

# 細胞培養液中に分散させた マルチコア磁性ナノ粒子の磁化特性評価

大多哲史<sup>1</sup>, 大橋成美<sup>1</sup>, 竹村泰司<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>静岡大学, <sup>2</sup>横浜国立大学)

Evaluation of magnetization properties in multi-core magnetic nanoparticle suspended in cellular medium

Satoshi Ota<sup>1</sup>, Narumi Ohashi<sup>1</sup>, Yasushi Takemura<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Shizuoka University, <sup>2</sup>Yokohama National University)

## はじめに

磁気粒子イメージング(MPI)は体内の磁性ナノ粒子をモニタリングする画像診断技術として注目を集めている<sup>1)</sup>。MPIにおける応用を検討した際に、粒子構造が磁化特性に顕著に影響を与えることが確認されている<sup>2)</sup>。このため本研究では、生体環境における磁性ナノ粒子の形態を模擬した試料として、細胞培養液中に分散させた磁性ナノ粒子の交流磁化特性を評価した。

## 実験方法・結果

超常磁性のマグヘマイト粒子(フェルカルボトラン)について、溶媒が純水の試料(DW)と血清を混合した細胞培養液の試料を用意した。溶媒が培養液の試料については攪拌時間が5分(5 min)と24時間(24 h)の2種類を用意した。本研究では純水試料は作製直後、培養液試料は設定の攪拌時間後に冷凍した。試料の粒子濃度は2.8 mg-Fe/mL、最大磁場強度は16 kA/m、周波数は10 kHz、温度は258–270 Kで計測を行った。

図1に各試料の交流磁化曲線を示した。溶媒が培養液の方が純水の試料よりも保磁力と最大磁化が増加することが確認された。培養液中においては、タンパク質等が粒子に付着して二次粒径が増加することが確認されている<sup>3)</sup>。一方でフェルカルボトランにおいては、複数のコアが集合して一つの実効的なコアとして機能するマルチコア構造を有することが知られている<sup>4)</sup>。図1で確認された保磁力の増加は、培養液中における凝集による実効的なコア径の増加が原因で、ネール緩和時間が増加したためと考えられる。また最大磁化の増加についても保磁力と同様に実効的なコア径の増加が原因と考えられる。また培養液試料について、攪拌時間5分と24時間では保磁力と最大磁化について顕著な差は確認されなかった。図2には各試料の高調波強度を示した。培養液に混合した場合の方が、実効的なコア径の増加により高調波強度が高いことが確認された。

## 参考文献

- 1) B. Gleich and J. Weizenecker, *Nature*, **435**, 1214 (2005).
- 2) S. Ota *et al.*, *Int. J. Magn. Part. Imag.*, **3**, 1703003 (2017).
- 3) A. P. Khandhar *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, **51**, 5300304 (2015).
- 4) T. Yoshida, *et al.*, *Springer Proceedings in Physics*, **140**, 3 (2012).

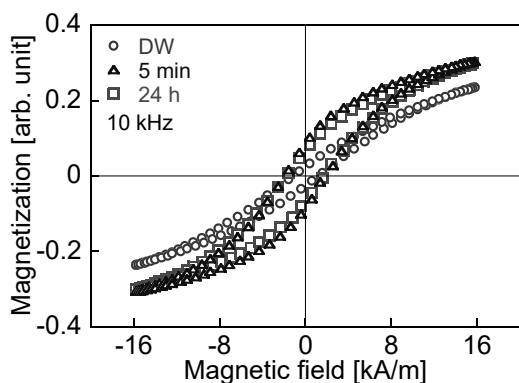


Fig. 1 AC magnetization curves of Ferucarbotran suspended in water (DW) and cellular medium (5 min and 24 h).

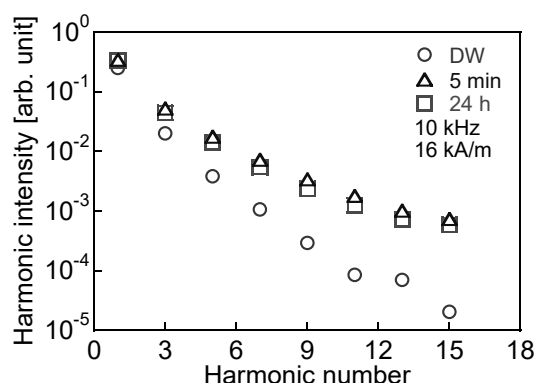


Fig. 2 Harmonic intensities of Ferucarbotran suspended in water (DW) and cellular medium (5 min and 24 h).

## 励磁方向に垂直な磁性ナノ粒子の交流磁化測定

西本 築<sup>1</sup>, 大多 哲史<sup>2</sup>, 山田 努<sup>1</sup>, 竹村 泰司<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>横浜国立大学,<sup>2</sup>静岡大学)

Measurement of AC magnetization of magnetic nanoparticles perpendicular to the excitation direction

Kizuku Nishimoto<sup>1</sup>, Satoshi Ota<sup>2</sup>, Tsutomu Yamada<sup>1</sup>, Yasushi Takemura<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Yokohama National University, <sup>2</sup>Shizuoka University)

### はじめに

細胞内に注入できるスケールの磁性ナノ粒子は、その磁気特性より癌温熱療法や MPI(磁気粒子イメージング)などの医療分野への応用が期待されている<sup>1)</sup>。効果的な治療を行うためには、用いる粒子について構造や励磁条件、粒径などを最適化する必要がある、そのためには磁場中の粒子の振る舞いについて理解することが重要である。そこで我々は交流磁場印加方向に対する垂直と平行の2方向それぞれにおいて、バイアス磁場の依存性について測定を行い交流磁場中の粒子の振る舞いを検討した<sup>2,3)</sup>。

### 実験方法

本研究ではシグマハイケミカル社が製造しているコア粒径が  $11 \pm 3$  nm、液中粒径が  $52 \pm 15$  nm のマグネタイト粒子が入っている M-300 磁性流体の原液を用い、直流磁化測定を磁界強度 4, 8, 12, 800 kA/m、交流磁化測定を励磁周波数 10-50 kHz、磁界強度 0.8-12 kA/m、バイアス磁界強度 0-7.2 kA/m の条件で行った。バイアス磁場は交流磁場と垂直に印加した。測定は液中分散された液中試料及びエポキシ樹脂で粒子自身の回転を固定した固定試料それぞれについて行った。

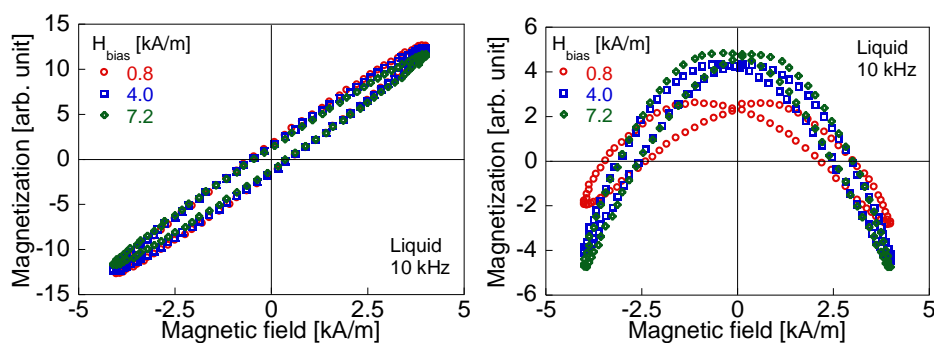
### 実験結果

直流磁化測定において保磁力がほとんど確認されていなかったため、M-300 は超常磁性を示すことが分かった。液中試料での 10 kHz における交流磁化曲線のバイアス依存特性を図 1 に示す。図 1 (a)は並行方向についての交流磁化曲線である。バイアス磁場の増加に伴い、最大磁化が低下することが確認された。これはバイアス磁場により粒子が拘束され回転がしづらくなったためだと思われる。図 1 (b)はバイアス磁界強度が 0 kA/m のときの磁化曲線を 0.8-7.2kA/m のそれぞれの磁化曲線から引いたことにより得られる垂直方向についての交流磁化曲線である。図のように山なりのピークを持つ磁化曲線が確認された。固定試料の結果など詳細は当日発表する。

謝辞：本研究の一部は、科研費 15H05764、17H03275 により実施した。

### 参考文献

- 1). Q. A. Pankhurst, et al., *J. Appl. Phys.*, **42**, 224001-224015, (2009).
- 2). T. Sasayama, et al., *J. Magn. Magn. Mater.*, **427**, p.143-149, (2017).
- 3). H. Kobayashi, et al., *J. Appl. Phys.*, **107**,09B322, (2010).



(a) 並行方向

(b) 垂直方向

図 1 液中試料のバイアス依存特性

## スイッチ磁界に対する磁気ビーズの応答を利用した細菌検出

藪上信, 小野寺英彦, 植竹宏明, 佐藤幸, 宮内啓介, 遠藤銀朗, 三浦由則\*, 高橋英樹\*, 児玉毅靖\*  
(東北学院大学, \*ジーエヌエス有限会社)

Measurement of bacteria using magnetic beads by switching magnetic field

S. Yabukami, H. Onodera, H. Uetake, Y. Sato, K. Miyauchi, G. Endo, Y. Miura\*, H. Takahashi\*, T. Kodama\*  
(Tohoku Gakuin University, \*JNS Co., Ltd.)

**1 はじめに** スイッチ磁界に対する磁気ビーズの応答性から抗原抗体反応によりう蝕関連菌を検出した。

**2 計測方法** Fig. 1 は試作システムの構成を示したものである。本システムは容器、回転機構、磁石および励磁コイル、磁気ビーズからの漏れ磁界を検出する磁界センサ (ジーエヌエス製 MI センサ) から構成される。試料は永久磁石 (NdFeB 磁石, 4mm × 4mm × 1mm) で約 100 秒間着磁され、永久磁石を取り除いて回転する (回転速度は 200 degree/sec)。回転周期に同期して発信器からコイルへ矩形波磁界 ( $\pm 20$  Oe 程度) を与える。容器はコイルの直上を周回し、容器の周回ごとにその磁界方向がスイッチングされ磁界センサ直上で磁気ビーズからの漏れ磁界を検出する。このとき磁気ビーズのみ (細菌と未結合の磁気ビーズ) であれば、スイッチ磁界により比較的容易に磁化回転するが、細菌と結合している磁気ビーズは、ブラウン緩和の緩和時間が比較的長く、磁化回転しにくい状態となると考えられる。

**3 計測結果** Fig. 2 は Protein A が添加された磁気ビーズ (平均粒径 1  $\mu\text{m}$ ) と 1 次抗体 (Anti-*Streptococcus mutans* antibody Ab31181) を結合させた後、う蝕関連菌 (*Streptococcus mutans*) との抗原抗体反応の有無による磁界センサでの波形 (1 周目~4 周目) を示したものである。磁気ビーズは 100  $\mu\text{l}$  中に約  $5 \times 10^7$  個存在し、Mutans 菌数は約  $1 \times 10^6$  個である。Fig. 2(a) では、磁気ビーズのみの場合の出力電圧を示したが、隣接した 2 回の周回、すなわち周回数が奇数回と偶数回では、極性がほぼ反転した波形が得られる。すなわち細菌を含んでいない場合は、周回毎に極性が反転する磁界に追随して磁気ビーズの磁化方向も反転している。したがって、奇数回と偶数回のセンサ電圧差は相対的に大きくなる。これに対して、試料に磁気ビーズと Mutans 菌を結合させた場合、Fig. 2(b) のように 1 周目から 4 周目までの出力電圧の変位において、奇数回と偶数回の差が小さい。これは、磁気ビーズが Mutans 菌と結合することにより、周回ごとのスウィ

ッチング磁界に追従できず磁気ビーズが反転しにくくなっており、奇数回と偶数回において、センサ電圧値も正負の極性反転が起きにくくなっているものと考えられる。すなわち奇数回と偶数回の波形の相違は、細菌数と相関関係を有することを示唆している。**謝辞** 口腔細菌に関してご助言いただきました東北大学大学院歯学研究科高橋信博教授、金高弘恭准教授に感謝します。本研究の一部は JST COI TOHOKU プロジェクトの研究成果である。

**参考文献** 1) W.F. Brown, J. Appl. Phys. 34, 1319 (1963).

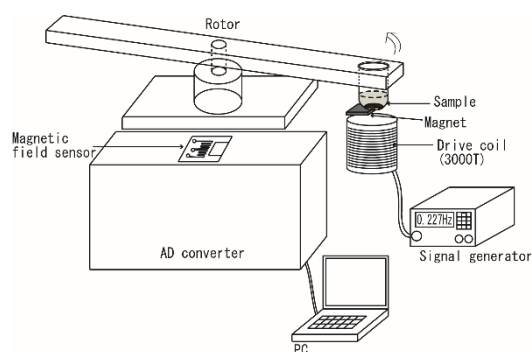
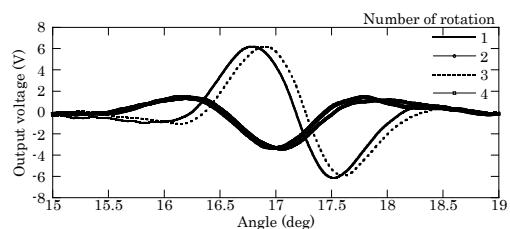
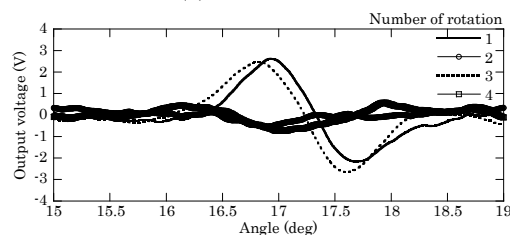


Fig. 1 Schematic view of the sensor.



(a) without mutans



(b) with mutans

Fig. 2 Output voltage when a sample was scanned close to the sensor.

## Relaxation responses of magnetic nanoparticles immobilized by hydrocolloid polymer (agar)

S. B. Trisnanto<sup>1</sup>, G. Shi<sup>1</sup>, R. Takeda<sup>1</sup>, T. Yamada<sup>1</sup>, S. Ota<sup>2</sup>, and Y. Takemura<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Yokohama National University, Yokohama 240-8501, Japan

<sup>2</sup>Shizuoka University, Shizuoka 422-8529, Japan

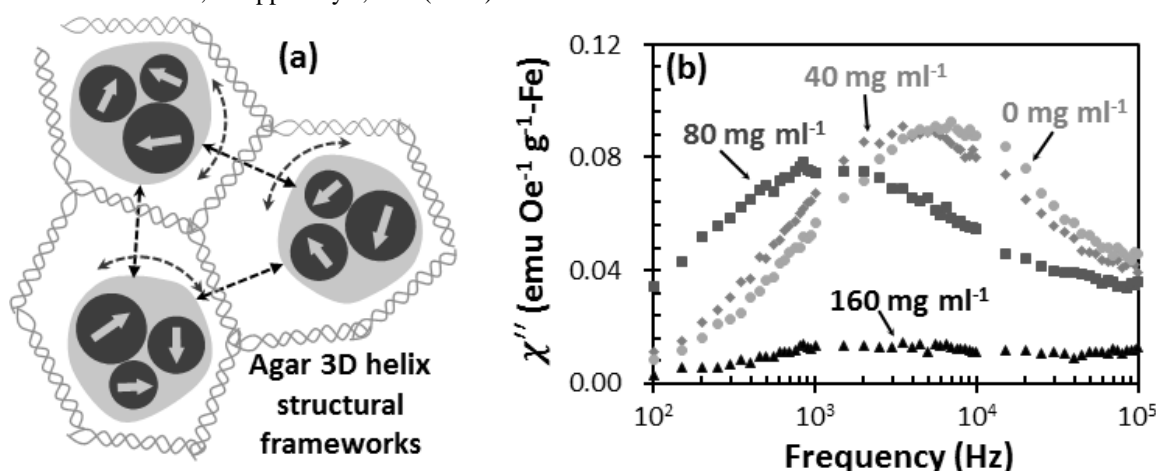
Upon current research-trend in magnetic theranostics (*e.g.*, magnetic hyperthermia, magnetic particle imaging), the interparticle dipolar-magnetism in an interacting magnetic-nanoparticle system principally highlights a significant difference of magnetic properties observed. For a fluidic environment, to confirm how this magnetic interaction changes, is practically easy through controlling the particle concentration, in which such a dense ferrofluid may be associate with a close mean-interparticle-distance of the suspended particles. However, for a solid-phase medium in which magnetic nanoparticles are supposed to be physically immobilized, it is more difficult as particle packing-density may vary upon sample volume. To this concern, such adjusting the shell-thickness of silica-coated magnetic nanoparticles<sup>1)</sup> may become an option to study the corresponding magnetic properties from a simple powder-sample, but we preferably offered the use of hydrocolloid polymer (*i.e.*, agar) to solidify the initial liquid-sample while attempting to maintain its volume. Agar is a polysaccharide complex which can form a thermo-reversible gel due to the molecular interaction of 3D helix structural framework holding the water molecules within the respective interstices. Therefore, this work was aimed to identify the relaxation behavior of the agar-solidified ferrofluids owing to the density of agar.

Experimentally, we solidified the sodium olefin sulfonate-coated magnetite-nanoparticle suspensions (*i.e.*, M300 ferrofluid purchased from Sigma-Hi Chemical) having the particle concentration adjusted to 27 mg-Fe ml<sup>-1</sup>, by varying the mass of agar powder for 0.1 ml sample-volume. The measurements of complex magnetic susceptibility, then, were performed via a phase-sensitive detection (*i.e.*, lock-in amplifier) for 100 Hz to 100 kHz at 50 Oe field-amplitude. As illustrated in Fig. 1(a), adding agar to the ferrofluid sample may restrain the random Brownian motions of the suspended particles, after gelation process finishes. Fig. 1(b) further confirms that a sufficiently high agar concentration leads to a perfect particle immobilization, in which the Brownian relaxation responses diminish. We indicated a spectral shift of relaxation response suggesting the existence of the oscillatory-field induced particle rotation for an increasing shift of relaxation response suggesting the existence of the oscillatory-field induced particle rotation for an increasing agar concentration. We believe that the underlying mechanism was not the morphological change of hydrodynamic volume, but it might be related to the viscosity change of the micro-space on which the particles occupied.

*Acknowledgments:* This study was partially supported by KAKENHI No. 15H05764 and 17H03275.

### Reference

- 1) Nicolás Pérez *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **121** (2017) 044304.



**Fig 1.** Interstitial 3D helix structures during gelation process allows magnetic particles to be physically trapped (a), however imaginary part of magnetic susceptibility reveals the possibility of particle rotation, depending of agar concentration (b).

## 胃腔用磁気誘導カプセルの試作

本田崇、田中祥恵  
(九工大)

Fabrication of magnetically navigated capsule-type medical device for stomach inspection

T. Honda and S. Tanaka  
(Kyushu Inst. of Tech.)

### はじめに

現在、国内で認可されているカプセル内視鏡は、小腸や大腸を検査対象としており、消化管の蠕動運動によって受動的に移動する。そのため、胃腔内のような広く複雑な形状の消化器には不向きとされる。そこで本研究では、胃腔に適用可能なカプセル内視鏡を実現するために、胃腔内を水で満たした条件下で、外部磁界によって駆動する推進機構をカプセルに組み込むことで誘導機能を付与したので報告する。

### 素子構成と動作原理

Fig.1 に素子構成を座標軸と共に示す。カプセルは初期状態で水面に直立し、水面に上部 1mm 程度を出して浮ぶ。カプセルは全長 30mm、直径 11mm、重さ 2.462 g で、内部には実際のカプセル内視鏡を想定し電子部品・バッテリー等を模した構造物を搭載する。このカプセルの側面中央部に推進機構を取り付けた。推進機構は、NdFeB 磁石 ( $\phi 5\text{mm} \times 1\text{mm}$  を 2 個、厚さ方向に着磁)、捻りばね(PET、厚さ  $25\mu\text{m}$ 、長さ 8mm、幅 1mm)、推進力を発生するフィルム (PET、厚さ  $25\mu\text{m}$ 、長さ 11mm、幅 4mm) から構成される。

Fig.2 に 3 つの基本動作を示す。同図(a)は、基本となる水面での水平移動である。z 方向の交流磁界  $H_{zAC}$  を印加すると、磁石が磁気トルクを受け回転振動をする。これによって PET フィルムが上下に揺動し、水を押し出すことで推進力を得る。移動させたい方向(xy 平面内)に直流磁界 (方向制御磁界) を印加すると移動方向が定まる。次に、同図(b)にカプセルを傾けるチルティングの動作を示す。z 方向の直流磁界- $H_{zDC}$  を印加すると磁石に加わる磁気トルクは、磁石を捻りばねを中心に回転させるとともに、カプセル本体を傾かせる。このときのチルト角は、捻りばねの復元トルクとカプセルの浮心と重心の位置で決まる復元トルクの和が、磁気トルクとバランスする角度で決まる。最後に、同図(c)に潜行の原理を示す。 $H_{zAC}$  に対し-z 方向の直流磁界(- $H_{zDC}$ )を重畳すると、PET フィルムが上方に偏った状態で振動し-z 方向の推力が発生する。

### 評価結果

駆動実験では、直径 220mm のコイル (z 軸方向の磁界) の巻かれた円筒水槽と、その周囲に配置した一辺 440mm の 2 組の正方形ヘルムホルツコイル (xy 平面内の磁界) を使用した。評価実験の結果、想定した 3 つの基本動作を実現することができた。各基本動作に適した駆動条件は、以下の通りである。水平移動 (直進) :  $H_{zAC}=50\text{Oe}$  (20Hz) で直進速度が 35mm/s、チルティング :  $H_{zDC} \geq 14\text{Oe}$  でチルト角が  $20^\circ$  以上、潜行 :  $H_{zAC}=20\text{Oe}$  (50Hz),  $H_{zDC}=-16\text{Oe}$  で潜行角が  $81^\circ$ 。なお、各動作に共通する水平面内の方向制御磁界は、50Oe 程度の低磁界で十分機能することを確認した。

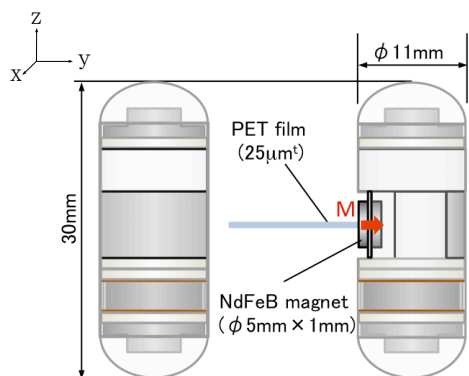


Fig.1 Structure of capsule.

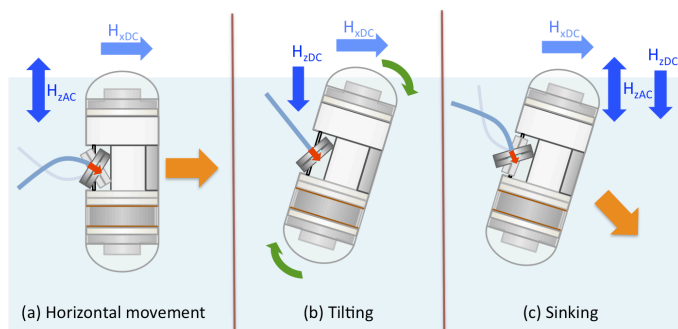


Fig.2 Basic three modes of actuation.

# 磁気ワイヤを用いたコアコイルの Wiegand パルスによる体内インプラント給電

高橋克希、竹渕哲聡、山田努、竹村泰司  
(横浜国立大学)

Power supply for medical implant by Wiegand pulse from magnetic wire used as coil-core  
Katsuki Takahashi, Akitoshi Takebuchi, Tsutomu Yamada, Yasushi Takemura  
(Yokohama National University)

## はじめに

熱ひねり加工を施した FeCoV 複合磁気ワイヤは、高速な磁壁移動によって大バルクハウゼンジャンプと呼ばれる急激な磁化反転を生じ、この周りに検出コイルを設置することでこの磁化反転からパルス出力が得られる<sup>1)2)</sup>。本研究では、このパルスの体内インプラント給電への応用を想定し、交流磁界によりワイヤを励磁し、整流回路とコンデンサによって定電圧化を行った。

## 実験方法

Fig.1 に示すように、ワイヤの周りに給電用検出コイルを設置し、さらにその外側にはワイヤの中央部が励磁されるように励磁コイルを置き、正弦波交流磁界で励磁させた。検出コイルの両端にはダイオードブリッジ及びコンデンサを接続し、正負双方のパルス出力の整流・平滑化を行った。

## 実験結果

Fig. 2 に  $f = 10 \text{ kHz}$  の交流磁界で励磁させたときの検出コイルのパルス(開放電圧)、およびコンデンサ電圧を示す。14 V 程度の平滑化された電圧が得られ、さらに空芯コイルで同様の測定を行ったところ、誘導起電力は 0.5 V 程度であったことから、ワイヤにより 10 倍以上増幅された定電圧が得られることが分かった。

本研究と平行して、我々は給電用コイルの誘導起電力の増幅として、MnZn フェライトを利用した測定を行っている<sup>3)</sup>。Fig. 3 は、同一のコイルについて、 $f = 100 \text{ kHz}$  の交流磁界で励磁した場合における、 $0.7 \times 0.7 \times 5 \text{ mm}^3$  の MnZn フェライトをコアとした場合、および空芯の場合の誘導起電力の測定結果である。回路パラメータの詳細や、同一条件におけるワイヤコア及び MnZn フェライトコアによる定電圧化の比較について当日報告する。

謝辞：FeCoV 磁性線は、ニッコーシ株式会社様のご好意により、提供いただいたものです。

## 参考文献

- 1) J. R. Wiegand, and M. Velinsky, U.S. Patent 3, 820, 090, 1974.
- 2) S. Abe and A. Matsushita, "IEEE Trans. Magn.", 31, pp. 3152-3154, 1995.
- 3) Yuka Shibata, et al., 2016 Joint MMM-Intermag Conference, CY-04, San Diego, Jan, 2016.

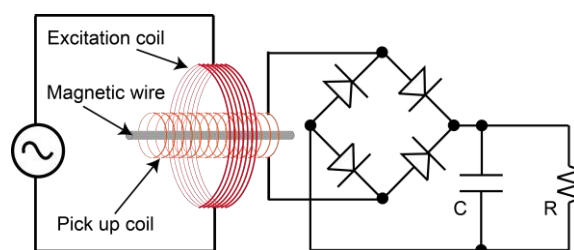


Fig. 1 Configuration of measurement.

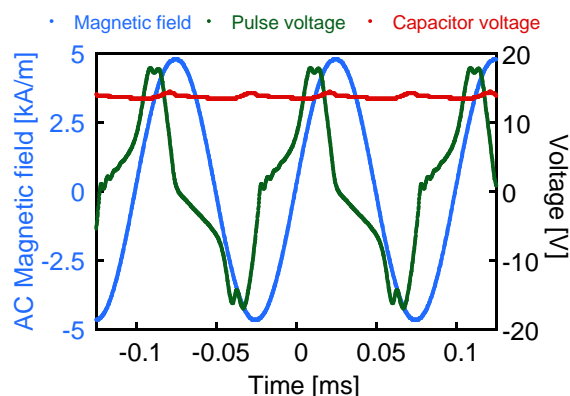


Fig. 2 Waveforms of applied field and detected voltage at 10 kHz excitation.

