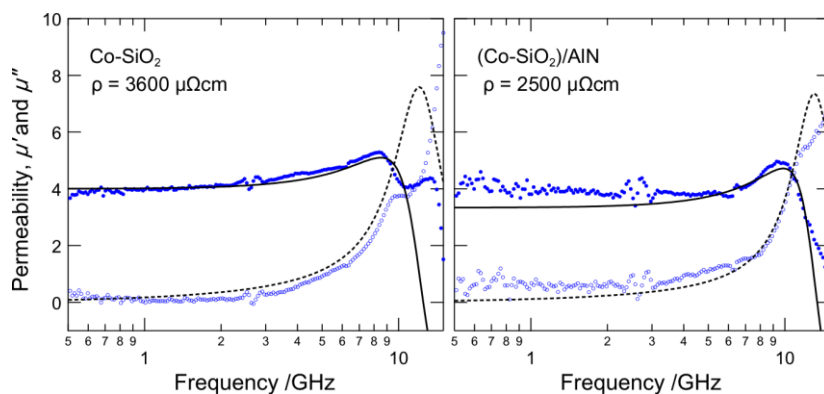


図 1 Co-SiO₂ 膜および (Co-SiO₂)/AlN 膜の μ - f 特性。●(実線)と○(点線)はそれぞれ μ' および μ'' の実測値(LLG 方程式の計算値)を示す。

アモルファス CoFeSiBHf 薄膜の磁気特性の組成依存性

神保睦子, 藤原裕司*, 清水利文
(大同大学, *三重大学)

Composition Dependence of magnetic properties in a-CoFeSiBHf thin films

M.Jimbo, Y.Fujiwara, T.Shimizu
(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¹⁾, 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⁾のヨーク部に使用されている。しかし、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。そこで、我々は a-CoFeSiB 薄膜に Hf を少量添加することで、低保磁力を維持しつつ耐熱性を向上させることが出来ることを報告した²⁾。今回は、a-CoFeSiBHf において、メタルやメタロイドの組成により磁気特性がどのように変化するかを検討したので、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、Si, B, Hf の組成の異なる数種類の合金ターゲットを用いて作製した。Co と Fe の組成はそれぞれ約 75～80at%, 5at%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 などで構造を解析した。但し、実験結果は全て熱処理前である。

3. 実験結果

Fig. 1 は、Hf の組成を一定にして Si+B の量を変化させた時の保磁力の変化を示したグラフである。Si と B のメタロイドの量が 10at%程度では、試料の保磁力にばらつきがある。これらの試料では、垂直磁気異方性が存在する様な BH ループを示し、磁歪が大きくなっていると思われる。そのため、試料作製時の応力により保磁力にばらつきが出たと考えられる。メタロイドが 12at%を超えると角形性の良い低保磁力を示す試料が得られる。Fig. 2 は、Si+B 量を一定にして Hf 量を変化させた時の保磁力の変化を示したグラフである。メタロイドの量が 9at%の時は、Hf を添加すると保磁力が急激に低下しばらつきが無くなるが、メタロイド量が 15at%では、Hf を添加しても保磁力はほとんど変わらないことがわかった。

参考文献

- 1) 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 (1998) 188
- 3) M.Jimbo, Y.Fujiwara, T.Shimizu : J. Appl. Phys. 117, 17A313 (2015) 17A313-1

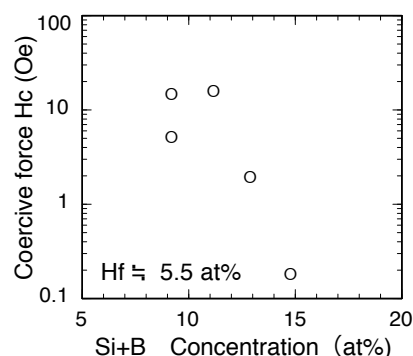


Fig.1 Dependence of the coercive force on (Si+B) concentration for CoFeSiBHf thin films.

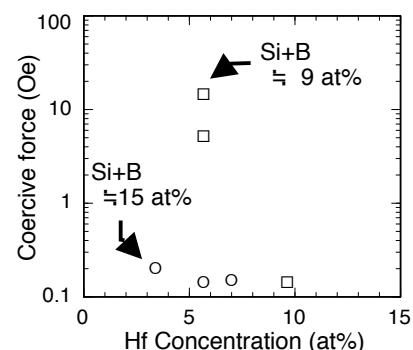


Fig.2 Dependence of the coercive force on Hf concentration for CoFeSiBHf thin films.