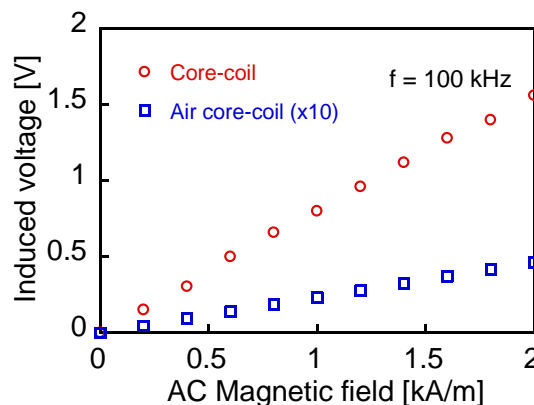


Fig. 3 Electromotive force induced in ferrite and air core coils.

# 磁気トレーサー粒子を用いたがん転移診断における 複数トレーサー併用法の原理実証

桑波田晃弘, 佐伯亘平, Ahmed Muneer, 隣真一, 金子美樹, 山口泰司, 邱 雯綺, 日下部守昭\*, 関野正樹  
(東京大学, \*マトリックス細胞研究所)

## Combined use of magnetic and other tracers for diagnosis of cancer metastasis

A. Kuwahata, K. Saeki, A. Muneer, S. Chikaki, M. Kaneko, S. Yamaguchi, W. Qiu,  
M. Kusakabe\*, and M. Sekino  
(University of Tokyo, \*Matrix cell laboratory)

### 研究背景・目的

がんの転移を診断するために、手術中にリンパ節を同定・摘出し、病理検査をする必要がある。現在、放射性同位体ならびに色素をトレーサーとして併用した信頼性の高い手法によって、リンパ節を同定できるが、被曝や小型医療施設での実施が困難などの問題がある。したがって、近年では、放射性同位体の代替として、磁気ナノ粒子を用いた新手法の研究開発が進んでいる<sup>(1-3)</sup>。本研究は、磁気トレーサー粒子と複数のトレーサーを併用した場合において、トレーサーの体内動態の変化やトレーサー同士の相互干渉の影響がないこと、ならびに併用法によってリンパ節の同定が可能であることを、マウス動物実験によって原理実証する。

### 実験方法

単独法として、磁気トレーサー (Resovist®: 磁気ナノ粒子, 粒径約 60 nm) をマウスの後肢に 5  $\mu$ L 投与し、SQUID 磁化測定装置 (MPMS-5S, Quantum Design Inc.) を用いた磁気計測によって、摘出したリンパ節内に蓄積される鉄量を評価した。併用法においては、磁気トレーサーの投与に加えて、ICG (indocyanine green, 近赤外線蛍光色素) を 5  $\mu$ L 投与し、リンパ節内の鉄量ならびにリンパ節からの蛍光強度を評価した。

### 実験結果・結論

Fig. 1 は、摘出リンパ節の磁気モーメント測定結果である。磁化特性は超常磁性を示しており、生体組織からの反磁性成分の寄与は無視できるほど小さい。Resovist 単独法と併用法の実験において、摘出されたリンパ節の磁気モーメント (3000 [Oe]における) の値を Fig. 2 に示す。Resovist 単独で投与した実験のリンパ節は  $6.2 \times 10^{-5}$  [emu], Resovist と ICG を併用投与した実験のリンパ節は  $6.4 \times 10^{-5}$  [emu] であり、複数トレーサーを併用した場合にも、リンパ節へと同等の鉄量が蓄積されることを明らかとした。近赤外線蛍光強度の評価からも同様に、ICG 単独法・併用法とも同程度の強度の蛍光の観測が可能であった。また、光散乱法を用いて液中粒径を計測した結果、Resovist は約 66.6 nm, Resovist と ICG を混合した溶液は約 66.7 nm と同等の粒径であったことから、粒径に影響を与えるトレーサー同士の相互干渉はないと考える。以上より、磁気計測と蛍光観測の両手法の併用によって、信頼性の高いリンパ節の同定が可能であると結論付ける。

### 謝辞

本研究は、磁気健康科学研究振興財団の助成により実施した。

### 参考文献

- 1) A. Kuwahata *et al.*, AIP advances **7**, 056720 (2017).
- 2) M. Kaneko *et al.*, AIP advances **7**, 056713 (2017).
- 3) A. Muneer *et al.*, Nanomedicine **12**, 1045 (2016).

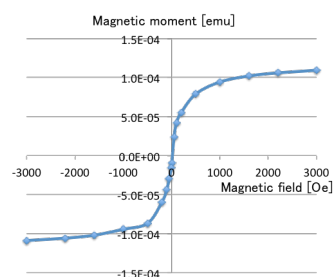


Fig. 1. Measured magnetic moment.

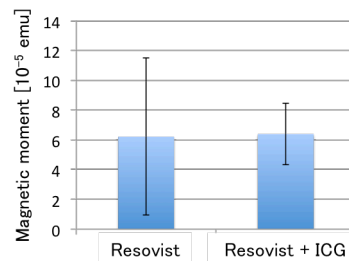


Fig. 2. Magnetic moment in the excised popliteal lymph nodes.

# 磁化容易軸を配向させた磁性ナノ粒子の交流磁化特性評価

竹田遼二<sup>1</sup> 大多哲史<sup>2</sup> 山田努<sup>1</sup> 竹村泰司<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>横浜国立大学、<sup>2</sup>静岡大学)

Dynamic hysteresis measurement of magnetic nanoparticles with alignment of magnetic easy-axis

Ryoji Takeda<sup>1</sup>, Satoshi Ota<sup>2</sup>, Tsutomu Yamada<sup>1</sup>, Yasushi Takemura<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Yokohama National University, <sup>2</sup>Shizuoka University)

## はじめに

ナノサイズの磁性体である磁性ナノ粒子はがん温熱治療や磁気粒子イメージング(MPI)などのバイオ医療応用に向けて注目されている<sup>1)</sup>。それらの実用化に向けて、磁性ナノ粒子の磁化の振舞いの解明は重要な課題である。本研究では容易軸を配向させた磁性ナノ粒子の交流磁化特性を測定することにより、磁性ナノ粒子内の磁化の磁化容易軸方向および磁化困難軸方向の振舞いを評価した。

## 実験方法・結果

本研究では測定粒子としてコア粒径が4 nm、液中粒径が38 nmのカルボキシメチル-ジエチルアミノエチルデキストラン修飾のマグヘマイト粒子を用いた。磁性ナノ粒子を純水中に分散させた試料と、エポキシ樹脂により無磁場中で固定した試料と、575 kA/mの磁場中でエポキシ樹脂により固定することにより磁化容易軸が配向された試料を作製した。それぞれの作製試料に対して周波数1-100 kHzの条件で交流磁化測定を行い、磁化容易軸が配向された試料については磁化容易軸に対して平行方向と垂直方向に励磁することで磁性ナノ粒子の磁化容易軸と磁化困難軸の磁化特性を評価した。

Fig. 1に4 kA/m, 100 kHzにおける各試料の磁化曲線を示す。液中試料と無配向固定試料に比べて、磁化と保磁力は、それぞれ容易軸方向が大きく、困難軸方向では小さいことが確認されている<sup>2-4)</sup>。

Fig. 2に(a)容易軸方向と(b)困難軸方向の4 kA/m, 1-100 kHzにおける交流磁化曲線を示す。容易軸方向では、周波数の増加に伴い保磁力が大きく増加しており、印加磁場に対して磁化の大きな遅れが確認されたのに対し、困難軸方向では保磁力が無く、磁化が印加磁場に追隨していることが確認された。

謝辞：

本研究の一部は、科研費15H05764、17H03275により実施した。

## 参考文献

- 1) Q. A. Pankhurst: *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 36, pp. R198 (2003).
- 2) T. Yoshida, et al.: *J. Magn. Mag. Mater.*, 427, 162, (2017).
- 3) 松木優樹, 吉田敬, 笹山瑛由, 圓福敬二: マグネティックス研究会, MAG-16-126, 横浜, 2016年9月.
- 4) R. Takeda, et al.: 11<sup>th</sup> International Conference on the Scientific and Clinical Applications of Magnetic Carriers, Vancouver, 2016.

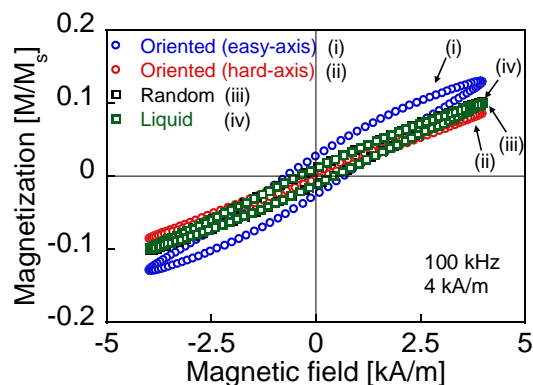


Fig. 1 Hysteresis loops of two solid and one liquid samples at 100 kHz.

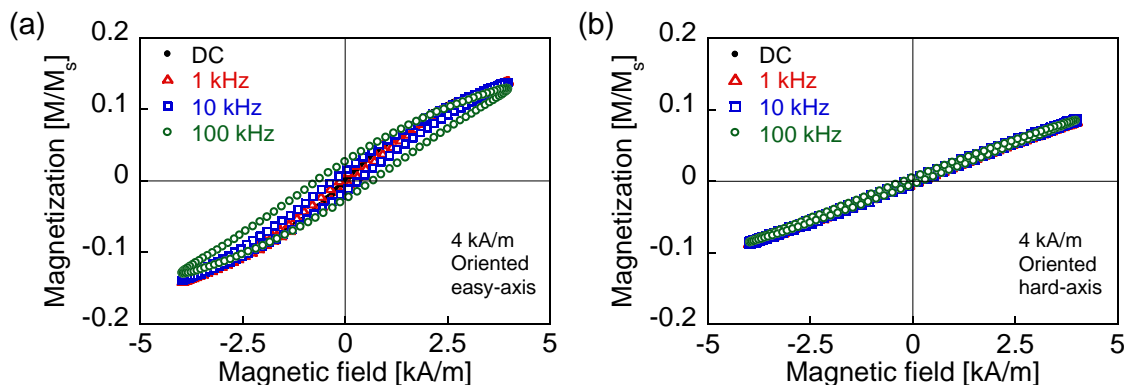


Fig. 2 Hysteresis loops of the solid sample with oriented MNPs along (a) easy-axis (b) hard-axis.



# Distribution of Magnetic Nanoparticles Anisotropy Energy Estimated from AC Susceptibility and Magnetic Relaxation

Ahmed L. Elrefai<sup>1,2</sup>, Teruyoshi Sasayama<sup>1</sup>, Takashi Yoshida<sup>1</sup>, and Keiji Enpuku<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Department of Electrical and Electronic Engineering, Kyushu University, Fukuoka 819-0395, Japan

<sup>2</sup>Department of Electrical Power and Machines, Cairo University, Giza 12613, Egypt

Magnetic nanoparticles (MNPs) have been extensively studied for applications in biomedicine such as magnetic immunoassay, magnetic particle imaging and hyperthermia. For these applications, one of the key parameters of the MNPs is its anisotropy energy  $E$ . This is due to the strong dependence of the Néel relaxation time of MNPs on the value of  $E$ . Hence, the anisotropy energy  $E$  of MNPs should be appropriately selected in order to be suitable for the intended application. Therefore, estimation of the  $E$  distribution in MNP samples is significantly important to develop MNPs that are suited for specific applications. Distribution of  $E$  can be estimated by analyzing experimental measurement results of the magnetic properties for MNP samples, i.e., the AC susceptibility (ACS) and the magnetic relaxation (MRX) of immobilized MNP sample [1].

In this work, the distribution of anisotropy energy  $E$  was estimated from the frequency dependence of the ACS for immobilized MNP sample that was measured from 10 Hz to 1 MHz. The distribution of anisotropy energy  $E$  was estimated by analyzing experimental result using a method published previously [2]. Next, the AC susceptibility measurement in much lower frequency range was substituted by the MRX measurement. For relaxation measurement, immobilized MNP sample was first magnetized with an excitation field of 40 mT. After the excitation field was turned off, magnetic relaxation of MNP sample was measured from 2 to  $10^4$  s. This time range corresponds to the frequency range from  $10^{-4}$  to 0.5 Hz in the AC susceptibility measurement. The relaxation curve was analyzed using a newly developed analytical method to estimate the  $E$  distribution of the MNPs in the range of large  $E$  values. The distribution of  $E$  estimated from the ACS and MRX was expressed by  $E$  vs.  $n(E)E^2$  curve, where  $n(E)$  represents the number of MNPs with  $E$  value.

Figure 1 represents the estimated  $E$  vs.  $n(E)E^2$  curve obtained in this manner for commercial MNP sample of (SHP25, Ocean Nanotech). The estimated  $E$  vs.  $n(E)E^2$  curve from ACS is shown by circle markers, which we were able to estimate in the region of  $3.7 \times 10^{-20}$  J  $< E < 6.7 \times 10^{-20}$  J. The obtained  $E$  vs.  $n(E)E^2$  curve from MRX is shown by triangle markers, which we can estimate the distribution of  $E$  in the region  $9.5 \times 10^{-20}$  J  $< E < 1.3 \times 10^{-19}$  J. The proposed method can be useful to estimate core size distribution of MNP samples.

## References

- 1) F. Ludwig *et al.*, *J. Magn. Magn. Mater.*, 360, pp. 169-173, 2014
- 2) Enpuku *et al.*, *J. Appl. Phys.* **119** 184902 (2016).

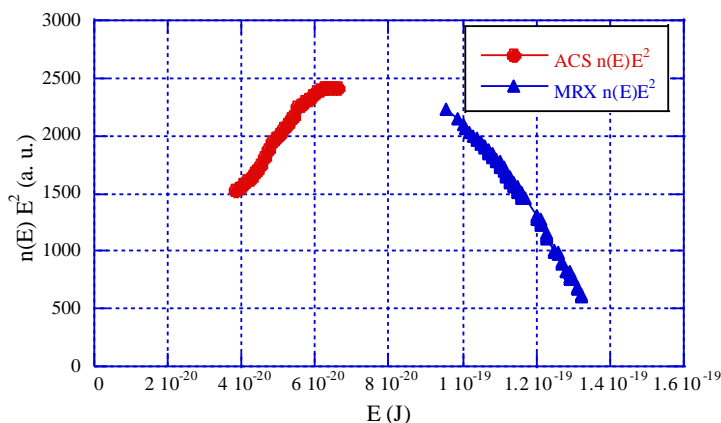


Fig. 1: Estimated  $E$  vs.  $n(E)E^2$  curve. Circle markers were obtained from the ACS measurement, while triangle markers were obtained from the MRX measurement.

## 血中滞留の長い磁性ナノ粒子の MPI 高調波信号と その粒径・粒子構造依存

市川裕<sup>1</sup>, 大多哲史<sup>2</sup>, 竹田遼二<sup>1</sup>, 山田努<sup>1</sup>, 加藤一郎<sup>3</sup>, 野原聡<sup>3</sup>, 吉田敬<sup>4</sup>, 圓福敬二<sup>4</sup>, 竹村泰司<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>横浜国立大学, <sup>2</sup>静岡大学, <sup>3</sup>名糖産業株式会社, <sup>4</sup>九州大学)

Evaluation of harmonic intensity of magnetic nanoparticles for magnetic particle imaging affected by  
particle size and structure

Yu Ichikawa<sup>1</sup>, Satoshi Ota<sup>2</sup>, Ryoji Takeda<sup>1</sup>, Tsutomu Yamada<sup>1</sup>, Ichiro Kato<sup>3</sup>, Satoshi Nohara<sup>3</sup>,  
Takashi Yoshida<sup>4</sup>, Keiji Enpuku<sup>4</sup>, Yasushi Takemura<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>Yokohama National Univ., <sup>2</sup>Shizuoka Univ., <sup>3</sup>Meito Sangyo Co. Ltd., <sup>4</sup>Kyushu Univ.)

### はじめに

磁性ナノ粒子を用いる磁気粒子イメージング(MPI)は高感度かつ低侵襲な画像診断技術として注目を集めている<sup>1)</sup>。本研究では、磁性ナノ粒子の交流磁化測定から高調波信号の検出を行い、磁性ナノ粒子のコア粒径<sup>2)</sup>やコア構造の形態が MPI 高調波信号強度に与える影響を評価した。

### 実験方法

本研究では、測定粒子として粒径の異なる4種のカルボキシメチル-ジエチルアミノエチルデキストラン修飾のマグヘマイト粒子(CMEADM004, CMEADM023, CMEADM033, CMEADM033-02)を用いた。本粒子は血中のアミブミンと結合するため貧食細胞に認識されにくく、血中における滞在時間が長いことが *in vivo* 実験により示されている<sup>3)</sup>。また、比較のために MRI 用の造影剤として使われている Resovist<sup>®</sup>を用いた。それぞれの粒子について水中に分散させた液中試料および寒天により固定した固定試料を作製した。それぞれの試料について、振動試料型磁力計(VSM)を用いて、マイナーループとメジャーLoopを測定し、直流磁化特性を評価した。また、最大磁場 4, 8 kA/m、周波数 1-100 kHz の条件で交流磁化測定を行い高調波信号を算出し、コア構造による MPI 信号強度の分類を行った<sup>4)</sup>。

### 実験結果

Fig. 1 にコア粒子のチェーン状構造が確認された試料 (CMEADM-033-02) の TEM 像を示す。TEM 像中の矢印は長い順にそれぞれシングルコア、チェーンコア、マルチコアを示している。チェーン状構造を含む CMEADM-023, CMEADM-033, CMEADM-033-02 はチェーン構造を含まない CMEADM-004, Resovist<sup>®</sup>に対して、固定試料と比べ液中試料で第三高調波強度が大きく増加することが確認された<sup>5)</sup>。コア径やその TEM 観察像等の詳細は当日発表する。

### 謝辞:

本研究の一部は、科研費 15H05764, 17H03275 により実施した。

### 参考文献

- 1) B. Gleich, J. Weizenecker: *Nature*, **435**, 1214 (2005).
- 2) T. Yoshida, N. B. Othman, K. Enpuku: *J. Appl. Phys.*, **114**, 173908 (2013).
- 3) N. Nitta, K. Tsuchiya, A. Sonoda, S. Ota, N. Ushio, M. Takahashi, K. Murata, S. Nohara: *Jpn. J. Radiol.*, **30**, 832 (2012).
- 4) 大多哲史, 竹田遼二, 山田努, 竹村泰司: 第 39 回日本磁気学会学術講演会, 08pE-5, 名古屋, 2015 年 9 月.
- 5) S. Ota, R. Takeda, T. Yamada, I. Kato, S. Nohara, Y. Takemura: *Int. J. Magn. Part. Imag.*, **3**, 1703003 (2017).

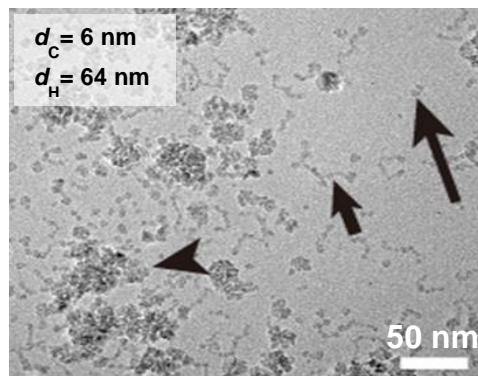


Fig. 1 TEM image of magnetic nanoparticles (CMEADM033-02).

## 血中滞留の長い磁性ナノ粒子の MPI 画像

松木優樹<sup>1</sup>, 中村啄流<sup>1</sup>, 大多哲史<sup>2</sup>, 竹田遼二<sup>3</sup>, 竹村泰司<sup>3</sup>, 加藤一郎<sup>4</sup>, 野原聡<sup>4</sup>, 笹山瑛由<sup>1</sup>,  
吉田敬<sup>1</sup>, 圓福敬二<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>九州大学, <sup>2</sup>静岡大学, <sup>3</sup>横浜国立大学, <sup>4</sup>名糖産業株式会社)

Magnetic particle imaging of long circulating blood pool magnetic nanoparticles.

Yuki Matsugi<sup>1</sup>, Takuru Nakamura<sup>1</sup>, Satoshi Ota<sup>2</sup>, Ryoji Takeda<sup>3</sup>, Yasushi Takemura<sup>3</sup>, Ichiro Kato<sup>4</sup>,  
Satoshi Nohara<sup>4</sup>, Teruyoshi Sasayama<sup>1</sup>, Takashi Yoshida<sup>1</sup>, Keiji Enpuku<sup>1</sup>

(<sup>1</sup> Kyushu Univ., <sup>2</sup> Shizuoka Univ., <sup>3</sup> Yokohama National Univ., <sup>4</sup> Meito Sangyo Co. Ltd.)

### はじめに

磁性ナノ粒子からの高調波磁化信号を利用し、高感度・高分解能にイメージングする磁気粒子イメージング (Magnetic particle imaging, MPI) が医療画像診断として注目されている<sup>1)</sup>。本研究では、血中滞留の長い磁性ナノ粒子の MPI 画像を取得し、MPI 信号強度と磁気モーメント分布の関係を評価した。

### 実験方法・結果

本研究では、血中滞留の長い粒子として4種のカルボキシメチル-ジエチルアミノエチルデキストラン修飾のマグヘマイト粒子を用いた<sup>2)</sup>。Fig. 1にそれぞれのサンプルをxy平面に走査したときのMPI画像を示す。交流励起磁界振幅3.5 mT (x軸)、周波数3 kHz、傾斜磁界0.25 T/m (x軸)、0.125 T/m (y軸)であり、第三高調波磁化信号を検出している<sup>3)</sup>。

Fig. 2に直流M-H曲線から推定したそれぞれの粒子の磁気モーメントの分布を示す。CMEADM-033-02は磁気モーメントが大きい粒子を多く含んでいる。この大きい磁気モーメントの粒子が、Fig.1(d)に示す大きなMPI信号に寄与していると考えられる。MPIでは高調波磁化信号を検出することから、磁気モーメントの大きさとその分布がMPI信号の強度と強い相関があることが確認された。

### 参考文献

- 1) B.Gleich, J.Weizenecker: *Nature*, 435, 1214 (2005).
- 2) S.Ota, R. Takeda, T. Yamada, I. Kato, S. Nohara, Y. Takemura, *Int. J. Magn. Part. Imag.*, 3(1), 1703003 (2017).
- 3) 辻村尚貴, 吉田敬, 圓福敬二: 第39回日本磁気学会学術講演会, 08pE-4, 名古屋, 2015年9月.

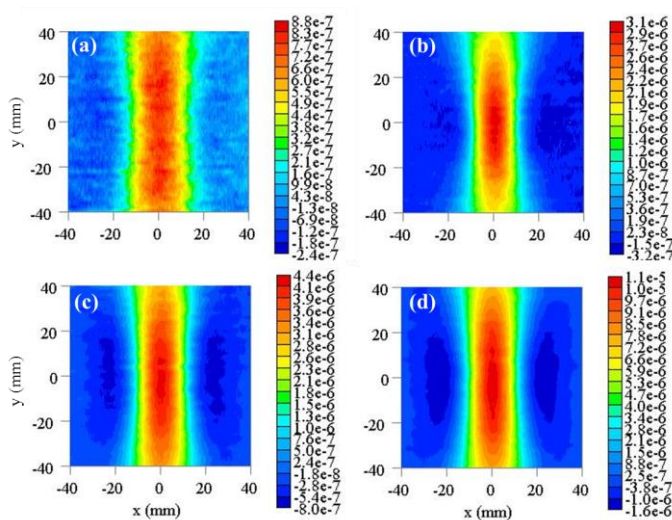


Fig. 1 MPI images of (a) CMEADM-004, (b) CMEADM-023, (c) CMEADM-033, and (d) CMEADM-033-02.

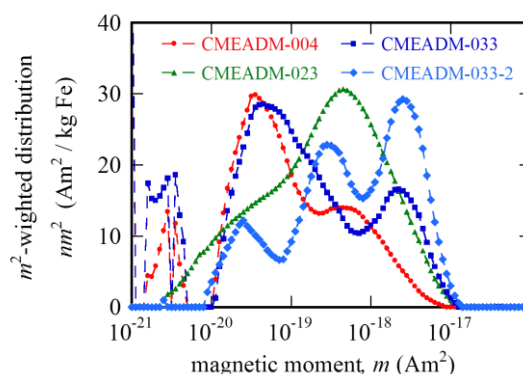


Fig. 2 Distributions of magnetic moments estimated from static M-H curves.

# 多剤耐性がん細胞における抗がん剤作用と

## その取り込み量への交流磁界の影響評価

遠藤裕哉、松居大輔、山田外史、柿川真紀子  
(金沢大学)

Effects of magnetic fields on anticancer drug potency and  
drug uptake to multidrug-resistant cancer cells

Y. Endo, D. Matsui, S. Yamada, M. Kakikawa.

(Kanazawa University)

### はじめに

大腸菌における先行研究において、交流磁界曝露により薬剤の作用が増強された。また、その薬剤作用増強が、薬剤取り込み量増加によりもたらされていることが確認されている。以上を受け、現在、臨床において問題視されている、多剤耐性のがん細胞に対し、交流磁界を曝露することにより、抗がん剤の作用が増強されるか検証する。さらに、その作用増強は、薬剤取り込み量増加に起因するものか検証することを目的とし、交流磁界曝露下でのがん細胞に対する、抗がん剤作用への影響評価を行ったので報告する。

### 実験材料および実験方法

本実験で使用した細胞株は、ヒト子宮肉腫細胞株 MES-SA/Dx5 と呼ばれる多剤耐性細胞株である。この細胞株は、本実験で使用した 90 mm ディッシュに接着して増殖する。実験で使用した抗がん剤は、先行研究において、交流磁界存在下で細胞株 A549 に対し、作用増強が確認された、シスプラチンと呼ばれるプラチナ製剤を使用した。実験では、FBS を 10% 含む培地中に細胞を播種した後、シスプラチンを添加し、交流磁界 (60 Hz, 50 mT) を曝露しながらシスプラチンを反応させることにより、使用した細胞株に対するシスプラチン作用への交流磁界の影響を評価した。抗がん剤取り込み量に関しては、細胞内に取り込まれなかったシスプラチン、つまり、培養液中に残るシスプラチンの薬剤作用を細胞生存率から評価した。

蛍光(excitation : 485 nm、emission : 590 nm)を持つ抗がん剤ドキシソルピシンを、ヒト子宮肉腫細胞株 MES-SA/Dx5 に反応させたときに、マイクロプレートリーダーで測定することで、細胞内に取り込まれた薬剤の量を直接測定した。

### 実験結果および考察

Fig.1 は、ヒト子宮肉腫細胞株 MES-SA/Dx5 に対し、交流磁界存在下で、抗がん剤シスプラチンを反応させたときの細胞生存率を示す。この図から、交流磁界曝露群の方が非曝露群よりも、細胞生存率が約 60% 減少していることが読み取れる。この結果から、交流磁界を曝露することにより、ヒト子宮肉腫細胞株 MES-SA/Dx5 において、抗がん剤シスプラチンの作用が増強されることが確認された。図には示していないが、培養液中に残るシスプラチン量に関して磁界曝露群と非曝露群の両者の間に、有意な差は見られなかった。この結果より、抗がん剤の取り込み量に関しては、交流磁界の影響は確認されなかった。

今回の実験では、多剤耐性ヒトがん細胞 MES-SA/Dx5 において、交流磁界を曝露することにより、抗がん剤シスプラチンの作用が増強されることが確認された。しかし、その作用増強の要因は細胞内への薬剤取り込み量の増加ではなかった。

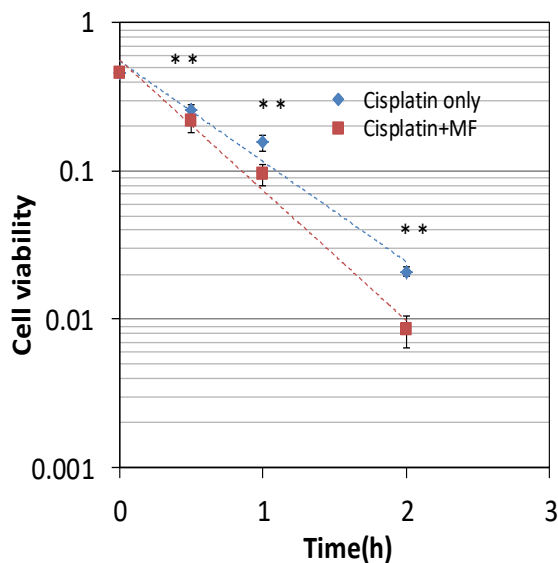


Fig.1 Effect of magnetic fields on cisplatin potency to multidrug-resistant cancer cells (\*\*P<0.01)

# 磁気ハイパーサーミア用発熱体としての金めっき球体 LSMC ペロブスカイト試料の作製および発熱評価

小林正幸, 藤田健司, 赤井勇樹, 中川貴, 清野智史, 山本孝夫  
(大阪大学工学研究科)

Preparation and heat evaluation of gold-plated LSMC perovskite sphere samples for magnetic hyperthermia

M. Kobayashi, K. Fujita, Y. Akai, T. Nakagawa, S. Seino, T. A. Yamamoto

(Osaka University Graduate School of Engineering)

## 1. 研究背景

磁気ハイパーサーミアとは、交流磁場により発熱する発熱体を体内に集積あるいは挿入して、体外からの磁場印加により発熱体周辺のみを選択的に加温し、がん組織を効果的に殺傷する治療法である。先行研究<sup>[1]</sup>で、 $(\text{La,Sr})(\text{Mn,Cu})\text{O}_3$ (以下, LSMC)が磁気ハイパーサーミア用発熱体として有望であることを報告した。この LSMC は、キュリー点付近で自己温度制御性を示した。さらに、金めっきを施すことで生体適合性を付与している。また、金の渦電流損失による発熱も利用することで、低磁場での十分な発熱を確認している。しかし、金めっきに必要な下地ニッケル含有層による磁化が共存し、LSMC のキュリー温度以上でも発熱が残った。また、金の渦電流損による影響が大きく、キュリー温度による自己温度制御性がそこなわれた。本研究では、金めっき LSMC 球状試料にアニール処理を行い、ニッケルの磁化の影響を除去することを試みた。

## 2. 実験

LSMC 試料は、均一な組成の試料を得るために、錯体重合法を用いて作製した。得られた試料の組成と構造をプラズマ発光分光分析, X 線回折により評価した。磁化温度曲線を、振動試料型磁力計を用いて測定した。直径約 1 mm の球状試料に無電解ニッケルボロンめっきを行った後、金の電解めっきを行った。さらに、この金めっき球形試料を 900 °C で 24 時間アニール処理した。球状試料の温度磁化曲線(DC 500 Oe)と交流磁場中(AC 50 Oe)での昇温挙動を測定した。がん腫瘍に模した PAG(1 ml) 中に球状試料(300 mg)を挿入し、1 MHz の交流磁場を印加してゲルに光ファイバー温度計を挿入して测温し、昇温後に到達し安定した温度を観察した。

## 3. 結果と考察

Fig. 1 に LSMC 球状試料の磁化温度曲線を、Fig.2 に到達した温度の磁場強度依存性を示す。Fig.1 より、金めっき後はニッケルの磁化の影響が見られるが、アニール後はキュリー点付近で急激に磁化が減少し、ニッケルに起因する磁化を除去できたことがわかる。また、Fig.2 より、アニール後の試料の到達温度はキュリー温度を超えて一定となった。これは、試料のキュリー点以上でも金の渦電流損失による発熱が大きいためであると考えられる。

## 参考文献

[1] 赤井勇樹 他, 第 39 回日本磁気学会学術講演会, 9aE-2, 名古屋, 2015 年 9 月。

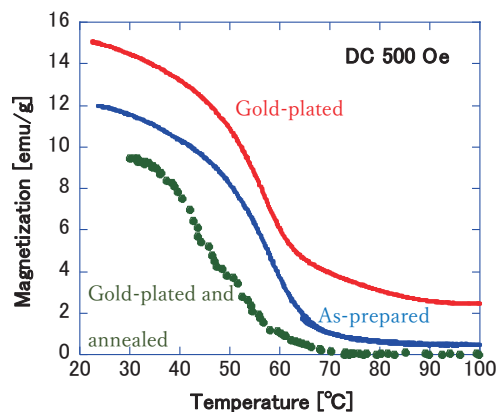


Fig.1 Magnetization-temperature curves of spherical LSMC.

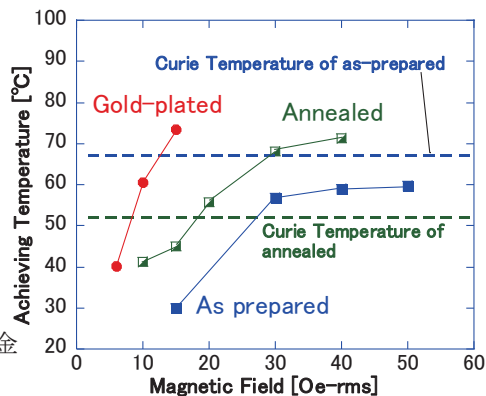


Fig.2 Dependence of achieving temperature on applied magnetic field.

## 磁性 PIC 会合体の液中分散と交流磁化特性の評価

史冠男<sup>1</sup>, トリスナント・スコバグース<sup>1</sup>, 中井啓太<sup>2</sup>, 遊佐真一<sup>2</sup>, 山田努<sup>1</sup>, 大多哲史<sup>3</sup>, 竹村泰司<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>横浜国立大学, <sup>2</sup>兵庫県立大学, <sup>3</sup>静岡大学)

Evaluation of liquid-dispersion and AC magnetization property of magnetic PIC aggregate

G. Shi<sup>1</sup>, S. B. Trisnanto<sup>1</sup>, K. Nakai<sup>2</sup>, S. Yusa<sup>2</sup>, T. Yamada<sup>1</sup>, S. Ota<sup>3</sup>, Y. Takemura<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Yokohama National University, <sup>2</sup>University of Hyogo, <sup>3</sup>Shizuoka University)

### はじめに

がん細胞は腫瘍細胞増殖が速く、血管が未発達であるなどの理由により冷却能力が低いいため、約 42.5°C で死滅する。この特徴を利用して体外から交流磁場を印加して磁性体を発熱させ、がん細胞を死滅させる磁気ハイパーサーミア (がん温熱治療) という治療法が注目されている。PMPC<sub>100</sub>-*b*-PMAPTAC<sub>100</sub>(P<sub>100</sub>M<sub>100</sub>)はカチオン性モノマー(MAPTAC)とベタインモノマーの(MPC)で合成したジブロック共重合体である。PMPC は生体膜の親水部と同じ構造のホスホリルコリン基を側鎖結合したポリマーなので、抗血栓性を示す生体適合性有機材料として知られている<sup>1)</sup>。本研究ではカチオン性の P<sub>100</sub>M<sub>100</sub> で、表面がアニオン性の Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> ナノ粒子 (M-300 : 株式会社シグマハイケミカル製)を静電的にコーティングした磁性ポリオンコンプレックス(PIC)会合体(M-300/P<sub>100</sub>M<sub>100</sub>)の交流磁化特性の測定を行い、その結果から、発熱効率 ILP(Intrinsic loss power)を算出した。その後、未修飾の M-300 との比較を行った<sup>2)</sup>。

### 実験方法・結果

磁性 PIC 会合体(Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> の濃度 : 6.79 g/L、コア粒径 : 9.1 ± 1.6 nm、二次粒径 : 47.8 nm)を、純水中に分散させた試料および、粒子自体の回転を妨げるためにエポキシ樹脂で固定した試料を作製し、直流磁化特性および交流磁化特性(最大磁場 4 kA/m、周波数 1-100 kHz)の測定を行った。また、交流磁化曲線から発熱効率を見積もった。

Fig. 1 に液中分散試料の 4 kA/m における直流磁化曲線を示す。M-300 に比べて磁性 PIC 会合体の磁化が小さいことが確認されたのに対して、固定試料では両者は同じ磁化が得られた。これは M-300 は磁性 PIC 会合体に比べて分散性が良く、相互作用が小さいためであると考えられる。Fig. 2 に 10 kHz における各液中分散試料の交流磁化曲線を示す。液中では高分子ミセルでコートによる液中における状態の変化から、磁性 PIC 会合体の磁化が M-300 より小さいことが確認された。発熱効率等の詳細は当日発表する。

### 謝辞

本研究の一部は、科研費 15H05764、17H03275 により実施した。

### 参考文献

- 1) K. Nakai, M. Nishiuchi, M. Inoue, K. Ishihara, Y. Sanada, K. Sakurai, and S. Yusa: *Langmuir* 2013, 29 9651-9661.
- 2) S. Ota, T. Yamada, Y. Takemura: *J. Appl. Phys.*, 117, 17D713 (2015).

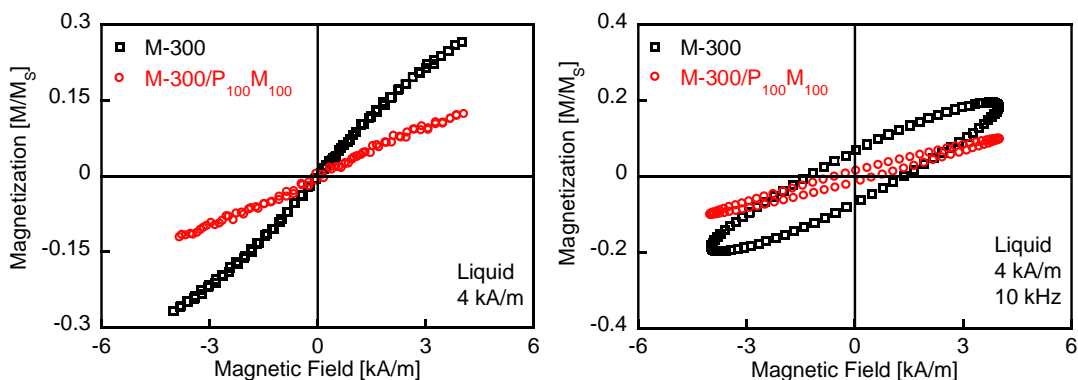


Fig. 1 DC hysteresis loops of M-300 and M-300/P<sub>100</sub>M<sub>100</sub>. Fig. 2 AC hysteresis loops of M-300 and M-300/P<sub>100</sub>M<sub>100</sub>.

## 交流磁界による小麦の発芽影響

野瀬 幹生、大上 伸治、八田 貴、林 周\*、平田 恵啓\*\*  
(岡山理科大学、\*株式会社フォレストック、\*\*北海学園大学)

Alternative magnetic fields might affect germination of wheat

T. Nose, S. Oue, T. Hatta, \*A. Hayashi, \*\*Y. Hirata

(Okayama University of Science., \*Forestec Co. Ltd., \*\*Hokkai-Gakuen Univ.)

### はじめに

地球上の生物は常に地磁気に晒されており、50  $\mu\text{T}$  程度の直流磁界は生物にはまったく影響を及ぼさないと考えられている。一方で、高強度の直流磁界や交流磁界の暴露実験では生体影響や植物の発芽育成への影響が報告<sup>1)</sup>されている。我々はこれまで変動磁界と植物の発芽影響に焦点をあて、どのような要因が影響を及ぼすのかを調査してきた<sup>2)</sup>。本報では小麦の発芽影響について報告する。

### 実験方法

試料には小麦(農林61号)の種子を用いた。種子は寒天培地を入れたシャーレ内に複数並べ、湿度100%を保つため密閉封入した直後に小型インキュベータ内のヘルムホルツコイルの中心に配置した。磁界は250回巻き of ヘルムホルツコイルと電流制御回路で発生させ、振幅20  $\mu\text{T}$ 、周波数1、10、100 Hzの矩形波交流磁界を暴露した。磁界の印可方向をそろえるため、シャーレは照射光の光源に赤色LEDを用い、同一の光量となるように定電流で駆動した。発芽の様子はインキュベータ内に設置したWebカメラを用いて15分間隔で撮影し、得られた画像から発芽に要した時間を求めた。なお発芽は根が1 mmとなった時点とした(Fig. 1)。各周波数につき30個の小麦の発芽観測を6回行った。

### 結果

Fig. 2に20  $\mu\text{T}_{pp}$ 、100 Hz 矩形波の交流磁界を暴露し得られた発芽率の時間推移を示す。磁界の有無によらず実験開始から15時間以降で発芽が確認され、35時間で発芽率はほぼ100%になった。磁界を印可しない場合24時間で発芽率がほぼ50.0%になるのに対して、磁界印可時発芽率は28.8%、26.5時間では72.6%に対して50.8%の発芽率となった。これらは1、10、100 Hzと周波数を変えても、同様の結果を示した。これらより、2.5時間程度ではあるが交流磁界の印可により、小麦の発芽が抑制されることが確認できた。

### 参考文献

- 1) Massimo E. Maffei: Front. Plant Sci., 04 September 2014 | <https://doi.org/10.3389/fpls.2014.00445>
- 2) A. Hayashi *et al.*, The 39<sup>th</sup> Annual Conference on MAGNETICS in Japan | <http://www.magnetics.jp/kouenkai/2015/>

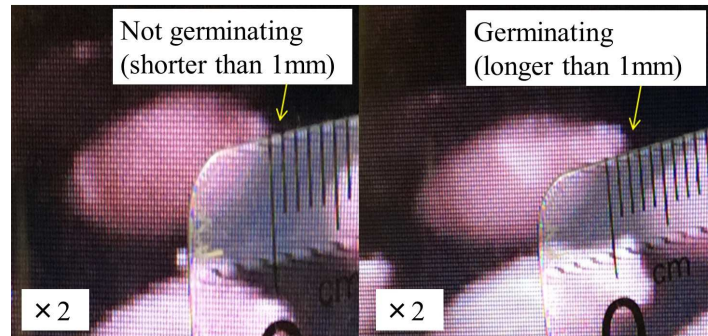


Fig.1 Photographs of the germination.

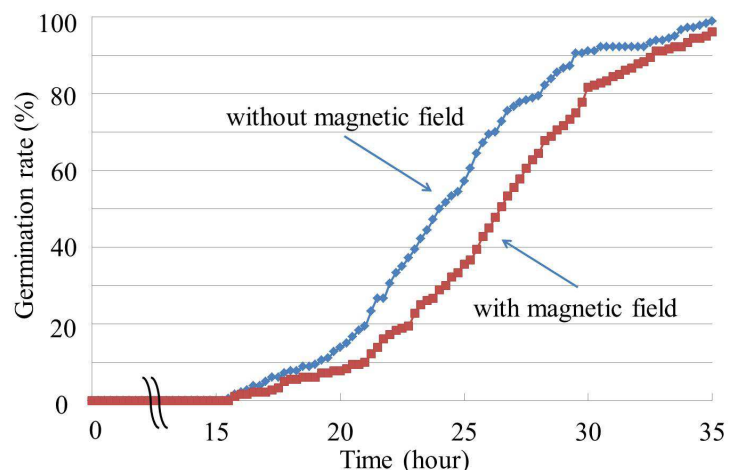


Fig.2 Effects of the magnetic field (100Hz).

# 空隙 50 mm の磁気ハイパーサーミア用 磁気回路型磁場発生装置の作製と磁場特性評価

長谷川諒, 佐藤暢彦, 中川貴, 清野智史, 山本孝夫  
(大阪大学大学院 工学研究科)

Fabrication and magnetic property estimation of  
the 50-mm gap magnetic circuit type magnetic field generator for magnetic hyperthermia

R.Hasegawa, N.Sato, T.Nakagawa, S.Seino, T.A.Yamamoto  
(Osaka University Graduate School of Engineering)

## 1. 研究背景

近年、がんの温熱療法の一つである磁気ハイパーサーミア療法が注目されている。磁気ハイパーサーミア療法は適切な発熱体をごん患部に挿入し、体外から交流磁場を印加することでがん患部を加温する。発熱体を挿入してがん患部だけを局所的に加温することが可能であり、正常部位への影響が少ない低侵襲な治療法である。発熱体として金属製の針や磁性バルク体、磁性流体などが検討されており、これらの多くは発熱量が磁場強度に強く依存する。そこで、発熱体が生体内のどの位置にあっても最適な温度まで上昇させるために、体内の広い領域で均一 ( $\pm 5\%$ ) かつ高強度の交流磁場を発生できる装置が求められている。これまでに我々は、フェライトコアで磁気回路を構成した磁場発生装置の有効性を電磁場解析により示してきた<sup>1)</sup>。本研究では磁極間距離が 50 mm、磁極面積が 90 mm×90 mm の装置を作製し、実際に装置を駆動させて評価を行うことで磁気回路型磁場発生装置の有効性を示す。

## 2. 実験

E コアを向かい合わせ中央突起部 (磁極) にコイルを巻き、中央に 50 mm の空隙を持つ磁気回路型磁場発生装置を作製した (Fig. 1)。磁気回路にはフェライト (TDK, PC40) を用いた。励磁電流を 8.2 A-rms とし、空隙中央部に 30 Oe-rms の磁場を発生させ、ピックアップコイル (断面積: 1 cm<sup>2</sup>, 軸長: 1.5 mm) によって磁場強度の空間分布を測定した (Fig. 2)。また、電磁場解析ソフト (ANSYS Maxwell 3D 12) を用いて発生している磁場強度の空間分布を評価した。

## 3. 実験結果と考察

装置を駆動させた際、フェライトの磁気損失に起因する温度上昇は 30 分間の駆動で 14 度となった。また、フェライトの中央突起部 (磁極) の角周辺はコイルの巻き線近傍であるため磁場強度が大きくなることなど、実測と解析で磁場分布の傾向が一致した (Fig. 2)。そして、実測した磁場強度は設計目標の  $\pm 5\%$  以内の均一性を持つことが分かった。

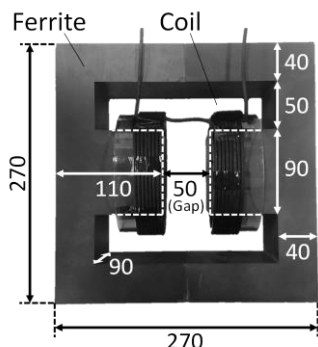


Fig. 1 Magnetic field generator.

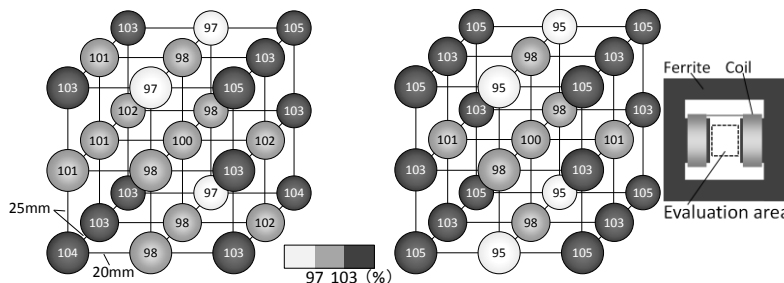


Fig. 2 Distribution of normalized magnetic field strength.  
(Left: Experimental value, Right: Analytical value)

## 参考文献

- 1) M.Takahashi, T.Nakagawa, S.Seino, T.A.Yamamoto, "Design of magnetic circuit for radiofrequency hyperthermia", J. Magn. Soc. Jpn. 38 (2014) 102-106.



## ハイパーサーミア用人体サイズコイルの磁場・電場の効果

青戸知広<sup>1</sup>、山田努<sup>1</sup>、大多哲史<sup>2</sup>、池畑芳雄<sup>3</sup>、山田外史<sup>3</sup>、竹村泰司<sup>1</sup>  
(横浜国立大学<sup>1</sup>、静岡大学<sup>2</sup>、金沢大学<sup>3</sup>)

The effect of magnetic and electric fields produced by a human body size applicator for hyperthermia

T. Aoto<sup>1</sup>, T. Yamada<sup>1</sup>, S. Ota<sup>2</sup>, Y. Ikehata<sup>3</sup>, S. Yamada<sup>3</sup>, Y. Takemura<sup>1</sup>

(Yokohama National University<sup>1</sup>, Shizuoka University<sup>2</sup>, Kanazawa University<sup>3</sup>)

### はじめに

体内に投与した磁性ナノ粒子に体外から交流磁場を印加することで癌を治療する、磁気ハイパーサーミアが研究されている。印加交流磁場が誘導する交流電場により、生体組織へのエネルギー吸収が起こるため、治療の際の患者への悪影響が懸念される。また一方で、TMS(Transcranial magnetic stimulation, 経頭蓋磁気刺激)<sup>1)</sup>や、TTF(Tumor treating field, 腫瘍治療電場)<sup>2)</sup>といった、交流電場が生体に及ぼす効果を利用した治療法が存在し、研究が進められている。

### 実験方法

本研究では Fig. 1 に示すような人体サイズのコイル(直径 250 mm)で体内に投与した磁性ナノ粒子を誘導加温する磁気ハイパーサーミアを想定している<sup>3)</sup>。コイル部分は、線径 0.06 mm のリッツ線 250 本の束を 24 束、中空の形状をなすように螺旋状に編み込んだ仕様となっており、さらに冷却用のフッ素系不活性液体で満たされたケースで覆われているため、最大で 400 A<sub>rms</sub> の大電流を通電することができる。また、周波数は 142 kHz で固定されている<sup>4)</sup>。人体深部に実効値で 8 kA/m の磁場を印加することにより、癌を治療するのに十分な磁性ナノ粒子の発熱を誘導することができる。このときの電場強度を評価した。

### 実験結果

最大磁場強度が 8 kA/m の交流磁化測定の結果に基づき、Resovist<sup>®</sup> の発熱量に関して SLP(Specific loss power)と ILP(Intrinsic loss power)の 2 つの指標で表したものが Fig. 2 である。これにより、人体サイズコイルの固定周波数である 142 kHz において 37 kW/kg の SLP を示すことがわかり、この発熱量に比例した腫瘍の温度上昇が期待できる<sup>5)</sup>。本研究では、コイルが作り出す交流磁場に加え、それが誘導する交流電場を見積もった。これらの磁場・電場が生体に及ぼす影響を考慮した実験条件を整え、人体サイズコイルによる磁性ナノ粒子の誘導加温を利用した癌温熱治療の実現可能性を検討したので報告する。



Fig. 1. Human body size applicator.

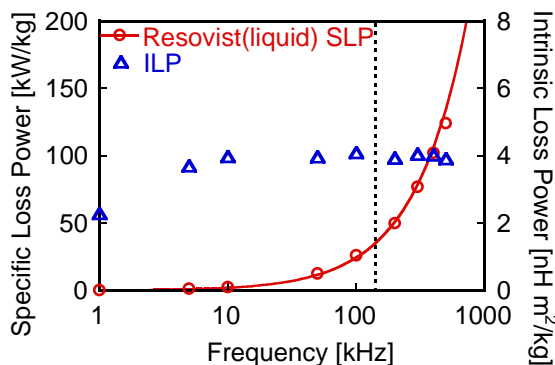


Fig. 2. SLP and ILP of Resovist<sup>®</sup> (dotted vertical line indicates 142 kHz).

謝辞：本研究の一部は、科研費 15H05764、17H03275 により実施した。

### 参考文献

- 1) M. Sekino, and S. Ueno: "Comparison of current distributions in electroconvulsive therapy and transcranial magnetic stimulation.", *J. Appl. Phys.*, **91**(10), 8730-8732, 2002.
- 2) Y. Palti: "Management of recurrent or progressive glioblastoma multiforme with low-intensity, medium-frequency alternating electric fields.", *Eur. Oncol. Dis.*, 88-89, 2007.
- 3) 青戸知広ら: "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", 第 40 回 日本磁気学会学術講演会, 08aD-1, 金沢, 2016 年.
- 4) 山田外史ら: "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.
- 5) T. Aoto, *et al.*: "Specific loss power of magnetic nanoparticles for hyperthermia excited by pancake-type applicator", 電気学会論文誌 A 2017 年 8 月号. (印刷中)

# 磁性シフトレジスタを用いたファンアウト素子

野村 光, 吉岡 直倫, 中谷 亮一  
(大阪大)

Fan-out element based on nano-magnet shift register  
Hikaru Nomura, Naomichi Yoshioka, Ryoichi Nakatani  
(Osaka Univ.)

## はじめに

近年, 磁性量子セルラオートマタ (Magnetic quantum cellular automata : MQCA)<sup>1</sup> に代表される微小磁性体を利用した素子が低消費電力, 荷電粒子に対する高い耐性などの利点から注目を集めている. なかでもバイナリ演算が可能な磁性論理演算素子(magnetic logic gate : MLG)<sup>2</sup>は従来の半導体を基盤とした論理ゲートを代替する新規素子として期待されている. 我々はこれまでに, MLG を基盤とした NAND/NOR 論理ゲートや, 磁性シフトレジスタ<sup>3</sup>を提案してきた. しかし, 実用を考えた場合, 複数の論理ゲートを組み合わせなければならない. このためには, ファンアウト数 2 以上の素子が不可欠となる. そこで本研究では, 磁性シフトレジスタに基づくファンアウト数 2 の素子を提案する.

## 実験方法

図 1 に磁性シフトレジスタに接続された磁性ファンアウト素子の模式図を示す. 磁性ファンアウト素子として, Au(3 nm)/Ni-20 at.%Fe(20 nm)の膜構成を持つ微小磁性体を電子線リソグラフィ法, イオンビームスパッタリング法, リフトオフ法を用いて Si 基板上に作製した. また, 本素子の動作検証を行うため, 始めに磁気力顕微鏡法(magnetic force microscopy: MFM)による磁性マニピュレーションを用い情報の書き込みを行った. 続いて, 一様な外部磁場をトリガーとしてファンアウト操作を実行した. 最後に, 高さ一定モード磁気力顕微鏡法により素子のバイナリ状態を確認した. MFM には外部コントローラにより制御可能にした日立ハイテクサイエンス社製磁気力顕微(SII-A300)を用いた. MFM の外部コントローラには LabVIEW FPGA を用いて開発した独自のコントローラを, MFM 探針には市販のカンチレバー (SI-DL40) にイオンビームスパッタリング法を用いて Co-17 at.%Pt (80 nm)を製膜したものをを用いた.

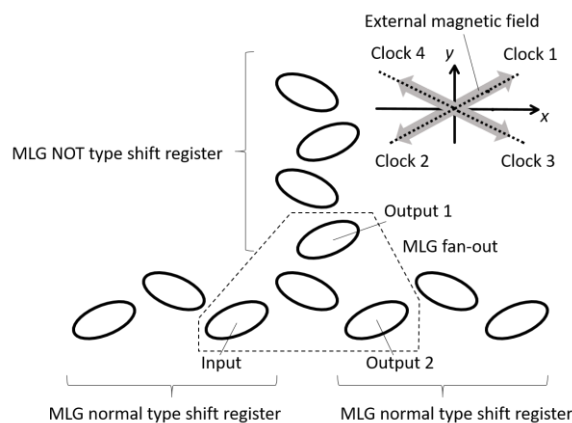


図 1 磁性シフトレジスタに接続された磁性ファンアウト素子の模式図.

## 実験結果

磁性ファンアウト素子に対し, Input = 1 を入力後, 図 1 中の Clock 1 ~ Clock 4 に示す向きに適切な強度の外部磁場を印加した結果, Input へ書き込まれた情報が, Output 1 と Output 2 へそれぞれ分岐した. Output 1 は NOT 型シフトレジスタであるため Output 1 = NOT(Input) = 0 の情報が出力された. Output 2 は通常のシフトレジスタであるため, Output 2 = Input = 1 の情報が出力された. このことから, 本素子は, 磁性シフトレジスタと組合せた状態でファンアウト数 2 の素子として動作することが示された. 本素子を用いることで, 近い将来, 複数の演算ゲートを接続した MQCA 回路が実証されるものと期待している.

## 参考文献

- 1) R. P. Cowburn and M. E. Welland, Science, 287, 1466 (2000).
- 2) H. Nomura and R. Nakatani, Applied Physics Express, 013004 (2011).
- 3) 野村 光, 森田陽大, 中谷亮一, 信学技報, vol. 113, no. 407, MR2013-39, pp. 35-40, 2014 年 1 月.

# 薄い Co 層を導入した Pt/Co/Tb-Co 多層細線の電流誘起磁壁移動

黒川雄一郎、鷲見聡\*、栗野博之\*  
(九州大学, \*豊田工業大学)

Current-induced domain wall motion in Pt/Co/Tb-Co multilayered wires with inserted thin Co layer  
Yuichiro Kurokawa, \*Satoshi Sumi, and \*Hiroyuki Awano  
(Kyushu Univ., \*Toyota Technological Inst.)

## 序論

電流による磁壁の駆動は、レーストラックメモリをはじめとした新規な磁気メモリや論理素子への応用が期待されるスピントロニクス新しい研究分野である。我々のグループでは希土類磁性細線を用いてこの電流誘起磁壁移動を観察してきた。最近の研究で、磁性体-重金属界面でスピンホール効果(SHE)とジャロシンスキー守谷相互作用(DMI)が発生し、それがトルクとして働き電流誘起磁壁移動に寄与することがわかってきた。この研究では、Pt/Tb-Co 磁性細線を作製し、Pt/Tb-Co 界面に薄い Co 層を挿入していくことで、Pt から受け取るトルクが変化することを期待し、実験を行った。

## 実験方法

試料の成膜はスパッタリング装置を用いて行った。Tb-Co 合金を積層し、3 nm-Pt 層を膜上部に堆積した。またその時、 $t = 0 - 0.3$  nm までの膜厚  $t$  を持つ Co 層を Pt と Tb-Co の間に挿入した。Tb-Co 層と Co 層は合計して膜厚が 6 nm になるように設計した。試料の細線への加工は電子ビームリソグラフィとリフトオフ法を用いて行った。加工した細線の幅は  $1.5\mu\text{m}$  である。この細線に  $1\mu\text{s}$  のパルス幅を持つパルス電流を印加することで電流誘起磁壁移動を観察した。電流誘起磁壁移動はカー効果顕微鏡を用いて観察した。

## 実験結果

Pt/Co( $t = 0 - 0.3\text{nm}$ )/Tb-Co( $6 - t\text{nm}$ )の電流誘起磁壁移動を観察したところ、全ての試料で磁壁が電流方向へ移動することが分かった。これは、Pt からのトルクによって磁壁が駆動されていることを示している。次に、印加電流密度に対する磁壁速度の変化を図 1 に示す。図によると、挿入 Co 層の膜厚を変化させていくと、Co 層の膜厚が大きくなるにしたがって低い電流密度でより速い磁壁速度に到達することがわかった。Pt からのトルクの受け取りやすさはスピンミキシングコンダクタンス  $G$  で決定される[1]。Co 層を挿入することで界面での  $G$  が変化することにより、Co 層を挿入した場合のほうがより磁壁が移動しやすくなったことが考えられた。

## 謝辞

本研究は私立大学戦略的研究基盤形成支援事業：マイクロ・メソ構造制御による革新的グリーン電子素子・材料技術の基盤形成(2014-2019) および科研費 No.26630137 (2014-2016)の支援を受けて行ったものです。

## 参考文献

[1] W. Zhang, W. Han, X. Jiang, S-H. Yang, and S. S. P. Parkin, Nat. Phys. **27**, 496 (2015).

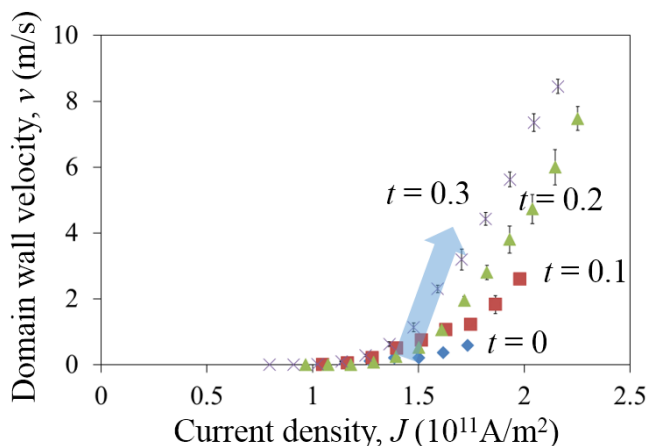


Fig. 1 Velocity ( $v$ ) of domain wall in Pt/Co( $t$  nm)/Tb-Co( $6 - t$  nm) wires as a function of current density ( $J$ ).

# Co<sub>2</sub>MnAl<sub>1-x</sub>Si<sub>x</sub> 薄膜における高異常ネルンスト効果とその起源

桜庭裕弥<sup>1</sup>、兵頭一茂<sup>2</sup>、三谷誠司<sup>1</sup>、佐久間昭正<sup>2</sup>

(<sup>1</sup> 物材機構、<sup>2</sup> 東北大院工)

Large anomalous Nernst effect in Co<sub>2</sub>MnAl<sub>1-x</sub>Si<sub>x</sub> Heusler thin film and its origin

Y. Sakuraba<sup>1</sup>, K. Hyodo<sup>2</sup>, S. Mitani<sup>1</sup> and A. Sakuma<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>NIMS, <sup>2</sup>Tohoku Univ.)

## 背景

異常ネルンスト効果は強磁性体に熱流が流れた際に、温度勾配と磁化の外積方向に電界が生じる現象である。一般的な熱電効果であるゼーベック効果では温度勾配と電界が同軸方向に現れる1次元的現象であるのに対し、異常ネルンスト効果は磁化・熱流・電界が3次元的に生じるため、熱電対列の構成が容易であり大面積熱源を利用した環境発電応用が期待できる[1,2]。試算によれば、 $\mu\text{W-mW}$ の発電力が目標とされる実用環境発電技術に向けては、最低でも $10\text{-}20\ \mu\text{V/K}$ 以上の熱電能が求められるが[1]、これまでに室温以上のキュリー温度を持つ強磁性体において観測されている異常ネルンスト効果による熱電能は、FePtやMnGaで報告されている $1\ \mu\text{V/K}$ が最大であり[3]、少なくとも一桁以上大きなネルンスト効果を示す材料を開拓する必要がある。大きな異常ネルンスト効果を示す材料探索の指針はまだ確立されていないが、電界の線形応答の表式から[4]、異常ホール角 $\theta_{\text{AHE}}$ 、ゼーベック効果 $S$ 、電気抵抗率 $\rho$ 、熱電気テンソル非対角項 $\alpha_{xy}$  ( $\propto d\sigma_{xy}/d\varepsilon$ )が大きい材料が有望であると考えられる。本研究では、これらの要素を合わせ持つ材料系としてCo<sub>2</sub>MnAl<sub>1-x</sub>Si<sub>x</sub>(CMAS)系ホイスラー合金に注目した。Co<sub>2</sub>MnAlは高い内因性異常ホール効果を示すことが予測されるとともに、 $d\sigma_{xy}/d\varepsilon$ はフェルミ準位近傍で急峻である。従って、Al:Siの組成比を変え、フェルミ準位を制御することで、大きな異常ネルンスト効果が生じる可能性がある。

## 実験方法

エピタキシャルCMAS薄膜(50nm)はCo<sub>2</sub>MnSiとCo<sub>2</sub>MnAlターゲットを利用したコスパッタ法によってAl:Si組成比 $x$ を変化させた。成膜は室温で行い、成膜後に500-700°Cの熱処理を行った。異常ネルンスト効果は、面内方向に熱流を流し、面直磁場を印加する配置で測定した(図1挿入図)。

## 実験結果

作製したCMAS膜の異常ホール効果を測定した結果、Co<sub>2</sub>MnAl( $x=0$ )で最大の異常ホール伝導度が観測され、 $x$ 増大とともに単調減少した。一方、異常ネルンスト効果はCo<sub>2</sub>MnAlでは小さく $x$ 増大とともに大きくなり、 $x=0.37$ の試料で最大 $4\ \mu\text{V/K}$ が観測された(図1)。またこの試料を600°C以上の高温で熱処理し、 $L_2$ 規則度を高めることで出力は $6\ \mu\text{V/K}$ まで向上した。これは金属系強磁性材料としては最も大きな値である。この $x$ 依存性を解析した結果、 $x=0.37$ における大きな異常ネルンスト効果は、ゼーベック効果 $\times$ 異常ホール効果によって生じる寄与と $\alpha_{xy}$ の寄与の2つが相乗的に効いていることが分かった。第一原理計算により $\alpha_{xy}$ を算出した結果、実験結果と定量的に比較的良好な一致が見られた。

## 参考文献

- 1) Y. Sakuraba, Scripta Materialia 111, 29-32 (2016).
- 2) Y. Sakuraba et al., APEX 6, 033003 (2013)
- 3) K. Hasegawa et al APL 106, 252405 (2015)
- 4) K. Behnia J. Phys. Cond. Matt 21, 113101 (2009)

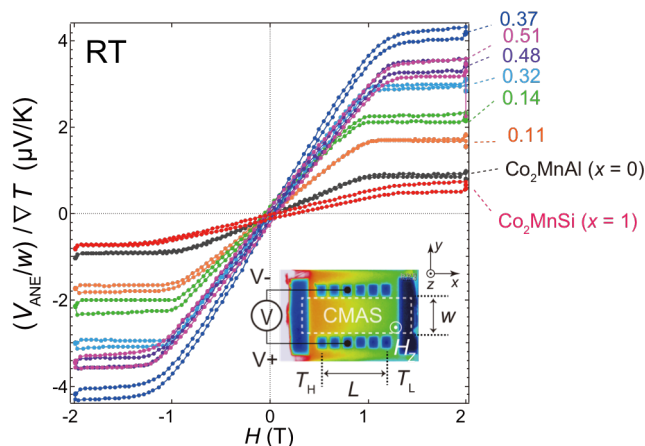


図1 作製したCMAS薄膜の異常ネルンスト電圧(温度勾配と試料幅で規格化)の磁場依存性

# 酸化物磁性体/非磁性金属界面への Ru 挿入による スピンゼーベック起電力の増加

中田記矢<sup>1</sup>、中村瞭平<sup>1</sup>、稲見翔<sup>1</sup>、湯浅裕美<sup>1,2</sup>

(1.九州大学、2.JST PRESTO)

Spin Seebeck voltage enhancement by inserting Ru layer into interface of oxidized magnetic material/nonmagnetic metal

F.Nakata<sup>1</sup>, R.Nakamura<sup>1</sup>, S.Inami<sup>1</sup>, H.Yuasa<sup>1,2</sup>

(1.Kyushu Univ. 2.JST PRESTO)

## はじめに

熱電発電の一種であるスピンゼーベック発電について、その起電力を決定付ける重要なパラメータの一つであるスピンホール角に着目し、スピンゼーベック発電の起電力向上を図った。Ta や W は Pt よりもスピンホール角が大きいにも関わらず<sup>1),2),3)</sup>、YIG と組み合わせたときの起電力は大きくない<sup>4)</sup>。この原因を YIG との界面の酸化によるスピンミキシングコンダクタンスの劣化と考えた。これを改善するため、Ta や W よりも酸化しにくいと報告されている Ta<sub>50</sub>W<sub>50</sub> 合金を非磁性層に採用したところ<sup>5)</sup>、酸化抑制によるスピンミキシングコンダクタンスの改善は見られなかったが、Ta<sub>50</sub>W<sub>50</sub> のスピンホール角が W よりも大きいことが分かった<sup>6)</sup>。本報告では、界面に酸化耐性の高い金属を挿入し、スピンミキシングコンダクタンスを改善する方針とした。

## 実験方法

磁性絶縁体として厚さ 1 mm のバルク焼結体 YIG を用い、その上に各種非磁性層をスパッタし試料を作成した。Fig.1 に示した熱付与機構を用いて試料に温度差を加え、起電力を測定し、スピンゼーベック係数を算出した。

## 実験結果

非磁性金属層の総膜厚 5 nm におけるスピンゼーベック係数の大きさを Fig.2 に示す。界面に何も挿入していない試料、界面の酸化を抑制すべく界面に Pt を 0.5 nm 挿入した試料、同じく界面に Ru を 0.5 nm 挿入した試料をそれぞれ作成した。ここで、Pt, Ru は Ta, W, Ta<sub>50</sub>W<sub>50</sub> とスピンホール角の符号が逆であることに留意が必要である。界面に Pt を挿入した試料では、スピンミキシングコンダクタンスが劣悪な Ta, Ta<sub>50</sub>W<sub>50</sub> では僅かにスピンゼーベック係数が増加したものの、大きな効果は得られなかった。次に、Ru を挿入した試料では、全ての試料でスピンゼーベック係数は増大し、バルク部分がスピンホール角の大きい Ta<sub>50</sub>W<sub>50</sub> の試料で、今回作成した試料の中で最も大きなスピンゼーベック係数を示した。さらに、YIG/Pt に比べて YIG/Ru/Pt の起電力が大きいことから、Ru のスピンミキシングコンダクタンスが Pt より高いことが分かった。

## 謝辞

この研究は、JST さきがけ (No. JPMJPR15R8)、立石科学技術振興財団の支援を受け行われました。

## 参考文献

- 1) L.Liu *et al.*: Phys. Rev. Lett. 106, 036601 (2011) etc,
- 2) L.Liu *et al.*: Science 336 555 (2012). etc,
- 3) Qiang Hao *et al.*: Phys. Rev. Appl. 3, 034009 (2015). etc,
- 4) Ishida *et al.* :arXiv:1307.3320,
- 5) Yoda *et al.*: J. Japan Inst. Met. Mater. 361121 (1972)
- 6) Nakata *et al.*: The 64<sup>th</sup> JSAP spring meeting 14p-P10-78 (2017)

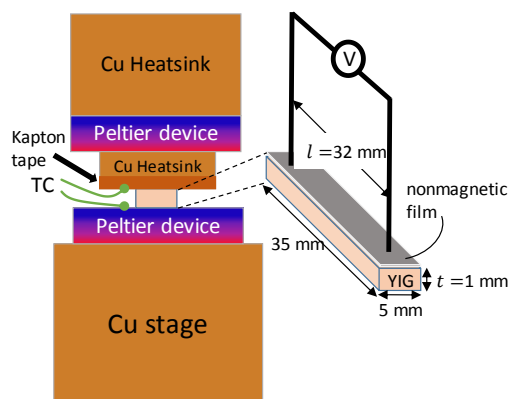


Fig1. Experimental structure.

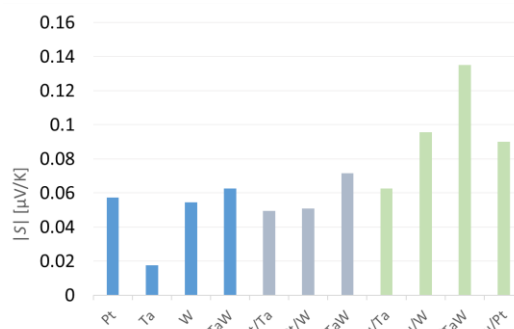


Fig2. Spin Seebeck coefficient dependence on materials.

## Spectroscopic generalized magneto-optical ellipsometry of Py/Ag/Bi trilayers

S. Tomita<sup>1</sup>, P. Riego<sup>2,3</sup>, K. Murakami<sup>1</sup>, T. Kodama<sup>1</sup>, N. Hosoito<sup>1</sup>, H. Yanagi<sup>1</sup>, and A. Berger<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>GSMS-NAIST, Japan, <sup>2</sup>CIC nanoGUNE, Spain, <sup>3</sup> Universidad del País Vasco, Spain)

Spin-orbit coupling (SOC) is a key phenomenon in modern magnetism and spintronics. Much attention has been paid recently to the Rashba-type SOC at interfaces. Large values of the Rashba coefficient have been found at interfaces between heavy elements with strong SOC, for example, bismuth (Bi), and non-magnetic metals, for example, silver (Ag). In transport measurements, the Ag/Bi interface with a ferromagnetic permalloy (Py) layer gives rise to a very large spin-charge conversion<sup>1</sup>, due to the Rashba-type SOC at the interface. From the microscopic point of view, SOC is relevant to magneto-optical (MO) properties as well as to electron transport. However, MO responses in the ferromagnetic Py in proximity to a Ag/Bi Rashba interface have not yet been explored. In this contribution, we study Py/Ag/Bi trilayers using spectroscopic generalized MO ellipsometry (S-GME)<sup>2</sup>.

Py, Bi, and Ag layers were deposited onto silicon substrates at room temperature using magnetron sputtering with an argon gas pressure of  $4.2 \times 10^{-3}$  Torr. The Py, Bi, and Ag deposition rates were 0.10, 0.15, and 0.25 nm/s, respectively. In the trilayer sample labeled PSB1, a Bi layer having 10 nm in thickness was deposited on the Si substrate first, after which a Ag layer of 5 nm and a Py layer of 30 nm thickness were sequentially deposited. The other trilayer sample, which is labeled PSB2, has an inverted structure, meaning that a 5 nm thick Ag layer was sputtered onto the initially deposited Py layer, which was furthermore covered by a Bi layer of 10 nm thickness. The control sample has only a Py layer with 30 nm thickness. All samples were coated by a 2 nm thick tantalum (Ta) layer to avoid oxidization of the functional layers.

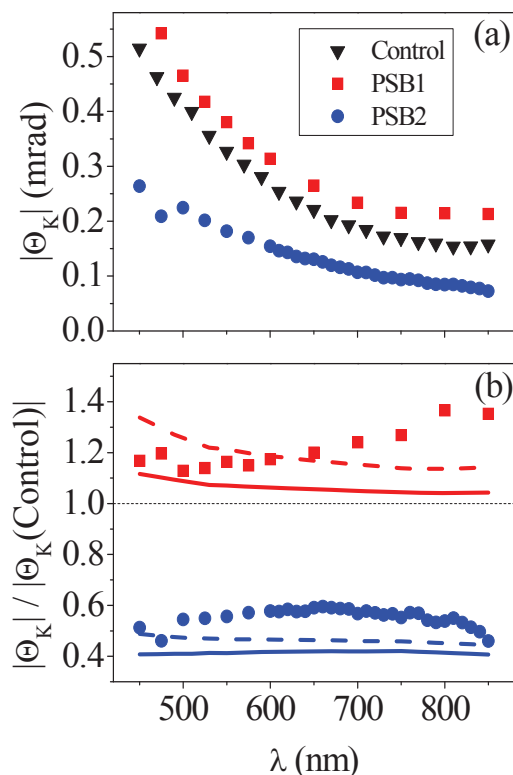
Our three samples have been characterized in detail using this S-GME setup at various wavelength  $\lambda$  in visible and near-infrared regions. A multiparameter least-squares fitting procedure<sup>2</sup> of the acquired data enables us to extract the reflection matrix. From the reflection matrix elements, we evaluate the Kerr rotation  $\theta_K$  and ellipticity  $\epsilon_K$  values, we have evaluated the Kerr amplitude  $|\Theta_K(\lambda)| = \sqrt{[\theta_K(\lambda)]^2 + [\epsilon_K(\lambda)]^2}$

In Fig. 1(a),  $|\Theta_K(\lambda)|$  of the three samples are plotted as a function of  $\lambda$ . Overall, the three samples show a decrease in  $|\Theta_K(\lambda)|$  at a longer  $\lambda$ . Experimental results in Fig. 1(a) demonstrate that the PSB2 sample (blue circles) has a smaller  $|\Theta_K(\lambda)|$  than the control sample (black triangles) over all the explored spectral range. This seems to be consistent with the fact that the ferromagnetic Py layer is buried below 5 nm of Ag and 10 nm of Bi, which are not magneto-optically active themselves, and thus the overall MO signal of the sample is reduced.

Contrastingly, the PSB1 sample (red squares), in which the Py layer has an Ag/Bi underlayer, shows an enhanced  $|\Theta_K(\lambda)|$  at every  $\lambda$  with respect to the reference sample. In order to make this enhancement clearer, we have normalized  $|\Theta_K(\lambda)|$  of the PSB1 and PSB2 samples to the one of the control Py sample. The experimentally observed “enhancement factor”  $|\Theta_K(\lambda)|/|\Theta_K(\lambda)|_{\text{Control}}$  is shown in Fig. 1(b) as a function of  $\lambda$  in red squares for PSB1 and blue circles for PSB2. For PSB1, the enhancement factor for  $|\Theta_K(\lambda)|$  is 1.2 at  $\lambda = 450$  nm and increases up to 1.4 at a longer  $\lambda$  in the near-infrared region ( $\lambda = 800$  nm). On the other hand, for PSB2, the enhancement factor is smaller than one for all values of  $\lambda$ , starting at approximately 0.5 at  $\lambda = 450$  nm and increasing modestly to 0.6 for a longer  $\lambda$ . We therefore conclude that the presence of the Ag/Bi bilayer enhances the MO response of adjacent Py layers, particularly in the near-infrared region<sup>3</sup>.

### References

- 1) Rojas Sánchez J C, Vila L, Desfonds G, Gambarelli S, Attané J P, De Teresa J M, Magén C and Fert A 2013 *Nature Comm.* **4** 2944
- 2) Berger A and Puffall M R 1997 *Appl. Phys. Lett.* **71** 965
- 3) Riego P, Tomita S, Murakami K, Kodama T, Hosoito N, Yanagi H, Berger A 2017 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **50** 19LT01



**Fig. 1** (a) Kerr amplitude  $|\Theta_K(\lambda)|$  of PSB1 (red squares), PSB2 (blue circles), and control samples (black triangles). (b)  $|\Theta_K(\lambda)|$  of the PSB1 and PSB2 samples normalized to the control sample's  $|\Theta_K(\lambda)|$ .

## Microstructure dependent magnetization dynamics of polycrystalline YIG thin films

Satya Prakash Pati and Yasushi Endo  
(Tohoku University)

Studies on microstructure-dependent magnetization dynamics of yttrium iron garnet (YIG,  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ ) have received considerable attention after it was first studied by Lecraw et.al.[1]. YIG has been proved to be an efficient material for magnonics and spintronics application after discovery of spin pumping [2], spin seebeck effect [3] and spin hall magnetoresistance [4] phenomena. Being a magnetic insulator, YIG often considered as the best medium for spin-wave propagation due to its very small intrinsic damping parameter in bulk  $\sim 3 \times 10^{-5}$ [5]. Moreover, for device application, it is required to fabricate YIG thin films over a metallic electrode without affecting its damping parameter. In this study, we report the use of a platinum electrode to control the microstructure as well as Gilbert damping parameter of polycrystalline YIG films.

Amorphous YIG films ( $t_{\text{YIG}}=400, 100$  and  $50\text{nm}$ ) were deposited on  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (0001) substrates without and with a Pt (25 nm) buffer layer by RF magnetron sputtering at room temperature while maintaining a base pressure of  $\sim 4.0 \times 10^{-4}$  Pa. YIG deposition was performed at an RF power of 180 W in a mixed gas of Ar = 3.8 SCCM and  $\text{O}_2 = 1.2$  SCCM. The deposition rate was 2.17 nm/min. The as-deposited YIG films were post-annealed at various temperatures (973–1173 K) in air for three hours. X-ray diffraction (XRD) and X-ray fluorescence (XRF) were used to analyze the structure and composition, respectively. The surface morphology of the films was studied by atomic force microscopy (AFM). VSM was used to investigate the static magnetization properties while magnetization dynamics of films were estimated by the field domain ferromagnetic resonance (FMR) spectra using the coplanar waveguide (CPW).

Figure 1 compares the AFM image of 100-nm thick YIG films without and with the buffer layer exhibiting surface roughness 4.50 nm and 2.47 nm, respectively. The grain size of the YIG film with the buffer layer is much larger than that of the YIG film without the buffer layer, and the average values are several hundred nanometers. This result means that the Pt buffer layer improves the grain size and surface roughness of the post annealed YIG film. Figure 2 shows the thickness dependence of Gilbert damping parameter ( $\alpha$ ) in YIG films without and with the Pt buffer layer. In every case,  $\alpha$  increases as the film thickness decreases. Their values of the films with the buffer layer become lower than that of films without the buffer layer, and are very close to the bulk value [5]. For example 100-nm thick YIG film has  $\alpha \sim 3.5 \times 10^{-4}$  and  $11.4 \times 10^{-4}$  for the Pt-buffered and non-buffered cases, respectively. This result may be extrinsic in origin, as Pt-buffered films have both larger grain size and lower roughness, thus lower  $\alpha$ , however due to the high structural in-homogeneity in the films without the buffer layer have higher  $\alpha$ . On the basis of these results, it is revealed that the damping parameter can be significantly reduced by improving the surface morphology by using a Pt buffer layer which may act as a lower electrode in magnonics and spintronics applications.

This work was partly supported by JSPS KAKENHI Grant Number JP26289082, JP17H03226, JP17F17070 from MEXT, Japan and Murata Science Foundation and ASRC in Japan. S. P. Pati would like to thank JSPS for the international post-doctoral research fellowship (ID no: P17070).

### References

[1] R. C. Lecraw *et al.*, Phys. Rev.110, 1311( 1958).

[2] Y. Kajiwara *et al.*, Nature 464, 262 (2010).

[3] K. Uchida *et al.*, Nat. Mater. 9, 894 (2010).

[4] C. Hahn *et al.*, Phys. Rev. B 87, 174417 (2013).

[5] M. Sparks, Ferromagnetic-Relaxation Theory (McGraw Hill, New York,(1964).

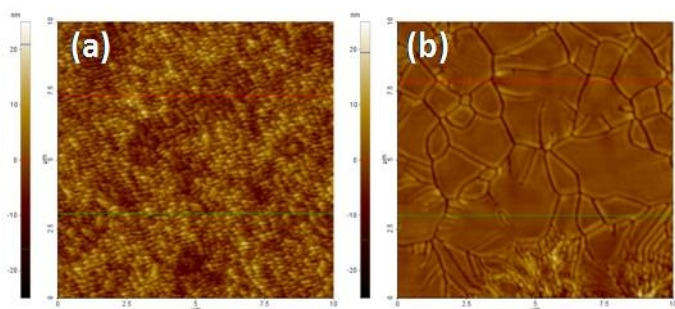


Fig. 1 AFM image of (a)  $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{sub})/\text{YIG}(100)$  and (b)  $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{sub})/\text{Pt}(25)/\text{YIG}(100)$  post annealed at 1173 K .

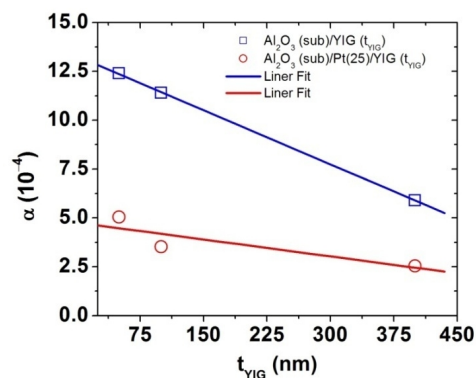


Fig. 2 Thickness ( $t_{\text{YIG}}$ ) dependent Gilbert damping parameter ( $\alpha$ ) of YIG film without and with a Pt buffer layer.

## サブミクロンサイズ Fe-Pt 粒子を用いたコア/シェル粒子の試作

林 禎彰、石山和志  
(東北大学 電気通信研究所)

Preparation of core/shell particles using sub-micron sized Fe-Pt particles

Y. Hayashi, K. Ishiyama

(Research Institute of Electrical Communication, Tohoku University)

## はじめに

磁性相を磁氣的に孤立させた組織を持つグラニュー媒体のような材料は高保磁力を発現しており<sup>1)</sup>、このような組織の形成は磁石材料の高保磁力化にも貢献することが期待される。しかし、このような磁石材料は微細な組織制御を必要とするため、その形成が困難である。我々は、磁石相/非磁性相-コア/シェル粒子を応用し、微細な組織制御を果した磁石材料を形成することを検討している。これは、コア/シェル粒子を磁石材料の原材料として利用し、コア/シェル粒子のコアサイズやシェル厚み等を制御することで、形成される磁石材料の組織制御を行うものである。本研究では、目的とする磁石材料の原材料となるコア/シェル粒子の検討として、粒子径約 200nm のサブミクロンサイズ Fe-Pt 粒子を合成し、それを用いた L1<sub>0</sub> Fe-Pt/SiO<sub>2</sub>-コア/シェル粒子の試作を行った。

## 実験方法

サブミクロンサイズ Fe-Pt 粒子はポリオール法により合成した。エチレングリコール中に、Fe(acac)<sub>3</sub>、Pt(acac)<sub>2</sub>、ポリビニルピロリドン(PVP)、オレイルアミン、オレイン酸を溶解し、マグネチックスターラーによる攪拌をしながら沸点(198 °C)で 1 時間の反応を行うことで Fe-Pt 粒子を得た。また、Fe(acac)<sub>3</sub> と Pt(acac)<sub>2</sub> の投入量は、粒子の組成が概ね Fe : Pt = 50 : 50 (at.%) になるように調整した。次に、Fe-Pt 粒子表面上へ SiO<sub>2</sub> シェルの形成を Stöber 法により行った。エタノール中に Fe-Pt 粒子を分散させた分散液に、アンモニア水とオルトケイ酸テトラエチル(TEOS)を加え、超音波による攪拌をしながら 2 時間の反応を行うことで Fe-Pt/SiO<sub>2</sub>-コア/シェル粒子を得た。作製したコア/シェル粒子は、その Fe-Pt コアを fcc 構造から L1<sub>0</sub> 構造へ規則化させるため、900 °C で 1 時間の H<sub>2</sub> ガス雰囲気中熱処理を施した。試作した粒子の磁気特性測定は VSM、観察は SEM、結晶構造解析は XRD、組成分析は EDX により行った。

## 実験結果

Fig.1 (a) に示す Fe-Pt 粒子の SEM(2 次電子)画像より、粒子径約 200 nm のサブミクロンサイズ粒子の合成が確認された。XRD より求めた結晶子径が約 2nm であることから、粒子径約 2nm の微粒子が凝集し、このサブミクロンサイズ粒子を形成していると考えられる。次に、Fig.1 (b) と Fig.1 (c) に熱処理前後のコア/シェル粒子の SEM(反射電子)画像をそれぞれ示す。熱処理前の粒子よりコア/シェル構造を確認でき、その粒子径が約 450 nm であることから、約 120~130nm の SiO<sub>2</sub> シェルが Fe-Pt 粒子表面に形成されていると考えられる。そして、熱処理後の粒子も、このコア/シェル構造を維持していることがわかる。また、その Fe-Pt コアが L1<sub>0</sub> 構造への規則化していることが XRD より確認された。

よって、L1<sub>0</sub> Fe-Pt/SiO<sub>2</sub>-コア/シェル粒子の形成が果たされていると考えられる。一方で、熱処理後の粒子にはシェル中でコアが分裂している粒子も観察された。これはシェル厚みに起因するものと考えており、この分裂の抑制にはシェル相の薄手化が必要であると考えている。最後に、熱処理後のコア/シェル粒子の M-H 曲線を Fig.1 (d) に示す。熱処理後の粒子は保磁力が 22kOe と高い値を示したが、その M-H 曲線には軟磁気的な振舞いも含まれていた。このため、熱処理による Fe-Pt コアの規則化が不十分であることや組成ずれを生じた Fe-Pt 粒子が存在していることなどが考えられる。今後は、微細組織の観察や熱処理条件の検討を行っていく予定である。

参考文献 1) T. Shima, et al., *Appl. Phys. Lett.*, **85**, 2571 (2004).

謝辞 VSM 測定(最大印加磁界:70kOe)にご協力頂いた榊玉川製作所に感謝致します。

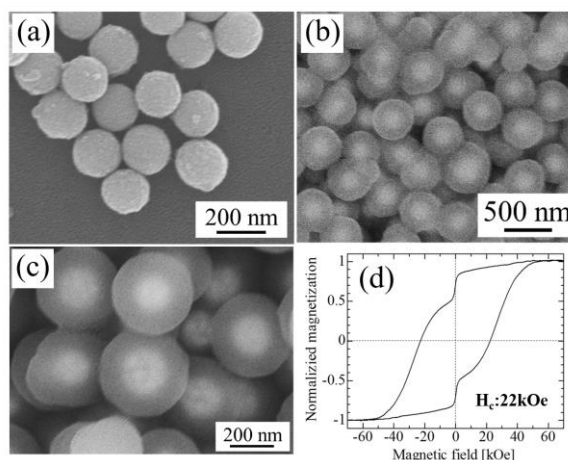


Fig. 1 (a) Secondary electron image of as-synthesized Fe-Pt nanoparticles. Low loss backscattered electron images of (b) as-prepared core/shell particles and (c) annealed core/shell particles. (d) M-H curve of annealed core/shell particles.



## 孤立したマグネタイトナノ粒子の磁気特性評価

間宮広明、福本浩哉\*、西垣淳平\*、クヤ ジョン\*、バラチャンドラン ジャヤデワン\*、  
(物質・材料研究機構、\*滋賀県立大学)

Magnetic characterization of well-isolated magnetite nanoparticles  
H. Mamiya, H. Fukumoto\*, J. Nishigaki\*, J. Cuya\*, and B. Jeyadevan\*  
(NIMS, \*The University of Shiga Prefecture)

### Introduction

In recent year, method for synthesizing magnetic nanoparticles has made remarkable progress. However, the true magnetic characteristics of the nanoparticles such as magnetic anisotropy is yet to be revealed due to interactions between nanoparticles. As a consequence, the application-oriented design of magnetic nanoparticles has become difficult. Thus in this study, we have prepared ideal interaction-free magnetite nanoparticle system by coating magnetite particles with silica of enough shell thicknesses and measured their magnetic properties to clarify the true magnetic anisotropy of individual magnetite nanoparticles.

### Experimental

First, magnetite particles with average diameters of 7.8 nm and 13.1 nm were synthesized. Then, these magnetite particles were coated with silica shell of thicknesses 20.8 and 28.9 nm, respectively. In the first-order reversal curve (FORC) diagrams (Fig. 1), we can find that interaction field disappears with coating. In other words, the magnetite nanoparticles are magnetically isolated by the silica-shell. This fact can be confirmed by the proportional relationship between isothermal remanent magnetization and DC demagnetization remanence.

### Results and discussion

Using these well-isolated magnetite nanoparticles, the magnetic measurements yield intriguing information as follows: (A) Remanent magnetization from the magnetic saturation is just equal to a half of the saturation magnetization, and magnetization curves can be explained as the superimposition of Stoner-Wohlfarth hysteresis loops considering the switching field distribution derived from the remanence analysis. These results clearly indicates that uniaxial magnetic anisotropy is predominant in the individual magnetite nanoparticles in spite of the cubic symmetry of their crystal. (B) Blocking temperature distributions calculated from thermal decay curves of isothermal remanent magnetization at various applied fields show that the coercivity significantly varies even for the same size, although their mean value becomes higher when the size is smaller. These results indicate that the magnetic anisotropy is not only correlated with the surface/volume ratio, but also considerably affected by the other factors such as crystallinity, lattice strain, or particle shape. Further discussion will also be reported.

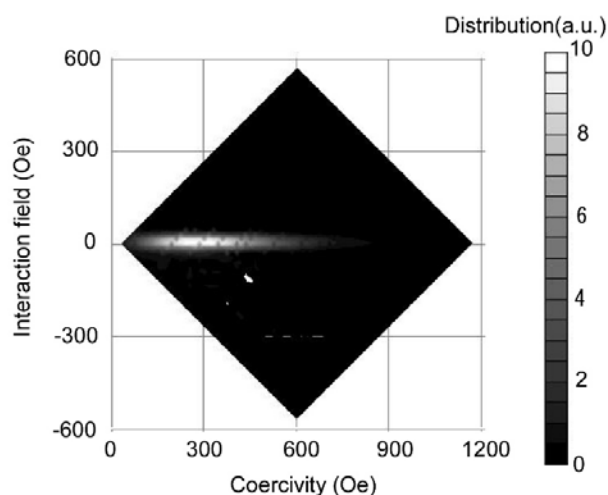


Fig. 1 FORC diagram for magnetite particles of 13.1 nm.

# Mn フェライト微粒子の作製と磁気特性評価

重澤遼、Hawa Latiff、岸本幹雄、喜多英治、柳原英人、  
(筑波大学数理物質科学研究科)

Synthesis and characterization of magnetic property of Mn ferrite nanoparticles

R. Shigesawa, H. Latiff, M. Kishimoto, E. Kita, and H. Yanagihara  
(Institute of Applied Physics, Univ. of Tsukuba)

## はじめに

スピネル構造の Co フェライト薄膜は、格子不整合等による正方歪みにより大きな垂直磁気異方性を示すことが知られている[1]。したがって正方歪みを導入したままバルク化できれば、新規な永久磁石材料となる可能性が開ける。そこで我々は微粒子化した Co フェライトに正方歪みを導入する手法の一つとして、ヤーン・テラー(JT)効果に着目した。JT イオンである  $\text{Cu}^{2+}$  をスピネルフェライトの B サイトの  $\text{Co}^{2+}$  と共存させることで、 $(\text{Cu},\text{Co})\text{Fe}_2\text{O}_4$  微粒子に正方歪みを導入し、保磁力が増大することを確認した[2]。しかし、 $\text{Cu}^{2+}$  イオンは、 $1\mu_{\text{B}}$  の磁気モーメントしか持たないため、飽和磁化が小さく永久磁石材料として適当でない。これを改善するために  $\text{Mn}^{3+}(4\mu_{\text{B}})$  を JT イオンとして導入することを目指し、最初のステップとして Mn フェライト単相の合成条件と、結晶構造制御について検討した。

## 実験方法

試料は  $\text{Mn}^{2+}$ 、 $\text{Fe}^{3+}$  イオン水溶液に NaOH 水溶液を投入し、難溶性塩として沈殿させる共沈法を用いて合成した。沈殿物として生成した Mn フェライト微粒子は、水熱法によって適切な粒径に粒成長させた後に水洗し、 $\text{pH}=7$  に調整した。 $\text{Mn}^{2+}$  と  $\text{Fe}^{3+}$  の仕込み量  $n = \text{Mn}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$  を変化させ、 $n=0.5, 0.67, 1, 1.3$  となる試料を作製した。試料評価方法には、透過型電子顕微鏡(TEM)での粒子形状観察、X 線回折(XRD)による結晶構造解析、振動試料型磁束計(VSM)を用いた室温における最大印加磁場 8 kOe での磁化測定を行った。

## 結果

Fig. 1 は  $n=0.5, 0.67, 1.0, 1.3$  での XRD パターンである。いずれの組成でも主相として立方晶スピネルの回折線が観測された。特に  $n=0.67, 1.3$  の組成では単相の試料が得られたことが示唆された。一方、 $n=0.5$  の組成では  $\text{Fe}^{3+}$  と  $\text{Mn}^{3+}$  を含むコランダム構造の酸化物、 $n=1$  で立方晶スピネルの  $\text{Mn}_3\text{O}_4$  が微量に析出した。Fig. 2 にそれぞれの  $n$  での磁化曲線を示す。立方晶スピネル単相が生成されている  $n=0.67$  の試料では、 $70 \text{ emu/g}$  程度の飽和磁化を示した。これは Mn フェライトの飽和磁化の概算値である  $117.5 \text{ emu/g}$  よりも小さな値であるが、いくつかの先行研究の値と同等かそれ以上であった[3][4]。講演では結晶構造と Mn の酸化数の制御に関する詳細な実験結果を報告する。

## 参考文献

- 1) T. Niizeki *et al.*, Appl. Phys. Lett, 103 162407 (2013).
- 2) H. Latiff *et al.*, IEEE Trans. Magn, accepted April 2017.
- 3) P. Iranmanesh *et al.*, J. Magn. Magn. Mater, 425 31-36 (2017).
- 4) Y. Köseoğlu *et al.*, Ceram. Int, 38 3625-3634 (2012).

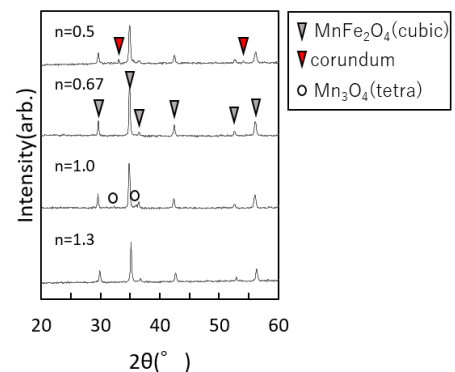


Fig. 1 XRD patterns of samples with  $n=0.5, 0.67, 1.0, 1.3$ .

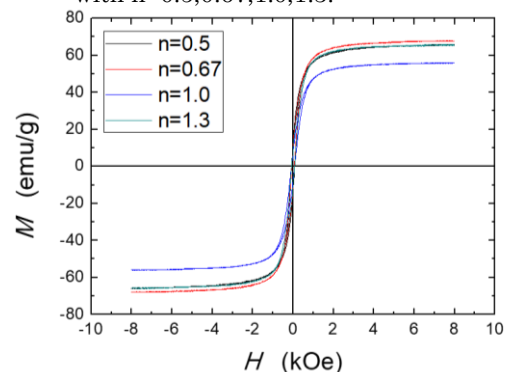


Fig. 2 MH loops for  $n=0.5, 0.67, 1.0, 1.3$ .

# SiO<sub>2</sub>で表面被覆した $\alpha''$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> ナノ粒子の回転ヒステリシス損失解析

○飛世 正博, 斉藤 伸 (東北大学)

Rotational hysteresis loss analysis for SiO<sub>2</sub> coated  $\alpha''$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> nanoparticles  
Masahiro Tobise, and Shin Saito (Tohoku University)

## はじめに

窒素侵入型化合物  $\alpha''$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> は約 226 emu/g の飽和磁化と  $9.6 \times 10^6$  erg/cm<sup>3</sup> 以上の一軸結晶磁気異方性エネルギーを有することから、ハードあるいはセミハード磁性材料としての応用が期待されている<sup>1)</sup>。講演者らは酸化鉄や水酸化鉄を還元した Fe 粒子を窒化することによって  $\alpha''$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> 粒子を合成するプロセスにおいて、出発原料やプロセス条件による  $\alpha''$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> 粒子の形態変化、およびそれらが磁気特性に与える影響について一連の研究を行っている<sup>2)</sup>。課題は  $\alpha''$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> ナノ粒子の異方性磁界を高めるとともに、集合体中での粒子間に働く磁氣的相互作用を低減させて保磁力を向上させることである。Fe 系ナノ粒子では、酸化部や充填率の影響で体積を正確に評価することが困難であることから、ナノ粒子の回転ヒステリシス損失(磁界を正回転、負回転させた際に得られる磁気トルク曲線の差)を測定することによって種々の特性磁界を場の次元で評価することが適切であろうと考えている。今回、粒子間の磁氣的相互作用を低減するために、 $\alpha''$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> ナノ粒子表面に SiO<sub>2</sub> を被覆し、トルクメータを用いた回転ヒステリシス損失解析によって種々の特性磁界を評価したので報告する。

## 実験方法

出発原料には Nanotek 社製の球状  $\gamma$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ナノ粒子を用いた。300~380 °C で水素中 2 時間の還元処理、引き続き 135~170 °C でアンモニアガス中 4 時間の窒化処理を行った。次に TEOS (Tetraethyl orthosilicate) を用いて攪拌しながら反応させ  $\alpha''$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> ナノ粒子表面に SiO<sub>2</sub> を被覆させた。SiO<sub>2</sub> の厚さは TEOS 量および反応時間を変えて制御した。回転ヒステリシス損失  $W_r$  が 0 となる磁界  $H_{Wr=0}$ 、 $W_r$  が最大となる磁界  $H_p$  を磁気トルクメータで、 $H_c$  を VSM で測定した。

## 実験結果

Fig. 1 に SiO<sub>2</sub> で被覆された  $\alpha''$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> ナノ粒子の TEM 像を示した。被覆層の平均厚さは TEM 像から求めた。Fig. 2 に  $\gamma$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ナノ粒子を出発原料として SiO<sub>2</sub> 被覆層の厚さを変えて作製した  $\alpha''$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> ナノ粒子の  $H_{Wr=0}$ 、 $H_p$ 、 $H_c$ 、および  $H_p/H_{Wr=0}$  の変化を示した。5nm 以上の SiO<sub>2</sub> で被覆することにより  $H_{Wr=0}$  は 12.4 kOe から 11.5 kOe 程度に低下した。 $H_c$  は 2050 Oe から 2300 Oe 程度に、 $H_p$  は 3700 Oe から 4200 Oe 程度に高くなった。 $H_p/H_{Wr=0}$  は、0.30 から 0.37 程度となり、磁氣的相互作用がない場合の理論計算値 0.51 の 60% から 76% まで向上した。SiO<sub>2</sub> で被覆することにより磁性粒子の孤立性は高まったと考えられる。

参考文献 1) R. Skomski and J. M. D. Coey, *Scripta Mater.*, **112** (2016) 3. 2) M. Tobise, T. Ogawa, and S. Saito, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **41** (2017) 58.

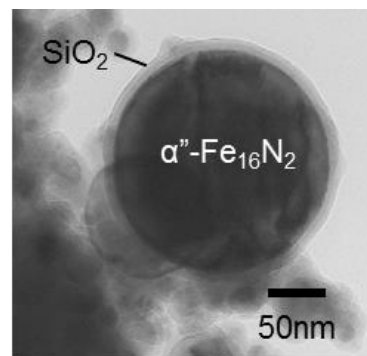


Fig. 1 TEM image of  $\alpha''$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> nanoparticles coated with SiO<sub>2</sub>

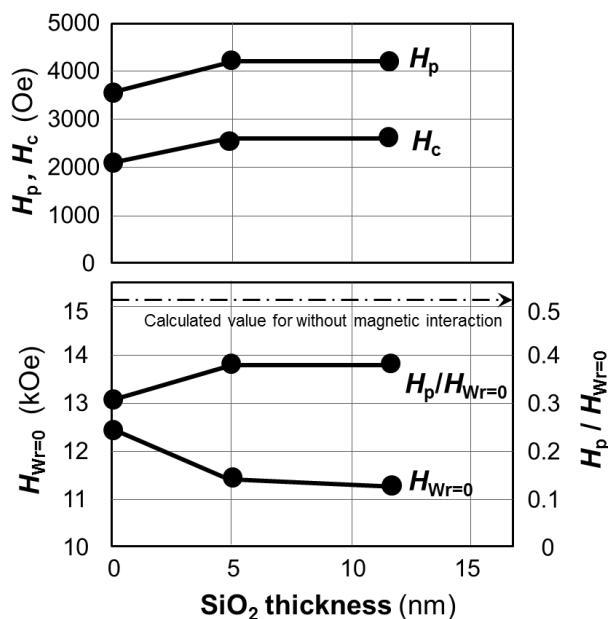


Fig. 2  $H_{Wr=0}$ ,  $H_p$  and  $H_p/H_{Wr=0}$  changes as a function of SiO<sub>2</sub> thickness.

# 外部磁界と外部電界を用いた窒化鉄ナノ粒子柱状集合体の作製と その静的・動的磁気特性

○小川智之<sup>1,2</sup>、本波優介<sup>1</sup>、遠藤恭<sup>1</sup>

(<sup>1</sup> 東北大院工、<sup>2</sup> 東北大 RaMGI)

Columnar-structured assembly of iron-nitride nanoparticles fabricated by external magnetic and electric fields and its static and dynamic magnetic properties

○T. Ogawa<sup>1,2</sup>, Y. Honnami<sup>1</sup>, Y. Endo<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Eng., <sup>2</sup>RaMGI, Tohoku Univ.)

## はじめに

我々は、磁性ナノ粒子集合体を GHz 帯域で駆動させるひとつの手法として、高飽和磁化ナノ粒子を一方に並べることで集合体中の内部磁界を揃え形状異方性を付与することを提案している<sup>1)</sup>。これまで、純鉄ナノ粒子を用いて外部磁界を印加しながら母材を固化することで柱状集合体を実現してきた。しかし、この手法ではナノ粒子の配列が不十分・不均一であった。そこで、本研究では、高飽和磁化ナノ粒子として窒化鉄 ( $\alpha''$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub>) ナノ粒子を用い、更に、外部磁界と同時に外部電界を印加することで、粒子配列と同時に母材料の配列を促し柱状集合体形状の積極制御を試みた。また、得られた集合体の反磁界係数および高周波磁気特性の評価を通して、GHz 帯域駆動の検証を行った。

## 実験方法

合成した  $\alpha''$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> ナノ粒子と液状エポキシ系樹脂を混合しテフロンチューブに詰めた後、磁気回路中で DC 磁界 ( $H_{\text{fix}} = 4.5 \text{ kOe}$ ) とそれに平行して DC 電界 ( $E_{\text{fix}} = 50 \text{ V/cm} \sim 8 \text{ kV/cm}$ ) を印加しながら 100°C に加熱して樹脂を固めて集合体とした。試料振動型磁力計 (VSM)、および、面内高周波プローバを用いて、得られた集合体の静的・動的特性を評価した。

## 実験結果

作製した円盤状試料の各方向 (x, y, z) の磁化曲線から算出した反磁界係数を用いて得られる面内形状異方性指数  $m (=N_y/N_x)$  の充填率依存性を Fig.1 に示す。これより、今回用いた低粘性のエポキシ樹脂の適用と外部磁界に加え外部電界を同時印加することにより、 $m$  は最大で 35 程度まで大きくなり、これは窒化鉄ナノ粒子集合体の柱状構造が促進していることを示唆する。Fig.2 に、S パラメータの  $S_{11}$  実数成分の周波数依存性を示す。図中矢印で示すスペクトルの極大位置は強磁性共鳴周波数を示し、 $m$  が 16 から 30 まで増加するとともに、11.7GHz から 19.1GHz まで増大していることが分かった。これは窒化鉄ナノ粒子集合体の柱状構造の促進により集合体中の内部磁界が大きくなり、結果として、高周波駆動化に繋がったものと考えられる。

## 参考文献

- 1) 小川智之、まぐね **12**, No. 3, 115 (2017).

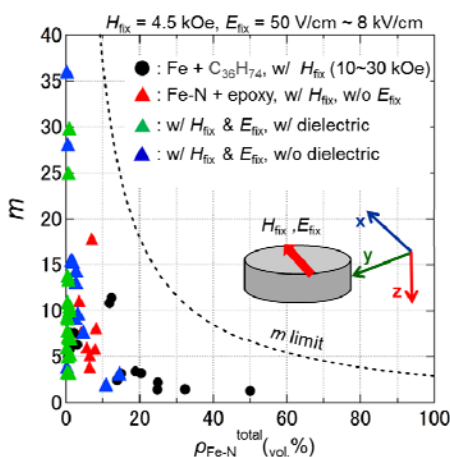


Fig.1  $m$  v.s.  $\rho_{\text{Fe-N}}^{\text{total}}$  for Fe-N assemblies fabricated by w/  $H_{\text{fix}}$  and w/ or w/o  $E_{\text{fix}}$ .

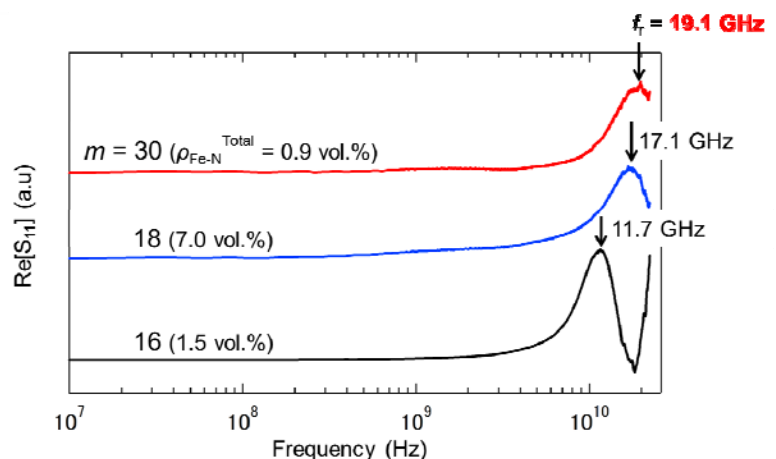


Fig.2 Frequency dependence of real part of  $S_{11}$  for Fe-N columnar structured assemblies with different  $m$ .

## Development of Mn-based novel magnetic materials through lattice engineering

T. Shima<sup>1</sup>, M. Doi<sup>1</sup>, H. Okada<sup>1</sup>, M. Tsujikawa<sup>2,3</sup>, M. Shirai<sup>2,3</sup>

<sup>1</sup> Faculty of Engineering, Tohoku Gakuin University, Tagajo 985-8537, Japan

<sup>2</sup> Research Institute of Electrical Communication, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan

<sup>3</sup> Center for Spintronics Research Network, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan

High performance rare earth based permanent magnets have been used widely as a magnetomotive force in applications such as motors, actuators and sensors for Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B alloy's large magnetocrystalline anisotropy ( $K_{u1} = 4.5 \times 10^6 \text{ J/m}^3$  at room temperature) and relatively high magnetization ( $M_s = 1.6\text{T}$ ). Recently, the consumption of Nd-Fe-B sintered magnets has increased due to the utilization for hybrid, plug-in hybrid and electric vehicles (HV's, PHEV's and EV's). However, due to the scarce natural resource of key elements such as Dy and Tb, a lot of efforts have been done to find another permanent magnet materials instead of rare earth based alloys. One of the candidate materials is Mn-based alloys. The binary Heusler-like compounds Mn<sub>x</sub>Ga ( $x = 2\sim 3$ ) have attracted much attention due to its high Curie temperature and large magnetic anisotropy<sup>1,2)</sup>. However, as shown in Fig. 1, for Mn compositions of  $x = 2\sim 3$ , the tetragonal D0<sub>22</sub> structure possesses ferrimagnetic property, and consequently it demonstrates a low saturation magnetization. Recent studies revealed that Mn<sub>x</sub>Ga alloy with the D0<sub>22</sub> structure demonstrated large coercivities<sup>3,4)</sup> in exceeding 2 T at room temperature, this arise from a large magnetocrystalline anisotropy ( $K \sim 10 \text{ Merg/cm}^3$ ). Such high magnetocrystalline anisotropy makes Mn<sub>x</sub>Ga alloy possible alternative to rare earth and noble metal based magnets in future permanent magnet applications. In this talk, in addition to the theoretical prediction, our recent activities of the lattice engineering on the preparation and evaluation of the bulk and film samples<sup>5,6)</sup> for D0<sub>22</sub> and L1<sub>0</sub> structure of Mn<sub>x</sub>(Ga, Ge) alloys with the addition of third elements will be introduced.

Mn-based bulk alloys have been prepared by arc melting in an argon gas atmosphere. All samples were re-melted at eight times to perform homogenization. The samples were powdered by diamond file or grinding in an agate. Then, the powders have been vacuum sealing in a quartz tube and annealed from 350°C to 550°C at Muffle furnace. For the preparation of film samples, MgO(100) single crystal substrates were selected and they were prepared using an ultra-high vacuum (UHV) electron beam evaporation system or UHV sputtering system. The substrate was heated to  $T_s = 300 \text{ }^\circ\text{C}$  during the deposition and they were annealed at 300 ~ 500 °C. The crystal and surface structures were investigated by XRD and AFM. Composition of samples was analyzed by EDX. Magnetic properties were measured by using a SQUID or PPMS-VSM, and  $M_s$  and  $K_u$  for each thin film were evaluated from magnetization curves.

### Reference

- 1) H. Niida, T. Hori, H. Onodera, Y. Yamaguchi, and Y. Nakagawa, J. Appl. Phys. **79**, 5946 (1996).
- 2) J. Winterlik, B. Balke, G. H. Fecher, and C. Felser, M. C. M. Alves, F. Bernardi, and J. Morais, Phys. Rev. B **77**, 054406 (2008).
- 3) F. Wu, S. Mizukami, D. Watanabe, H. Naganuma, M. Oogane, Y. Ando, and T. Miyazaki, Appl. Phys. Lett. **94**, 122503 (2009).
- 4) H. Kurt, K. Rode, M. Venkatesan, P. Stamenov, and J. M. D. Coey, Phys. Rev. B **83**, 020405 (2011).
- 5) Y. Takahashi, H. Makuta, T. Shima and M. Doi, T. Magn. Soc. Japan, **1**, 30-33 (2017).
- 6) H. Makuta, Y. Takahashi, T. Shima and M. Doi, T. Magn. Soc. Japan, **1**, 26-29 (2017).

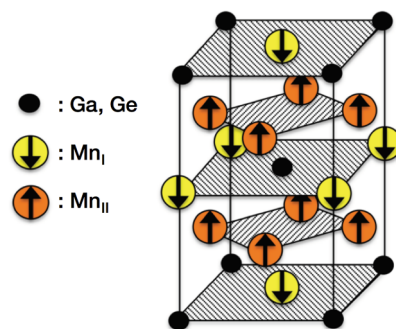


Fig. 1 Crystal structure of D0<sub>22</sub>-type Mn<sub>3</sub>(Ga, Ge) ordered alloy (magnetic structure).

## Strain-induced magnetic anisotropy in spinel ferrites

Hideto Yanagihara<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Institute for Applied Physics, Univ. of Tsukuba, Tsukuba, 805-8573, Japan

Magnetic anisotropy is one of the more important properties of magnetic materials. Since the magnetic anisotropy arises from spin-orbit interaction accompanying local/global symmetry reduction, both the anisotropy energy and sign can be controlled by a relatively slight perturbation such as lattice strain. Because of their large spin-orbit interaction, most magnetic materials exhibiting large magnetic anisotropy energy contain heavy metals or rare earth elements such as palladium, platinum, bismuth, neodymium samarium and so on.

Among some 3*d*-transition metal oxides with degeneracy arising from their peculiar electron configuration in the *t*<sub>2g</sub> states, orbital momentum of  $\sim 1 \mu_B$  is seen on the 3*d* ions. If the relatively large orbital momentum couples with the spin momentum, a large magnetic anisotropy can emerge even in the absence of rare metals. In fact, some spinel ferrites containing Co<sup>2+</sup> ions have been known to show large anisotropy as well as high coercivity<sup>1</sup>. The crystal field for Co<sup>2+</sup> ions in a bulk cobalt ferrite is primarily cubic because of the Co<sup>2+</sup> ions being located at the octahedral sites (B-sites). Moreover, since the B-site cations of the second nearest neighbor form a trigonal crystal field, the *t*<sub>2g</sub> electron configuration of the Co<sup>2+</sup> ions is split into a single lowest level and two degenerate levels. Since the single electron occupying the doubly degenerate states has  $\sim 1 \mu_B$ , it therefore exhibits a large cubic magnetic anisotropy  $K_1$  as well as magnetization enhancement<sup>2,3</sup>.

When cobalt ferrite is grown as epitaxially strained thin films, the films undergo compressive/tensile stress depending on the lattice misfit between the cobalt ferrite and the substrate. The induced uniaxial magnetic anisotropy  $K_u$  from the uniaxial strain (or tetragonal distortion) can be understood by a phenomenological treatment within the framework of the magnetoelastic effect. The induced  $K_u$  is also interpreted by an electronic model as equivalent to  $K_1$  of the bulk cobalt ferrite<sup>4</sup>. Since the tetragonal distortion also splits the *t*<sub>2g</sub> electron configuration of Co<sup>2+</sup> into a single lowest level and double degenerate levels like in the bulk case, a significantly large  $K_u$  is induced. The epitaxial films of cobalt ferrite grown on a square lattice such as the surface of MgO(001)(tensile stress) and MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>(001)(compressive stress) are tetragonally distorted and consequently show  $K_u$ . If the induced  $K_u$  is greater than the demagnetization energy of  $2\pi M_s^2 \sim 1.0 \text{ Merg/cm}^3$ , the film exhibits perpendicular magnetization. Practically, we have demonstrated that a high-quality epitaxial film of Co<sub>0.75</sub>Fe<sub>2.25</sub>O<sub>4</sub>(001)/MgO(001) exhibits  $K_u$  as large as  $10.0 \text{ Merg/cm}^3$ .<sup>5</sup>

Thus, in order to develop new candidate materials for permanent magnets, it seems to be a promising strategy to intentionally induce a lattice strain in spinel ferrites containing Co<sup>2+</sup> ions. According to the phenomenological model, a larger distortion produces a higher magnetic anisotropy in a linear relationship. However, this picture is valid only for a small distortion. To evaluate the potential of cobalt ferrite as a large magnetic anisotropy material, it is worth investigating how we can apply epitaxial strain and induce a large  $K_u$ . Moreover, by introducing a large lattice distortion into the bulk or particles of cobalt-based spinel ferrite, this magnetic compound may become a new candidate material of the rare-earth free magnet. In this presentation, we will show our attempts to enhance the magnetic anisotropy of cobalt ferrite in both film- and particle-forms.

Epitaxial films of Co<sub>0.75</sub>Fe<sub>2.25</sub>O<sub>4</sub>(001) were grown by reactive magnetron sputtering with an alloy target. In order to induce a large lattice distortion into the films, we investigated many different oxide substrates and buffer layers. We found that the inverse spinel of Mg<sub>2</sub>SnO<sub>4</sub>(001) is appropriate as a buffer layer with a large lattice misfit and that a 10-nm-thick Co<sub>0.75</sub>Fe<sub>2.25</sub>O<sub>4</sub>(001) film grown on Mg<sub>2</sub>SnO<sub>4</sub>(001) exhibits  $K_u$  larger than  $25.0 \text{ Merg/cm}^3$ . To our knowledge, this is the largest  $K_u$  ever reported in a spinel ferrite thin film. Although the lattice misfit is as large as  $\sim 3.1\%$ , the induced  $K_u$  can be quantitatively explained by the magnetoelastic theory.

Since lattice strain of several percent effectively induces large  $K_u$  in cobalt ferrite, we attempted to spontaneously distort the spinel ferrite particles via the Jahn-Teller effect. Jahn-Teller ions such as Cu<sup>2+</sup> were chosen on a trial basis though expected saturation magnetization for this compound is small. (Cu, Co)Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> particles were prepared by coprecipitation method followed by flux treatment of KBr. After the flux treatment, (Cu, Co)Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> with a cubic spinel was obtained. Post annealing process in the atmosphere facilitated the crystal structure transformation from cubic to tetragonal. Although the magnetization curve of Co<sub>0.1</sub>Cu<sub>0.9</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> particles grown before the post annealing process shows coercivity as small as

300 Oe, after annealing 2200 Oe of coercivity was observed, reflecting the induced tetragonal distortion. All the experimental results indicate that Jahn-Teller ions definitely induce local/global distortion into the spinel structure and the distortion increases the magnetic anisotropy through the locally distorted crystal field of the  $\text{Co}^{2+}$  ions.

#### References

<sup>1</sup> S. Chikazumi, *Physics of Ferromagnetism* (Wiley, 1964).

<sup>2</sup> J.C. Slonczewski, *Phys. Rev.* **110**, 1341 (1958).

<sup>3</sup> J.C. Slonczewski, *J. Appl. Phys.* **32**, S253 (1961).

<sup>4</sup> J. Inoue, T. Niizeki, H. Yanagihara, H. Itoh, and E. Kita, *AIP Adv.* **4**, 27111 (2014).

<sup>5</sup> T. Niizeki, Y. Utsumi, R. Aoyama, H. Yanagihara, J. Inoue, Y. Yamasaki, H. Nakao, K. Koike, and E. Kita, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 162407 (2013).

## Recent progress and future development of synchrotron X-ray analysis of high-performance permanent magnets

T. Nakamura<sup>\*</sup>, Y. Matsuura<sup>\*\*</sup>, R. Tamura<sup>\*\*\*</sup>, K. Sumitani, K. Kajiwara, K. Toyoki, D. Billington, H. Okazaki, Y. Kotani, and S. Hirosawa<sup>\*</sup>  
(JASRI, <sup>\*</sup>ESICMM/NIMS, <sup>\*\*</sup>RIAS, <sup>\*\*\*</sup>Tokyo Univ. of Sci.)

Studies of the magnetization reversal process provide a key clue in uncovering the coercivity mechanism of permanent magnets. The magnetic domain structure inside a magnet forms a three-dimensional network in which one magnetic domain couples with its neighboring ones which have opposite directions of magnetization and are separated by inter- and intra-grain magnetic domain walls. When the magnetization is saturated by an external magnetic field that is sufficiently larger than the magnetic anisotropy field, the magnetic domain structure vanishes. Therefore, a clear-cut aim of studying the magnetization reversal process is to understand how the reversed magnetic domains are initially nucleated as the external magnetic field decreases and how the magnetic domain structure changes with other nucleation events and/or magnetic-domain-wall displacements.

Since their invention in 1984 [1], Nd-Fe-B magnets have been the best permanent magnets and have become an indispensable material for various electric products, hybrid vehicles, and power generators, which are now key technologies for energy sustainability. In the case of Nd-Fe-B sintered magnets, it is known that the coercivity in a polished surface is rather moderate in comparison to that of the bulk [2]. In stark contrast to the significantly decreased coercivity of the polished surface, we presented that the coercivity of the fractured surface closely resembles that of the bulk in a previous study [3]. The higher coercivity of the fractured surface is attributed to the particular way in which Nd-Fe-B sintered magnets fracture, where the majority of the fractured surface remains covered with a thin layer of the grain boundary phase. Although the similarity between the fractured surface and bulk coercivities cry out for magnetic domain observations of the fractured surface, conventional magnetic domain observations using Kerr microscopy, magnetic force microscopy, and photoelectron emission microscopy, have only been conducted on polished surfaces or thin films.

In order to observe the magnetic domain structure in the fractured surface under various magnetic fields, we developed a scanning soft X-ray spectromicroscope equipped with a superconducting magnet with a maximum magnetic field of  $\pm 8$  T. When used in combination with X-ray photons of opposite helicity, and total-electron-yield detection, magnetic domain observations of the fractured surface become possible. Fig.1 shows the magnetic domain structure of the fractured surface of a Dy-free Nd-Fe-B sintered magnet (with composition  $\text{Nd}_{14.0}\text{Fe}_{79.7}\text{Cu}_{0.1}\text{B}_{6.2}$ ) at an applied magnetic field of  $-0.7$  T (after almost saturating the magnet at  $+3.0$  T). In the figure, both the microstructure and the magnetic domain contrast are clearly observed. The magnetic field dependence of the magnetic domains has shown that the precise location in which reversed domains

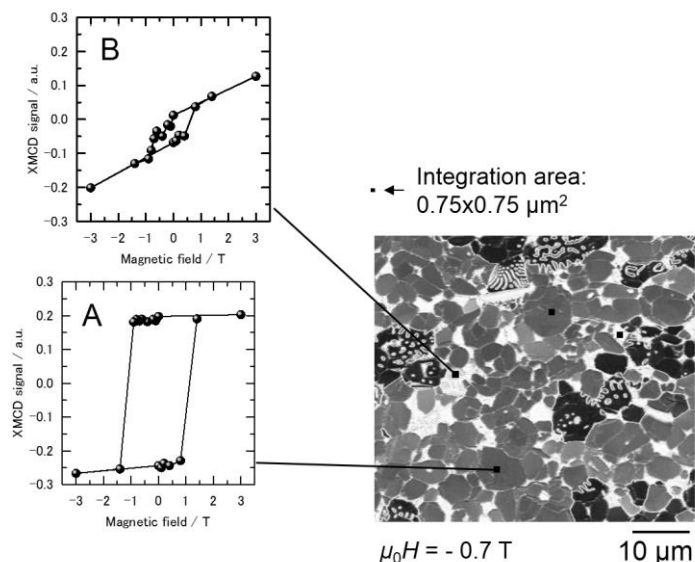


Fig.1 Magnetic domain structure of a Nd-Fe-B sintered magnet under an applied magnetic field of  $-0.7$  T (right). Magnetic field dependence of XMCD intensity, A and B, give the local magnetic hysteresis loops in the selected grains.



are initially generated is always identical, and independent of whether the magnetic field is increased or decreased. Further analysis has allowed us to characterize the local magnetic hysteresis (MH) loops for areas  $\sim 100 \text{ nm}^2$ . The observed local MH loops show a wide variety of magnetization reversal characteristics depending on the particular grain. As an example, we have plotted the MH loops for two different grains in Fig.1, labeled A and B, whose magnetization reversal characteristics are rather different. The observed differences between grains suggest that the magnetization reversal of each grain is very sensitive to the local effective magnetic field.

To understand the variety of local MH curves observed, we need to understand the local effective magnetic field. Prohibitively, the local effective magnetic field is very difficult to determine because it depends upon the stray magnetic field from the surrounding magnetic grains, which in-turn depends on the precise orientation of each grain, together with their intrinsic coercivity and the exchange coupling with the grains in the sub-surface layers. Unfortunately, the angle of the easy magnetic ( $c$ -)axis between each  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  grain and the intended direction cannot be estimated from the local MH curves. Generally, the electron back-scatter diffraction (EBSD) technique is the most popular method to analyze the grain orientation. However, EBSD cannot be applied to the irregular fractured surface of our sample (which is the favorable target for magnetic domain observations). Therefore, we are developing a scanning X-ray micro-diffraction (SXMD) instrument which can probe any surface, independent of their roughness and irregularity. Moreover, the SXMD has a much longer probing depth than that of EBSD meaning that it is not necessary to worry about the surface state of the target sample, which makes sample preparation much easier. Fig. 2 shows a 3D schematic diagram of the SXMD apparatus under development at SPring-8.

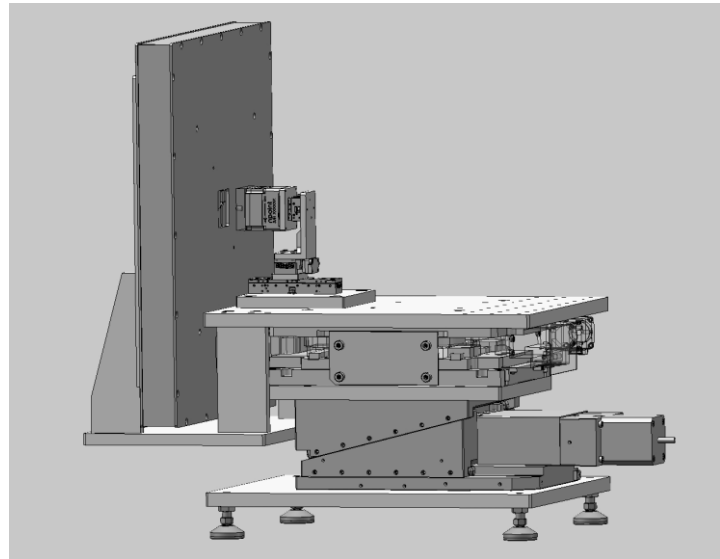


Fig.2 3D schematic diagram of the scanning X-ray micro-diffraction apparatus under development at SPring-8.

In this presentation, I will discuss our research involving the use of synchrotron X-ray diffraction to investigate the crystalline phases that constitute the microstructure, and scanning soft X-ray spectromicroscopy techniques to directly observe magnetization reversal process in Nd-Fe-B sintered magnets. I will also describe the progress made in the development of the scanning X-ray micro-diffraction instrument.

### Acknowledgements

The authors are grateful to Dr. Nishiuchi of Hitachi Metal Ltd. for providing the Nd-Fe-B sintered magnet samples for the synchrotron experiments. Part of this work is supported by the Elements Strategy Initiative Center for Magnetic Materials under the outsourcing project of MEXT, and the Japan Science and Technology (JST) Agency, Collaborative Research Based on Industrial Demand (No.20110111).

### References

- [1] M. Sagawa, S. Fujimura, N. Togawa, H. Hashimoto, and Y. Matsuura, *J. Appl. Phys.* **55**, 2083 (1984).
- [2] K. Kobayashi, M. Nakamura, and K. Urushibata, *J. Appl. Phys.* **117**, 173909 (2015).
- [3] T. Nakamura, A. Yasui, Y. Kotani, T. Fukagawa, T. Nishiuchi, H. Iwai, T. Akiya, T. Ohkubo, Y. Gohda, K. Hono, and S. Hirose, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 202404 (2014).

## High-throughput experiment of X-ray magnetic circular dichroism spectroscopy with machine learning

T. Ueno<sup>1</sup>, H. Hino<sup>2</sup>, A. Hashimoto<sup>3</sup>, Y. Takeichi<sup>3</sup>, and K. Ono<sup>3</sup>

<sup>1</sup>National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology, Sayo 679-5148, Japan

<sup>2</sup>University of Tsukuba, Tsukuba 305-8571, Japan

<sup>3</sup>High Energy Accelerator Research Organization, Tsukuba 305-0801, Japan

X-ray magnetic circular dichroism (XMCD) spectroscopy is a powerful experimental technique to directly probe electronic states and magnetic moments of magnetic materials. Recently, by combining XMCD with X-ray microscopy, it has been able to visualize magnetic domains and conduct spectroscopy experiment in several ten nanometers scale [1]. This method is useful because a specimen with the size of only several square micrometers can be measured. Therefore, one does not need to prepare large single crystal samples. The method is also useful for heterogeneous systems such as microstructures in permanent magnet materials. However, one must scan large area (several  $10 \mu\text{m}^2$ ) with fine steps for an application to heterogeneous systems. In the present experimental system [2], typical measurement time is about 2 hours for an area of  $\sim 10 \mu\text{m}^2$  with 200 energy points. To reduce the measurement time, we examined reduction of the total measurement energy points with a machine learning approach. Gaussian process (GP) modeling [3] was applied to predict an XMCD spectrum from an experimental spectrum with limited energy points.

XMCD spectroscopy experiment was performed at the BL-13A of the Photon Factory, KEK, Japan. Sm  $M_{4,5}$  X-ray absorption spectrum (XAS) and XMCD spectrum were measured for an  $\text{SmCo}_5$  specimen. X-ray energy was scanned around the Sm  $M_{4,5}$  edges with a total energy points of 216. GP modeling was performed to predict XAS and XMCD spectra by following way. First, initial 30 data points are sampled with equal separation along the energy axis. GP modeling predicts a spectrum with input of experimental data points. Next sampling point is determined by several methods. After the sampling, a spectrum is predicted again. Orbital and spin magnetic moments, and their ratio were evaluated for each prediction by using magneto-optical sum rules. Measurement is stopped with the convergence of magnetic moments.

We tried three methods to determine next sampling point; (1) energy point with maximum variance of the predicted spectrum, (2) random sampling, and (3) random sampling weighted by maximum variance. Orbital magnetic moment evaluated from predicted spectra converges to reference value in total data points of about 40 points by sampling with maximum variance. Other sampling methods need more data points to converge to reference value. Maximum variance sampling was revealed to be better than other sampling methods in GP modeling of XAS and XMCD spectra. Therefore, total measurement data points are reduced to 1/5 by GP modeling as compared to conventional method [4].

In conclusion, we demonstrated the reduction of the total measurement energy points of XMCD spectra with a machine learning approach. This method enhances efficiency of XMCD spectroscopy experiment.

### Reference

- [1] T. Ueno, A. Hashimoto, Y. Takeichi, and K. Ono, *AIP Advances* **7**, 056804 (2017).
- [2] Y. Takeichi *et al.*, *Rev. Sci. Instrum.*, **87**, 013704 (2016).
- [3] C. E. Rasmussen and C. K. I. Williams, *Gaussian Processes for Machine Learning*, MIT Press (2006).
- [4] T. Ueno, H. Hino, A. Hashimoto, Y. Takeichi, and K. Ono, *INTERMAG2017*, GE-07, Dublin, Ireland (2017).

## 中性子小角散乱によるサイズ分解FORC測定

斉藤耕太郎, 上野哲朗\*, 伊東正朗\*\*, 矢野正雄\*\*, 庄司哲也\*\*, Zhendong Fu\*\*\*, Vitaliy Pipich\*\*\*, 小野寛太  
(高エネ研, \*物材機構, \*\*トヨタ自動車, \*\*\*ユーリッヒ中性子科学センター)

Size-resolved FORC measurements using Small Angle Neutron Scattering  
K. Saito, T. Ueno\*, M. Ito\*\*, M. Yano\*\*, T. Shoji\*\*, Z. Fu\*\*\*, V. Pipich\*\*\*, K. Ono  
(KEK, \*NIMS, \*\*TOYOTA Motor Corp., \*\*\*JCNS)

### はじめに

FORC測定はメインループの $M_s$ ,  $M_r$ ,  $H_c$ 角型にしか関心を持っていなかった永久磁石研究に新たな視点をもたらす可能性を持つが、まだ永久磁石材料のFORC図の解釈は発展途上である。磁化反転には反転核形成、磁壁移動、単一粒子反転などスケールの異なる現象が含まれ、これらの作用は全て磁化変化を伴うため理論的にはFORCでも観測できるはずである。しかし、磁化曲線に還元された複数の現象を復元するのは本質的に困難である。中性子小角散乱はバルク試料内部でのスケールの異なる磁気的現象を調べることのできるユニークな実験手法である。磁化測定によるFORCと同様の磁場変化シーケンスでSANSを測定すれば、サイズ分解されたFORCデータに相当する結果が得られる。これらと磁化曲線に基づくFORC測定と合わせた解釈により磁化反転過程をより明確に理解できると考えられる。

### 実験方法

はDyフリーNdFeB焼結について様々な磁場において大量のSANSを測定し、サイズ分解されたマルチスケールなFORCに相当するデータを得た。測定時間を短縮するためにFORC図に大きな変化がでる磁場領域に限定した。磁場は試料の容易軸方向に印加した。実験はユーリッヒ中性子科学センターの所有するKWS-3にて行った。

### 実験結果

Fig. 1に全測定結果を示す。得られたデータは五つの次元を持つ。FORC測定に必要な二つの磁場パラメータ $H_r$ ,  $H$ とSANSデータが持つ強度 $I$ と散乱ベクトルの向き $\phi$ と大きさ $Q$ である。検出器全体のSANS強度をこの $H_r$ - $H$ 空間でプロットしたのがFig. 2である。保磁力 $H_c$ 相当の磁場を含む、磁化が0になる磁場でSANS強度が強いことがわかる。散乱ベクトルの方向と大きさ別に同様のSANS強度マップを作ると、反転磁区の大きさによって反転の起こる磁場が異なることがはっきりと見え、通常の磁化によるFORC測定で求める二階微分量 $\rho$ を同様に計算するとその差異が明瞭に現れた。このような磁化反転過程における試料内部のスケール別の磁化反転の情報は他の手法では得られない。このことからFORC-like SANSは保磁力機構の解明に貢献すると期待できる。

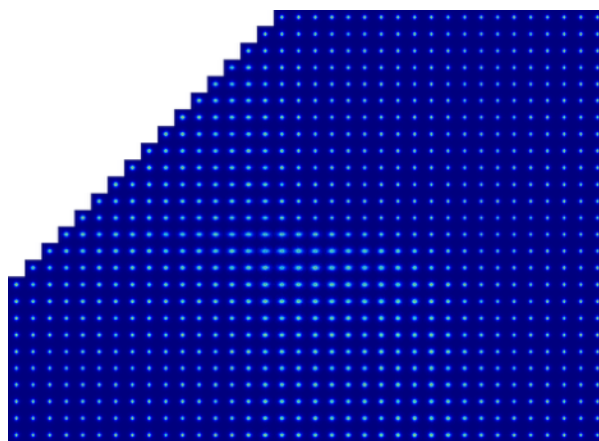


Fig. 1 FORC測定と同様の磁場変化シーケンスによって得られたSANSデータ。軸はFig.2参照。

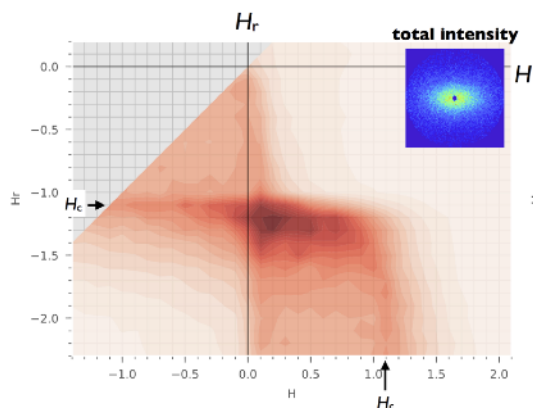


Fig. 2  $H_r$ - $H$ 空間における検出器全体のSANS強度の等高線図。赤の濃い方がカウント数が大きい。

# Development of alternating magnetic force microscopy: Local magnetic domain analysis by advanced magnetic field imaging with high functionalities for high performance magnets

H. Saito<sup>1</sup>, Y. Z. Cao<sup>2</sup>, Y. Zhao<sup>2</sup>, Y. Suzuki<sup>1</sup>, S. Yoshimura<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Graduate School of Engineering Science, Akita University, Akita 010-8502

<sup>2</sup> Center for Regional Revitalization in Research and Education, Akita University, Akita 010-8502

For further development of high performance magnets, magnetic domain observation is important to study the relationship between the nanostructure and hard magnetic properties. To observe the magnetic domain structure of magnets, technique with a wide range of imaging area from nm scale to  $\mu\text{m}$  scale is required for domain boundary and inside parts magnetic grains. Recently, the magnetic domain observation of NdFeB sintered magnets by X-ray magnetic circular dichroism microscopy revealed that the coercivity of magnetic grains on the grain boundary fractured surface was higher than that on a polished surface and was similar to that of the bulk magnet [1]. Therefore, magnetic domain observation of rough fractured surface is highly desired.

Magnetic force microscopy (MFM) is a technique widely used to investigate the fine magnetic domain structure with relatively high spatial resolution. In order to improve the spatial resolution of MFM, decreasing tip-sample distance is quite important. However, conventional MFM has a difficulty to reduce the tip-sample distance because of topography artifacts near sample surface where short-range forces, such as van der Waals force are dominant. To solve the problem, we have developed alternating magnetic force microscopy (A-MFM). This enables near-surface imaging of DC and AC magnetic fields with high spatial resolution of less than 5 nm by using our developed sensitive ferromagnetic tips [2-3]. Here the definition of spatial resolution is the half of the minimum wavelength where MFM magnetic signal reaches white noise level for the A-MFM image. A-MFM utilizes frequency modulation of a cantilever oscillation generated by an off-resonance alternating magnetic force between a magnetic tip and a magnetic sample.

Table 1 shows the characteristics of conventional MFM and A-MFM. The A-MFM has more functionalities than conventional MFM. For detecting DC magnetic field, A-MFM uses AC magnetic field to drive the tip with periodically changing magnetic moment  $M_z^{ac} \cos(\omega_m t)$ . For high performance magnets, it is noteworthy that the tip should not be magnetically saturated by magnetic field from the sample. Therefore,

Table 1. Characteristics of conventional MFM and Alternating MFM.

Characteristic features	Conventional MFM	Alternating MFM
Magnetic field measurement near sample surface	×	○ [All magnetic tips]
Separated detection of magnetic field	×	○ [All magnetic tips] (including short range forces)
Polarity & zero detection of magnetic field	×	○ [All magnetic tips]
Vector magnetic field measurement	×	○ [Soft magnetic tip]
Stroboscopic measurement of AC magnetic field	×	○ [Hard magnetic tip]
Fixed measuring direction of magnetic field	×	○ [Superparamagnetic tip]
Precise magnetic field measurement on rough surface	×	○ [Superparamagnetic tip]
Simultaneous imaging of DC & AC magnetic field (Spectroscopic measurement of magnetic field)	×	○ [Soft magnetic tip] [Superparamagnetic tip]
Spatial resolution (half of the minimum detectable wavelength)	> 10 nm (Necessary for vacuum atmosphere.)	< 5nm (Air atmosphere is OK.) [Soft magnetic tip] [Hard magnetic tip]

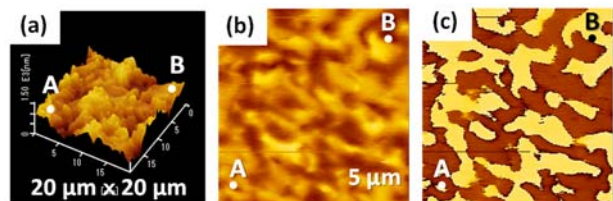


Fig. 1 (a) topographic image, (b) A-MFM signed image of DC magnetic field gradient, (c) A-MFM polarity image of DC magnetic field gradient for a fractured surface of demagnetized anisotropic Sr ferrite sintered magnet.

we have recently developed a sensitive FeCo-Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> superparamagnetic tip. A-MFM with a superparamagnetic tip enables the precise imaging of near-surface static magnetic field with a fixed direction parallel to the tip magnetic moment driven by AC magnetic field. Even rough fractured surface can be imaged in this way.

Fig. 1 shows A-MFM images on a fractured surface of demagnetized anisotropic Sr ferrite magnet. Fig. 1(a), (b) and (c) are the topographic image, the signed intensity image of DC magnetic field gradient (Lock-in  $X$  image) and polarity image of DC magnetic field gradient (Lock-in  $\theta$  image), respectively. Lock-in amplifier signals of A-MFM as follows.

$$X + iY = R \exp(i\theta) \propto M_z^{ac} \cos(\omega_m t) (\partial^2 H_z^{dc} / \partial z^2) + i M_z^{ac} \sin(\omega_m t) (\partial^2 H_z^{dc} / \partial z^2)$$

$$R = \sqrt{X^2 + Y^2} \propto M_z^{ac} (\partial^2 H_z^{dc} / \partial z^2) \propto (\partial^2 H_z^{dc} / \partial z^2)$$

$$H_z^{dc} \Rightarrow -H_z^{dc}, X = M_z^{ac} (\partial^2 (-H_z^{dc}) / \partial z^2) \cos(\omega_m t) = M_z^{ac} (\partial^2 H_z^{dc} / \partial z^2) \cos(\omega_m t \pm \pi)$$

Here  $X$ ,  $R$  and  $\theta$  signals correspond to in-phase signed magnetic field gradient, intensity of unsigned magnetic field gradient (absolute value of magnetic field) and phase of magnetic field gradient (The  $\theta$  change of  $\pi$  corresponds to the polarity change of magnetic field gradient and surface magnetic charge), respectively.

A-MFM can clearly observe DC magnetic field gradient and polarity change of surface magnetic charges in Fig.1 (b) and (c) even on the fractured surface of which surface roughness is about 1 $\mu$ m. On the other hand, the interpretation of conventional MFM image is not easy due to the topography artifact.

The superparamagnetic tip can also solve the problem of ferromagnetic tip that the strong magnetic force of the ferromagnetic tip in high magnetic field from the sample deteriorates the control of constant tip-sample distance near the sample surface. However, the moderate magnetization of superparamagnetic tip prevents its magnetic snapping to the sample surface.

Simultaneous imaging of DC and AC magnetic field by A-MFM is also valid to understand the magnetic homogeneity of magnets by changing the amplitude of AC magnetic field to sample space including a tip and a sample. The magnetic imaging of AC magnetic susceptibility at magnetically reversal area becomes possible.

Fig. 2 shows A-MFM unsigned intensity images of DC and AC magnetic field gradients (Lock-in  $R$  images of  $\omega_m$  and  $2\omega_m$  ( $\omega_m$ : AC magnetic field frequency) under external AC magnetic field with the amplitude of 0.2 and 1.0 kOe for the fracture surface of demagnetized anisotropic Sr ferrite sintered magnet. By using the lock-in  $R$  signal of  $2\omega_m$  ( $\propto M_z^{ac} (\partial^2 H_z^{ac} / \partial z^2)$ ), the grains having reversible magnetization and generating AC magnetic field can be imaged. With the increase of external AC magnetic field amplitude from 0.2 kOe to 1.0 kOe, the number of magnetically reversible grain increases. These grains have a large scale distribution of DC magnetic field intensities, which source is unvaried magnetization in external AC magnetic field. Simultaneous imaging of DC and AC magnetic field is thought to be useful for analyzing the magnetic inhomogeneity analysis.

In conclusion, our developed A-MFM with the superparamagnetic tip can provide precise magnetic field imaging with a fixed magnetic direction. It is thought to be quite effective method to analyze local magnetic domain structure of various permanent magnets.

#### ACKNOWLEDGMENT

This work was supported by JST-SENTAN. We thank Hitachi Metals, Ltd. for providing the sample of anisotropic Sr ferrite sintered magnet.

#### References

- 1) T. Nakamura, A. Yasui, Y. Kotani, T. Fukagawa, T. Nishiuchi, H. Iwai, T. Akiya, T. Ohkubo, Y. Gohda, K. Hono, and S. Hirose, Appl. Phys. Lett., 105 (2014) 202404.
- 2) H. Saito, R. Ito, G. Genta, Z. Li, and S. Yoshimura, J. Appl. Phys., 109 (2011) 07E330.
- 3) Z. Li, X. Li, D. Liu, H. Saito, and S. Ishio, Nanoscale, 6 (2014) 11163-11168.

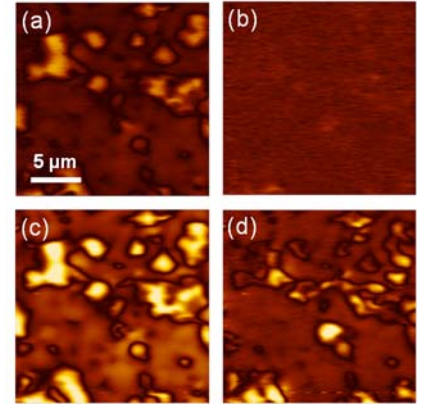


Fig. 2 A-MFM unsigned intensity images of DC magnetic field gradient and AC magnetic field gradient under external AC magnetic field amplitude of 0.2 kOe [(a), (b)] and 1.0 kOe [(c), (d)] for a fractured surface of demagnetized anisotropic Sr ferrite sintered magnet.

## More accurate hysteresis curve measurement in large Nd-Fe-B sintered magnets at elevated temperatures

H. Nishio<sup>1</sup>, X. H. Yu<sup>2</sup>, M. Namba<sup>2</sup>, and K. Machida<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Research Institute for Measurement of Magnetic Materials, Yokohama 240-0026, Japan

<sup>2</sup> Div. of Applied Chemistry, Osaka University, Suita 565-0871, Japan

The hysteresis curve for large Nd-Fe-B sintered magnets has usually been obtained through the hysteresis graph (HG) method. Recently, widespread discussion has addressed the accuracy limit of hysteresis curve measurement for large Nd-Fe-B sintered magnets at elevated temperatures. The abnormality of magnetization ( $J$ ) on the hysteresis curve is known to directly affect squareness measurements, such as the differential susceptibility ( $dJ/dH$ ) near  $H_{cJ}$  and  $H_k/H_{cJ}$ , in the HG method for Nd-Fe-B sintered magnets with higher coercivity ( $H_{cJ}$ ) at room temperature, where  $H$  and  $H_k$  are the magnetic and knee fields, respectively. The abnormality of  $J$  is caused by the distortion of magnetic flux distribution around the sample at high fields. To obtain a more accurate hysteresis curve for large Nd-Fe-B sintered magnets at elevated temperatures, we employed a superconducting magnet-based vibrating sample magnetometer (SCM-VSM) with a maximum magnetic field ( $H_m$ ) of 8 MA/m. The values of  $dJ/dH$  near  $H_{cJ}$  and  $H_k/H_{cJ}$  obtained from the SCM-VSM were compared with those obtained from the HG method at 298 to 473 K. The HG method employed a large electromagnet ( $H_m$  of 2.7 MA/m) with improved fixture of heated Fe-Co pole tips. The values of  $H_{cJ}$  for the Nd-Fe-B sintered magnet samples A and B were 1.2 and 2.7 MA/m, respectively. The compositions of samples A and B were  $\text{Nd}_{10.4}\text{Pr}_{3.0}\text{Dy}_{0.4}\text{Fe}_{\text{bal.}}\text{Co}_{0.6}\text{Al}_{0.6}\text{B}_{6.1}$  and  $\text{Nd}_{9.5}\text{Dy}_{4.1}\text{Fe}_{\text{bal.}}\text{Co}_{0.6}\text{Al}_{0.5}\text{B}_{5.8}$ , respectively. Cylindrical and spherical samples were machined from the same sintered block for the HG and SCM-VSM measurements, respectively. The cylindrical samples used for the HG method had a diameter ( $D$ ) of 10 mm and lengths ( $L$ ) of 7, 14, and 21 mm. A spherical sample with a  $D$  of 7 mm was prepared using the two-pipe method for the SCM-VSM measurement. To remove the deteriorated surface layer of approximately 8  $\mu\text{m}$ , all processed samples were chemically etched in 3%  $\text{HNO}_3$  solution for 1 min.

In the results obtained from the SCM-VSM and HG (in all cases of  $L/D$ ) measurements, the values of  $dJ/dH$  near  $H_{cJ}$  increased gradually as the temperature rose for sample A, which had a lower  $H_{cJ}$ . The differences between the values obtained from these methods were small. In contrast, the values of  $dJ/dH$  near  $H_{cJ}$  obtained from the HG method (in all cases of  $L/D$ ) increased rapidly as the temperature rose for sample B, which had a higher  $H_{cJ}$ , as shown in Fig. 1. The values obtained from the SCM-VSM method gradually decreased as the temperature rose. However, the measured values from the two different methods generally agreed well at temperatures above 423 K, where  $H_{cJ}$  was reduced below 1.2 MA/m. The values of  $H_k/H_{cJ}$  obtained from the SCM-VSM method at 473 K were superior to those obtained from the HG method (in all cases of  $L/D$ ) regardless of  $H_{cJ}$  (Fig. 2). Greater  $L/D$  led to easier uniform magnetization of cylindrical magnets, causing larger  $L/D$  to improve  $dJ/dH$  near  $H_{cJ}$  and  $H_k/H_{cJ}$  measurements with the HG method.

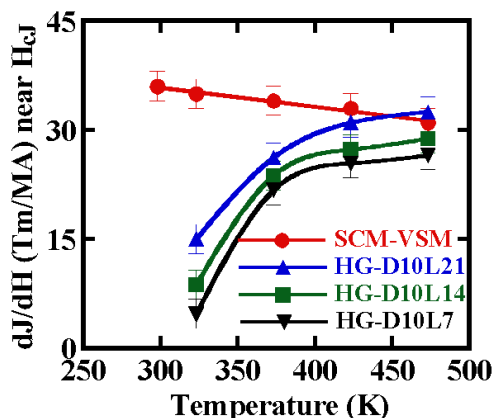


Fig.1 Temperature dependence of  $dJ/dH$  near  $H_{cJ}$  measured by SCM-VSM and HG methods for Sample B.

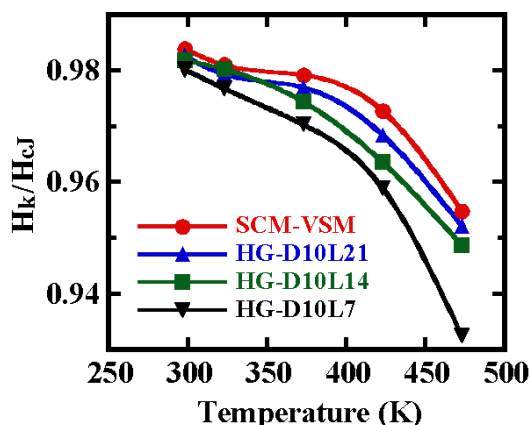


Fig.2 Temperature dependence of  $H_k/H_{cJ}$  measured by SCM-VSM and HG methods for Sample A.

# Spin torque oscillator for microwave assisted magnetic recording

Y. Sakuraba, S. Bosu, W. Zhou, H. Sepehri-Amin, S. Kasai and K. Hono

National Institute for Materials Science (NIMS), Sengen 1-2-1, Tsukuba, Ibaraki, Japan

Microwave assisted magnetic recording (MAMR) [1] is one of the potential techniques for the next generation high density magnetic recording up to 2T bit/in<sup>2</sup> and beyond [2]. MAMR is based on the principle where ac magnetic field ( $\mu_0 H_{ac}$ ) generated from a spin torque oscillator (STO) is applied to the recording media having high thermal stability for lowering the switching field of magnetization of magnetic grains [3-5]. One major challenge for realizing MAMR is the development of a STO consisting of a field generating layer (FGL) having large magnetic volume and spin-injection layer (SIL) with device diameter size  $D \sim 30$  to 40 nm that is able to generate a large enough  $\mu_0 H_{ac} > 0.1$  T from FGL with a frequency,  $f$  over 20 GHz at small bias current density  $J_C < 1.0 \times 10^8$  A/cm<sup>2</sup> [6, 7]. Particularly, the reduction of  $J_C$  is the most difficult task because the magnetic volume of FGL must be large for a sufficient ac magnetic field. Therefore, in our recent studies, we have fabricated various types of STO for MAMR having highly spin-polarized Heusler SIL layer to investigate the effect of spin-polarization on the oscillation dynamics in FGL layer. In order to simulate the behavior of STT-induced dynamics in the STO against various material parameters such as magnetization and spin-polarization, we employed a micromagnetic simulation using the code magnum.fe [8], which solves the coupled dynamics of magnetization ( $m$ ) and the spin accumulation ( $s$ ) simultaneously using the Landau Lifshitz Gilbert (LLG) equation and the time dependent 3D spin diffusion equation, respectively.

In this talk, we will show the result of two different STOs. First one has a perpendicularly magnetized Heusler SIL in which thin Heusler layer is deposited on perpendicular magnetized FePt. In this device, we clearly confirmed from both experiments and simulations that out-of-plane (OPP)-mode rf oscillation in FGL can be excited under lower  $J_C$  by using Heusler SIL compared with usual CoFe SIL. [9,10] The oscillation peak with the  $f$  of over 20 GHz was detected by slightly tilting magnetic field direction from the device normal (Fig.1). In order to reduce the total thickness of the STO device, we have recently fabricated the device with in-plane magnetized thin SIL, in which the synchronized OPP oscillation was predicted to generate between SIL and FGL by flowing electron from SIL to FGL. [11] The analysis of  $R-H$  curves under different current density with the micromagnetic simulations will be shown.

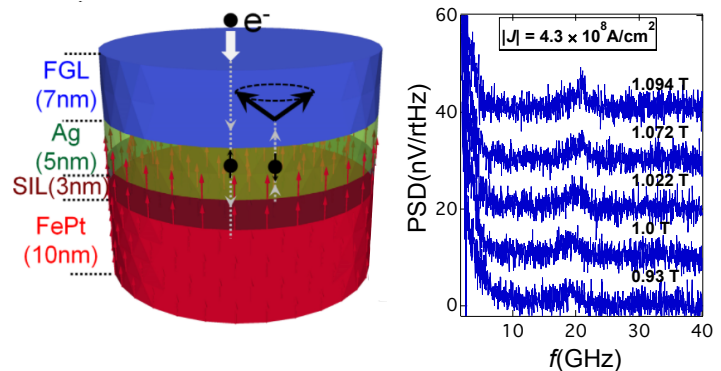


Figure 1. The stacking structure of STO for MAMR (Left), The rf spectra by applying magnetic field to 5 degree titled direction from the device normal (Right). [10]

- [1] J.-G. Zhu, et al. IEEE Trans. Magn. 44, 125 (2008), [2] Y. Shiroishi, et al., IEEE Trans. Magn. 45, 3816 (2009)  
 [3] S. Okamoto, et al., Phys. Rev. Lett. 109, 237209 (2012), [4] C. T. Boone, et al., J. Appl. Phys. 111, 07B907 (2012)  
 [5] S. Okamoto, et al., J. Phys. D: Appl. Phys. 48, 353001 (2015), [6] A. Takeo, et al., Digest of Intermag Conference 2014 (AD-02), [7] M. Igarashi, Y. Suzuki, Y. Sato, IEEE Trans. Magn. 46, 3738 (2010)  
 [8] C. Abert, M. Ruggeri, F. Bruckner, C. Vogler, G. Hrkac, D. Praetorius, and D. Suess, Sci. Rep. 5, 14855 (2015)  
 [9] S. Bosu, et al., Appl. Phys. Lett. 108, 072403 (2016), [10] S. Bosu, et al., Appl. Phys. Lett. 110, 142403 (2017)  
 [11] J. Zhu, Joint MMM-Intermag Conf. 2016, AB11

# スピントルク発振器を位相同期回路によって安定化した際の位相安定性の理論限界および物理的起源

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

Physical origin and theoretical limit of the phase stability of a spin-torque oscillator stabilized by a phase-locked loop

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

## はじめに

スピントルク発振器(Spin torque oscillator, STO)は、微小な磁性体積層膜に直流電流を注入する事により磁化歳差運動を励起し、マイクロ波信号を発生するデバイスである。STOはそのサイズ(数10~数100 nm)、広い周波数可変帯域、半導体プロセスとの整合性等、従来の発振器には無い数々の利点を持つため、高周波集積回路内のマイクロ波信号源としての応用が期待されている。だが現時点では発振が不安定なため、まだ実用化には至っておらず、発振を安定化する技術がSTO実用化には必須となる。この問題を解決するため、我々はSTOに特化した位相同期回路(Phase locked loop, PLL)を開発し、それを用いてSTOを安定化したところ、マイクロ波領域において極めて鋭いスペクトルが観測され、STOの位相同期に成功したことが確認された[1]。しかしながら、そのピークの両側には市販の半導体PLL回路よりもまだずっと大きい残留位相ノイズも観測され、その為STOをPLLで安定化しても、まだ実用化レベルまで性能が向上したとは言えない状況である。

## 実験及び解析方法

更なる性能改善の可能性を検証するため、PLL回路の詳細な解析を行った。STOのフリーラン時の性能は、出力と位相安定性という2つの性能指標によって示される。出力が小さいと、それを増幅する増幅器の雑音が相対的に大きくなるため、信号雑音比が悪くなり、その結果ジッター増加や、カウントエラーが起きる。この出力とジッターやカウントエラーの関係を計算し、実験結果と比較したところ、図1に示す通り非常に良い一致が得られた[2]。次にSTOフリーラン時の出力信号における周波数揺らぎのスペクトル密度(Frequency error spectral density, FESD)を計算し、この結果及びPLLの回路定数を用いて、STOがPLLによって安定化された際の残留位相エラーのスペクトルを計算し、実験結果と比較したところ、こちらも図2に示す通り非常に良い一致が得られた[3]。これらの結果は、STOのフリーラン時の性能指標から、PLLで位相安定化された際の性能を予測するための計算が定式化された事を示す。これらの解析結果により、FESDがSTOの位相安定性の定量解析に必要である事、FESDは低周波では $1/f$ 揺らぎ、コーナー周波数以上では一定となり、それぞれ磁化構造の揺らぎ、STOフリー層の熱安定性が重要であることが示めされた。

## 参考文献

- 1) S. Tamaru et. al, Sci. Rep., 18134 (2015)
- 2) S. Tamaru et. al, Jpn J. Appl. Phys., 093003 (2016)
- 3) S. Tamaru et. al, Phys. Rev. Applied, accepted (2017)

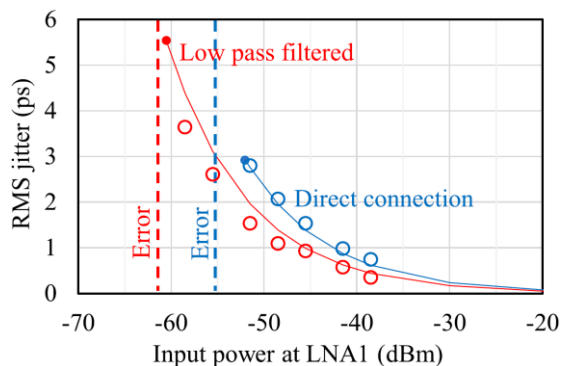


Fig. 1, ジッターやカウントエラーとSTO出力の関係の理論と実測値の比較

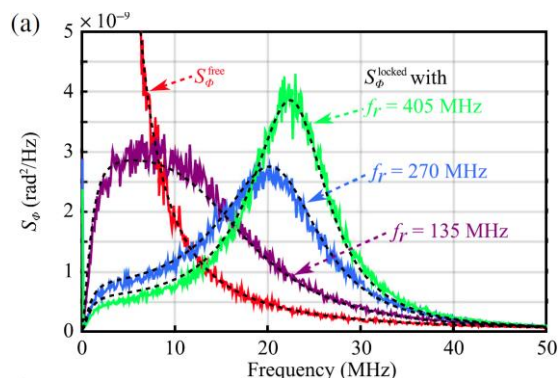


Fig. 2, フリーラン、位相同期時のSTO出力のFESDの理論と実測値の比較



## Spin-orbit torque induced switching using antiferromagnets and its application to artificial neural networks

S. Fukami<sup>1,4</sup>, A. Kurenkov<sup>1</sup>, W. A. Borders<sup>1</sup>, C. Zhang<sup>1,2</sup>, S. DuttaGupta<sup>1,3</sup>, and H. Ohno<sup>1,5</sup>

<sup>1</sup>Laboratory for Nanoelectronics and Spintronics, RIEC, Tohoku University, Sendai 980-8577 Japan

<sup>2</sup>Center for Spintronics Integrated Systems, Tohoku University, Sendai 980-8577 Japan

<sup>3</sup>Center for Spintronics Research Network, Tohoku University, Sendai, 980-8577 Japan

<sup>4</sup>Center for Innovative Integrated Electronic Systems, Tohoku University, Sendai 980-0845 Japan

<sup>5</sup>WPI-Advanced Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577 Japan

Spin-orbit torque (SOT) induced switching, a magnetization switching technique utilizing spin-orbit interactions in heterostructures with broken space inversion symmetry, offers attractive avenues for high-performance and low-power integrated circuits [1-3]. While the heterostructure considered, in general, consists of a bilayer with a non-magnet (NM), e.g., Pt, Ta, and W, and a ferromagnet (FM), we here show that replacing the NM by an antiferromagnet (AFM) opens up various opportunities beyond the conventional integrated circuits [4-6].

SOT switching in AFM/FM heterostructures can be characterized by the following three effects. The first one is the spin Hall effect (SHE), which manifests in SOT. Several theoretical and experimental works revealed that noncollinear AFMs exhibit direct/inverse SHE. We find that, in a heterostructure consisting of an antiferromagnetic PtMn and a ferromagnetic Co/Ni multilayer, the PtMn exhibits SOT large enough to switch the magnetization of Co/Ni layer. The second effect is the exchange bias, which is known to arise at AFM/FM interfaces and manifests itself in an effective in-plane field. Whereas an application of in-plane field is necessary to achieve bipolar switching of perpendicular magnetization for NM/FM systems, the AFM/FM system allows field-free switching as a result of the exchange bias. The third effect, which arises in polycrystalline systems, relates to a variation of the exchange bias among the polycrystalline grains, which provide fine stable magnetic domain structures [5]. This leads to an analog-like switching behavior as is not usually observed in NM/FM structures. Thanks to these effects, the SOT switching in AFM/FM heterostructures not only offers promising route toward SOT-based magnetoresistive random access memory (SOT-MRAM), but also open unconventional paradigms such as neuromorphic computing.

Taking advantage of the analog nature of the SOT devices with the AFM/FM structure, we have shown a proof-of-concept demonstration of neuromorphic computing [6]. In this work, we have developed an artificial neural network using 36 AFM/FM-based SOT devices with a field-programmable gate array and software implemented on a PC, and have tested an associative memory operation. The Hopfield model [7] has been employed to associate memorized patterns from randomly generated noisy patterns. The learning operation based on the Hebbian rule is performed by changing the Hall resistance of analog SOT devices, which represents a synaptic weight between neurons. We have confirmed that the SOT devices have the expected learning ability, resulting in a successful associative memory operation [6]. Since the spintronics devices have virtually infinite endurance and nonvolatility, the spintronics-based artificial neural networks are expected to realize *edge* artificial intelligence with an on-chip learning capability.

This work is partly supported by ImPACT Program of CSTI, R&D Project for ICT Key Technology of MEXT, JST-OPERA, and JSPS KAKENHI Grant Number 17H06093.

### Reference

- 1) I. M. Miron et al., *Nature* **476**, 189 (2011).
- 2) L. Liu et al., *Science* **336**, 555 (2012).
- 3) S. Fukami et al., *Nature Nanotechnology* **11**, 621 (2016).
- 4) S. Fukami et al., *Nature Materials* **15**, 535 (2016).
- 5) A. Kurenkov et al., *Applied Physics Letters* **110**, 092410 (2017).
- 6) W. A. Borders et al., *Applied Physics Express* **10**, 013007 (2017).
- 7) J. J. Hopfield, *Proceedings of the National Academy of Sciences USA* **79**, 2554 (1982).

# Voltage-Control Spintronics Memory (VoCSM) for a High-density and High-speed Non-volatile Memory

Naoharu Shimomura, Hiroaki Yoda, Tomoaki Inokuchi, Katsuhiko Koi, Yushi Kato,  
Altansargai Buyandalai, Satoshi Shirotori, Yuuzo Kamiguchi, Kazutaka Ikegami, Soichi Oikawa,  
Hideyuki Sugiyama, Mariko Shimizu, Mizue Ishikawa, Tiwari Ajay, Yuichi Ohsawa, Yoshiaki Saito,  
and Atsushi Kurobe

Corporate Research & Development Center, Toshiba Corporation

1 Komukai, Toshiba-cho, Saiwai-ku, Kawasaki, Kanagawa Prefecture, 212-8582, Japan

Technology to reduce energy consumption of computing devices, and especially that of working memories such as DRAM and SRAM, is critically important because of the recent drastic increase in electric power usage due to the information explosion. MRAM is the sole candidate for a non-volatile working memory because it offers the possibility of fast switching and long life time. Application of MRAM to the working memories is a focus of high expectations because of the potential advantages in terms of low-power computing.

Spin Transfer Torque (STT) has been extensively investigated as an MRAM writing scheme. However, because a same current path is used both for reading and writing, scaling and endurance are limited by read disturbance and breakdown of the tunnel barrier of MTJs, respectively. Voltage-controlled-magnetic-anisotropy (VCMA) has been proposed as the ultimate power reduction scheme. It also improves the read disturbance and the endurance. However, it requires very precise control of write pulse duration time. Meanwhile, Spin Hall writing can prevent the read disturbance because different paths are used for writing and reading. However, there is a drawback in that shrinking the cell size is difficult because it requires at least two transistors for 1 bit memory cell.

We proposed Voltage-Control Spintronics Memory (VoCSM), an architecture combining VCMA and the Spin Hall effect<sup>1)</sup>. As illustrated in Fig. 1, multiple (for example, 8) MTJs are aligned on a heavy metal electrode that has strong spin-orbit interaction. VoCSM handles all 8 bits simultaneously by a single write pulse. In the 1<sup>st</sup> step, all 8 bits are set to one of the 2 bit data (for example, data “zero”) by applying the voltage on the MTJs and the current pulse on the electrode. The voltage is used to lower an energy barrier between two states of the MTJs by VCMA and the current pulse gives the spin torque on the MTJs by the Spin Hall effect to switch the magnetization. After that, in the 2<sup>nd</sup> step, the opposite data (“1” in this case) is written on the selected MTJs in the 8bit memory cells depending on the data set by applying the voltage to lower or raise the energy barrier of the MTJs and also the write current pulse in the opposite direction to that of the 1<sup>st</sup> step. This writing scheme reduces the power consumption because all 8 bits are written by the single write current pulse and moreover the write current itself is reduced by VCMA. VoCSM also enables shrinking of the cell size because one MTJ requires only one transistor.

We fabricated VoCSM TEGs to prove the concept. The MTJ structure was IrMn (8nm)/ CoFe (1.8nm)/ Ru (0.9nm)/ CoFeB (1.8nm)/ MgO (1.6nm)/ (CoFeB or FeB) (1.2~2.2nm)/ electrode and the MTJ size was about 50nm×150nm. We successfully demonstrated the magnetization switching of the selected MTJs on the electrode without switching unselected ones. We also demonstrated the fast switching with 5ns write pulses which is shown in Fig. 2. The measured write error rate with 5ns writing current pulses was lower than  $1 \times 10^{-6}$ .

This work was funded by the ImpACT Program of the Council for Science, Technology and Innovation (Cabinet Office, Government of Japan).

## Reference

- 1) H. Yoda et al., Digests of IEDM, 27.6 (2016).

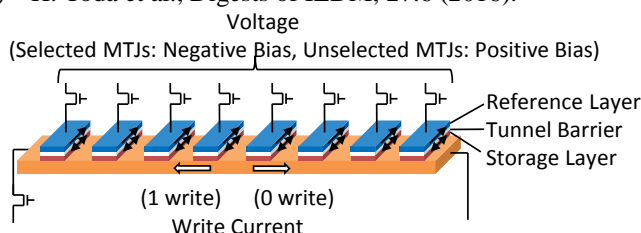


Fig. 1 Schematics of VoCSM

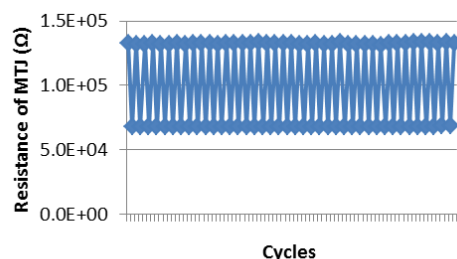


Fig. 2 Switching test with 5 ns write pulses

## Magnetization switching by voltage controlled DMI

Hiroshi Imamura, Takayuki Nozaki, Shinji Yuasa, Yoshishige Suzuki  
(Spintronics RC, AIST, Tsukuba, Ibaraki, Japan.)

Dzyaloshinskii-Moriya interaction is the anti-symmetric exchange interaction postulated by Igor Dzyaloshinskii in 1958[1]. Two years later Toru Moriya showed that the spin-orbit coupling is the microscopic mechanism of the antisymmetric exchange interaction [2]. The effects of the DMI on the magnetic properties of bulk materials have been extensively studied, e.g., the DMI is the source of the weak ferromagnetism of Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Recently the voltage control of the DMI has attracted much attention as a tool for low power spin manipulation. One of the present authors showed that the Rashba spin-orbit interaction at the interface of the semiconductor nanostructures induces the interface DMI whose strength can be controlled by the gate voltage [3]. Very recently, Nawaoka et al. found that the DMI in the Au/Fe/MgO artificial multilayer can be controlled by application of a voltage [4].

The magnetic anisotropy (MA) is another magnetic property which can be controlled by the voltage. The voltage control of MA in a thin ferromagnetic film has attracted much attention as a key phenomenon for developing a voltage-controlled magnetic random access memory (MRAM) with low power consumption [5-9]. Shiota et al. demonstrated that the coherent magnetization switching is induced by application of voltage pulse to a few atomic layer of FeCo[4]. During the pulse application the magnetization coherently precesses around the effective magnetic field, and the magnetization switches if the pulse width is set to one-half period of the precession. However, since this is the toggle-mode switching, pre-reading is necessary for writing the MRAM. To avoid pre-reading it is necessary to develop a writing scheme based on the deterministic switching as shown in Fig. 1 (a), where the magnetization direction after the voltage pulse is determined by the polarity of the voltage and is independent of the initial magnetization direction.

Here we propose a new writing scheme of MRAM utilizing voltage-induced changes of MA and DMI. Based on the micromagnetics simulations we demonstrated that voltage-induced changes of MA and DMI can switch the magnetization of a perpendicularly magnetized right triangle deterministically; i.e., the magnetization direction is determined by the polarity of the voltage pulse

The system we consider is a perpendicularly magnetized right triangle (64 nm × 32 nm × 2 nm) shown in Fig. 1 (b). The micromagnetics simulations were performed by using the software package MuMax3[10]. The system is divided into cubic cells of side length 2 nm. The following material parameters are assumed: saturation magnetization  $M_s = 1.35$  MA/m, exchange stiffness constant  $A = 10$  pJ/m, Gilbert damping constant  $\alpha = 1$ . The external field of 100 Oe was applied in the x-direction. The anisotropy constant (K) and the DMI constant (D) are assumed to vary with the applied

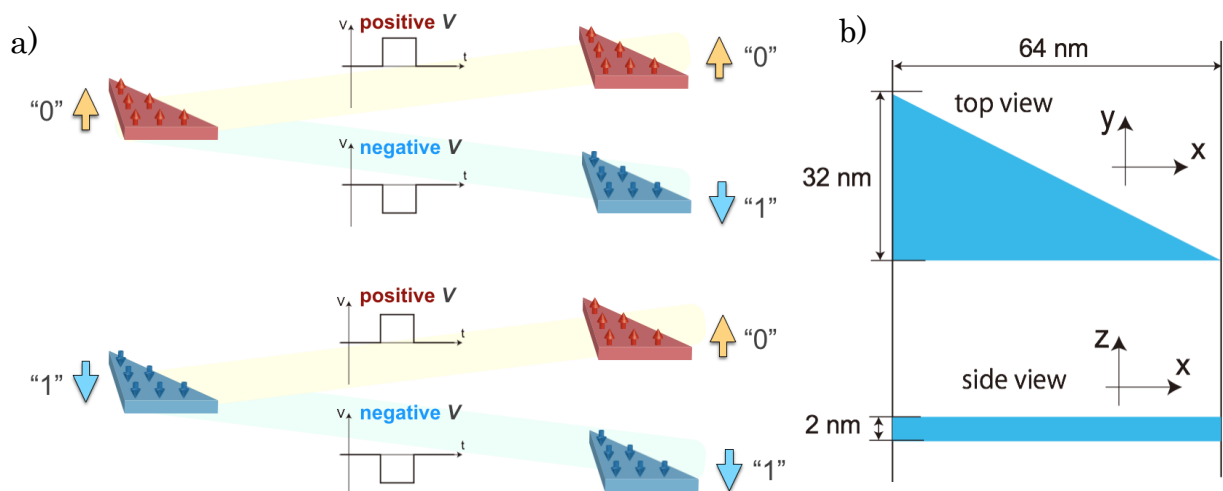


Fig. 1 a) Schematic illustration of the deterministic switching. The final magnetic state is determined by the polarity of the voltage pulse. b) Top and side views of the ferromagnetic triangle we simulated.

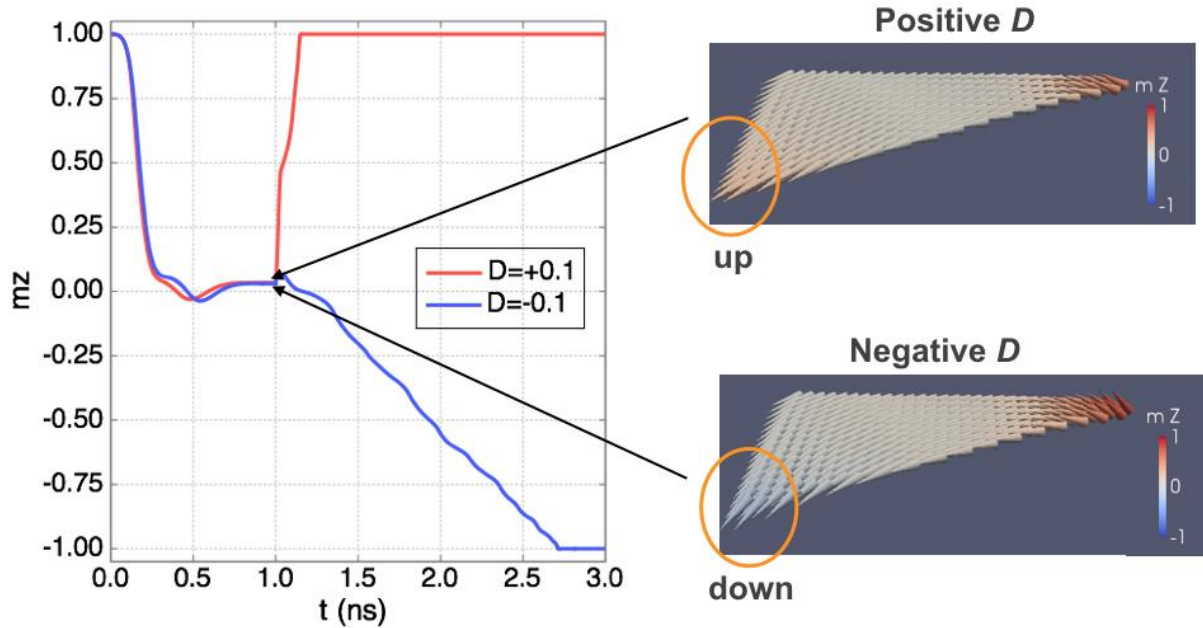


Fig. 2 Temporal variation of the z-component of the averaged magnetization,  $m_z$ , and snap shots of magnetization at the end of the pulse duration. The result for positive (negative) bias voltage is represented by the solid red (dotted blue) curves.

bias voltage in the different manner. In the absence of the applied voltage the anisotropy and DMI constants are  $K = 4$  mJ/m<sup>2</sup> and  $D = 0$ , respectively. When the positive (negative) bias voltage is applied they are  $K = 1.4$  mJ/m<sup>2</sup> and  $D = + (-) 0.1$  mJ/m<sup>2</sup>. The width of the voltage pulse is 1 ns. The temperature is assumed to be zero.

The calculated results are shown in Fig. 2. The z-component of the averaged magnetization ( $m_z$ ) for the positive and negative bias voltage pulse are plotted by the solid (red) and dotted (blue) curves, respectively. The initial state is set as the perpendicularly polarized state with  $m_z = 1$ . Application of the voltage pulse for 1 ns tilts the magnetization to the in-plane direction and creates nucleation sites at the edges. The positive (negative) values of  $m_z$  are represented by red (blue) tones. The magnetization of the nucleation site at the left down edge points slightly down (up) for the positive (negative) bias voltage pulse due to the DMI as indicated by the circles on the snapshots. After 1 ns the bias voltage is turned off, and the magnetization relaxes to the perpendicularly magnetized state. The magnetization of the final state is the same as that of the nucleation site at the left down edge. Therefore the magnetization switches only if the negative bias voltage pulse is applied. For the initial state with  $m_z = -1$  the magnetization switches only if the positive bias voltage pulse is applied. The systematic analysis for a wide range of parameters and conditions for switching will be presented.

#### Reference

- 1) I. Dzyaloshinskii, Journal of Physics and Chemistry of Solids 4, 241 (1958).
- 2) T. Moriya, Physical Review 120, 91 (1960).
- 3) H. Imamura, P. Bruno and Y. Utsumi, Phys. Rev. B 69, 121303 R (2004).
- 4) K. Nawaoka, S. Miwa, Y. Shiota, N. Mizuochi and Y. Suzuki, Applied Physics Express 8, 063004 (2015).
- 5) M. Weisheit, S. Fähler, A. Marty, Y. Souche, C. Poinsignon, and D. Givord, Science 315, 349 (2007).
- 6) D. Chiba, M. Sawicki, Y. Nishitani, Y. Nakatani, F. Matsukura, and H. Ohno, Nature 455, 515 (2008).
- 7) T. Maruyama, Y. Shiota, T. Nozaki, K. Ohta, N. Toda, M. Mizuguchi, A. A. Turapurkar, T. Shinjo, M. Shiraishi, S. Mizukami, Y. Ando, and Y. Suzuki, Nat. Nanotechnol. 4, 158 (2009).
- 8) Y. Shiota, T. Maruyama, T. Nozaki, T. Shinjo, M. Shiraishi, and Y. Suzuki, Appl. Phys. Express 2, 063001 (2009).
- 9) T. Nozaki, H. Arai, K. Yakushiji, S. Tamaru, H. Kubota, H. Imamura, A. Fukushima, and S. Yuasa, Applied Physics Express 7, 073002 (2014).
- 10) A. Vansteenkiste, J. Leliaert, M. Dvornik, M. Helsen, F. Garcia-Sanchez and B. Van Waeyenberge, AIP Advances 4, 107133 (2014)

# Voltage-induced precessional switching at zero bias magnetic field in a conically magnetized free layer

R. Matsumoto, T. Nozaki, S. Yuasa, and H. Imamura  
(AIST)

Voltage-induced magnetization switching<sup>1)</sup> at zero bias magnetic field has become one of the key requirements in developing voltage-torque magnetoresistive random access memory (MRAM). In the conventional magnetic tunnel junctions (MTJ) with the perpendicular magnetization, however, voltage-induced magnetization switching has been demonstrated under a bias magnetic field having in-plane (IP) component.<sup>2,3)</sup> Instead of bias magnetic field, the IP component of the shape anisotropy field,  $H_k$ , has been often used. Finite  $H_k$  is commonly obtained in a ferromagnet having an elliptic-cylinder shape. In the case of a perpendicularly magnetized free layer, however, the shape anisotropy field cannot move the magnetization from the equilibrium state because  $H_k$  is zero at  $(m_x, m_y, m_z) = (0, 0, \pm 1)$  where  $m_x$  and  $m_y$  ( $m_z$ ) are IP (perpendicular) components of the unit magnetization vector ( $\mathbf{m}$ ) of the free layer (see Fig. 1(a)). Tilting the angle of the magnetization from the perpendicular direction is also necessary for switching of the free layer magnetization.

To tilt the magnetization, we propose the usage of a cone state. Cone state is the magnetization state (see Fig. 1(b)) where the tilted magnetization is stabilized by the competition between the first- and the second-order magnetic anisotropy energies,  $K_{1,\text{eff}}$  and  $K_{u2}$ .<sup>4,5)</sup> Here  $K_{1,\text{eff}}$  is the effective anisotropy constant, where demagnetization energy is subtracted from the first-order anisotropy constant ( $K_{u1}$ ). The MTJ we assume is illustrated in Fig. 1(a).  $x$ -axis is parallel to the major axis of the ellipse. In our case,<sup>6)</sup>  $(m_x, m_y, m_z) = (0.322, 0, 0.947)$  in the equilibrium state. The voltage-induced dynamics is analyzed with the following Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) equation,  $d\mathbf{m}/dt = -\gamma_0 \mathbf{m} \times [\mathbf{H}_{\text{eff}} + \alpha(\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}})]$ , where  $t$  is time,  $\gamma_0$  is the gyromagnetic ratio,  $\alpha$  is the Gilbert damping constant, and  $\mathbf{H}_{\text{eff}}$  is the effective magnetic field defined as  $\mathbf{H}_{\text{eff}} = -(1/(\mu_0 M_s)) \nabla E$ . Here,  $E$  is the energy density of the free layer at a finite voltage given by  $E = (1/2)\mu_0 M_s^2 (N_x m_x^2 + N_y m_y^2 + N_z m_z^2) + K_{u1}(1 - m_z^2) + K_{u2}(1 - m_z^2)^2$ , where  $\mu_0$  is the vacuum permeability,  $M_s$  is the saturation magnetization, and  $N_x$ ,  $N_y$  and  $N_z$  are demagnetization coefficients. In Fig. 1(c), an example of the simulation results is shown. The oscillation of  $m_z$  extends from positive to negative region. It indicates that voltage-induced precessional switching at zero bias magnetic field is available in a conically magnetized free layer with the elliptic-cylinder shape.

This work was partly supported by the ImPACT Program of the Council for Science, Technology and Innovation

## Reference

- 1) Y. Shiota et al: *Nat. Mater.*, 11, 39 (2012).
- 2) S. Kanai et al: *Appl. Phys. Lett.*, 101, 122403 (2012).
- 3) Y. Shiota et al: *Appl. Phys. Express*, 9, 013001 (2015).
- 4) D. Apalkov and W. Butler, US Patent 8,780,665 (2014).
- 5) R. Matsumoto et al: *Appl. Phys. Express*, 8, 063007 (2015).
- 6) The example of the parameters of the conically magnetized free layer in this study:  $M_s = 1400$  kA/m,  $\alpha = 0.005$ ,  $K_{u1} = 1081$  kJ/m<sup>3</sup>, and  $K_{u2} = 193$  kJ/m<sup>3</sup> at zero voltage.  $K_{u1} = 1051$  kJ/m<sup>3</sup>, and  $K_{u2} = 43$  kJ/m<sup>3</sup> under the application of a voltage. The volume of the free layer is  $32 \times 16 \times \pi \times 1$  nm<sup>3</sup>.

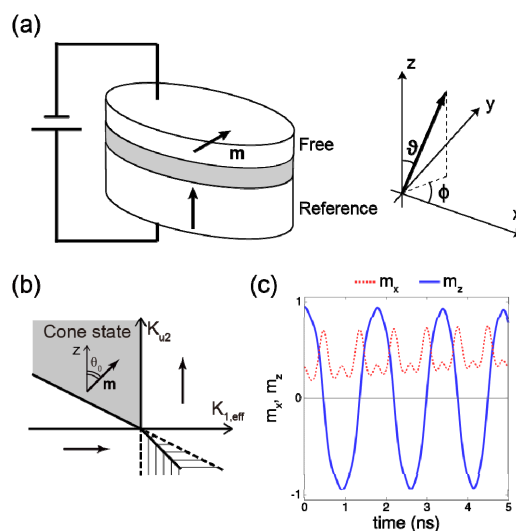


Fig. 1 (a) MTJ we assume. (b) Phase diagram of magnetic film with uniaxial anisotropy constants  $K_{1,\text{eff}}$  and  $K_{u2}$ . (c) Time evolution of  $m_x$  and  $m_z$  under application of voltage.

# 鋼板スリット部からの欠陥信号のモデル化

田中諒、笹山瑛由、圓福敬二  
(九州大学)

Modeling of defect signal from slit part of steel plate

R. Tanaka, T. Sasayama, K. Enpuku  
(Kyushu University)

## はじめに

鋼材は高い透磁率を持つため、表皮深さが非磁性の金属に比べて浅くなる。よって渦電流探傷法を用いた鋼材の内部のきずの検出には低周波を用いる必要がある。これまで、三次元有限要素法による電磁界シミュレーションによって、鋼材裏面のスリット状の亀裂を低周波渦電流探傷法によって検出できる可能性を示した。本研究では、さらに、同様の手法で亀裂の高さによる信号の変化を求めた。また、得られた結果を Cole-Davidson の式でフィッティングを行った。

## シミュレーション方法

Fig.1 に示すような 2 つの励磁コイルを鉄板の上側に平行に配置した場合の電磁界シミュレーションを行った。コイルと鉄板の距離  $Z$  (リフトオフ) は 5 mm であり、2 つのコイル中心間の距離は 95 mm とした。コイルの寸法は内径が 35 mm、外径が 45 mm、高さが 3 mm とし、巻数は 18 turn とした。励磁電流の振幅は 1 A、周波数  $f$  は 0~40 Hz とし解析をした。なお、電流の方向は 2 つのコイルでは逆向きとした。

検査対象物は板厚が 10 mm の鋼板(SM490A)を用いた。鋼板の裏面に、励磁方向と平行、および垂直方向に縦 20 mm、横 5 mm のスリット状の亀裂を設けた。亀裂の高さ  $d$  はそれぞれ 2、4、6、8、10 mm である。各  $d$  について、 $xy$  平面上( $Z=5$  mm)における亀裂によってのみ発生する  $z$  軸方向の磁束密度分布を求め、その空間分布における最大値  $\Delta B_z(f)$  を求めた。

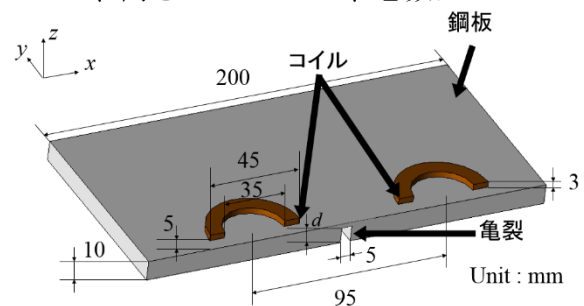


Fig.1 解析モデル (1/2 モデル)

## シミュレーション結果

Fig.2 に周波数  $f$  を 0 から 16 Hz まで変化させた場合の  $\Delta B_z(f)$  をそれぞれの亀裂高さ  $d$  について求めたグラフを示す。横軸に  $\Delta B_z(f)$  の実部、縦軸に  $\Delta B_z(f)$  の虚部を示す。グラフに示している数字は周波数を示す。亀裂高さによって周波数特性が違ってくる事が分かる。

また Fig.3 にそれぞれの亀裂の高さにおいて  $\Delta B_z(f)$  を  $\Delta B_z(0)$  で規格化したもの (○印) を、Cole-Davidson の式でフィッティングした結果 (×印) を示す。Fig.3 から分かるように、どの亀裂高さにおいても、14 Hz 以下ではおおよそフィッティングに成功した。

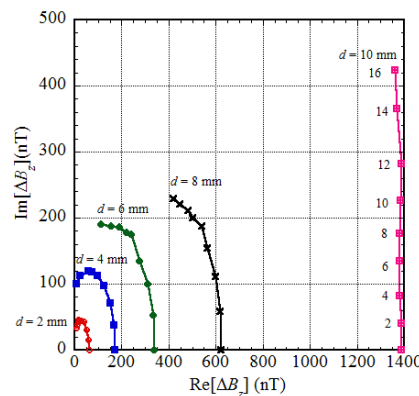


Fig.2 亀裂高さによる  $\Delta B_z$

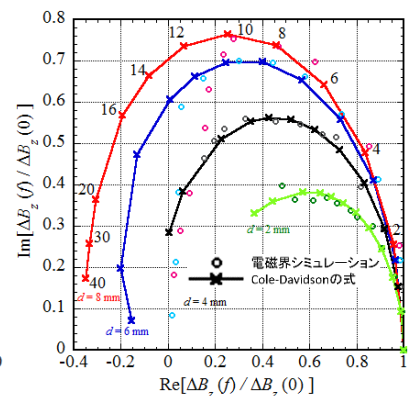


Fig.3 Cole-Davidson の式によるフィッティング

# バックライト一体型 MO イメージングプレートを用いた 円偏光変調法による大面積の磁場分布の定量測定法の開発

長久保洋介、佐々木教真\*、目黒栄\*\*、西川雅美、石橋隆幸  
(長岡技科大、\* (株) オフダイアゴナル、\*\*ネオアーク (株))

Development of quantitative measurement method for large area magnetic field distribution  
using MO imaging plate with backlight utilizing polarization modulation method

Y. Nagakubo, M. Sasaki\*, S. Meguro\*\*, M. Nishikawa, T. Ishibashi  
(Nagaoka Univ. of Tech., \*OFFDIAGONAL Co., Ltd., \*\*Neoark Corp.)

我々は、大面積 (数十 cm~1 m) の磁場分布を短時間で測定可能な磁気光学(MO)イメージング技術の開発を行っている。これまでに、磁気光学特性の優れた大面積ガーネット膜の開発<sup>1)</sup>およびφ3 inch サイズの反射型イメージング装置の開発に成功している。さらに、イメージング領域の大面積化を可能とする、バックライト一体型 MO イメージングプレートを開発することにも成功した<sup>2)</sup>。しかし、これらの方法では磁場の値を光強度と磁場強度の関係から求めるため、光学系の位置や光源の強度が変わるとその都度校正値を取り直す必要があった。そこで本研究では、校正値を用いずに磁気光学効果を定量的に計測可能な円偏光変調法<sup>3)</sup>とバックライト一体型 MO イメージングプレートを組み合わせた MO イメージング技術を開発した。

Fig. 1 に開発した MO イメージング装置の概略図を示す。MO イメージングプレートは、EL シート (EL-A6-SET、ルミテクノ) の上に偏光板とガーネット膜を重ねた構造とし、計測部として、カメラにλ/4 板と検光子を組み合わせた。MO イメージングプレートの裏側に置かれた測定対象物を作る磁場分布は、ガーネット膜に磁気的に転写される。そして、λ/4 板の光学軸を -45°、0°、45° の角度として 3 枚の画像を計測した後、すべての画素における光強度から、次式によりファラデー回転角が得られる。

$$\theta_F = \frac{2I_0 - (I_{45} + I_{-45})}{2(I_{45} + I_{-45})} \quad (1)$$

ここで、 $I_{45}$ 、 $I_0$ 、 $I_{-45}$  は、λ/4 板の角度が -45°、0°、45° の時に測定された画像の光強度である。磁場の値はガーネット膜のファラデー回転角と磁場の関係から求められる。

Fig.1 に、フェライト磁石について測定した磁場分布像を示す。フェライト磁石の磁場分布が明瞭に観察されているのがわかる。得られた磁場の値は、ガウスメーターで測定した値と一致したことから、校正値を用いずに定量的な磁場分布計測が可能であることが確認できた。

本研究の一部は、名大未来材料・システム研究所との共同研究及び文科省「ナノテクノロジープラットフォーム」の支援を受けて行われた。

## 参考文献

- 1) T. Ishibashi, et al., *Sensors and Materials*, **27**, 965 (2015).
- 2) 長久保洋介 他, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会, 16a-423-9.
- 3) T. Ishibashi, et al., *J. Appl. Phys.* **100**, 093903 (2006).

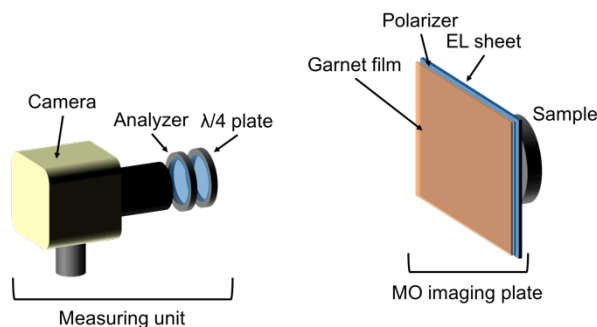


Fig. 1 Schematic illustration of the experimental setup.

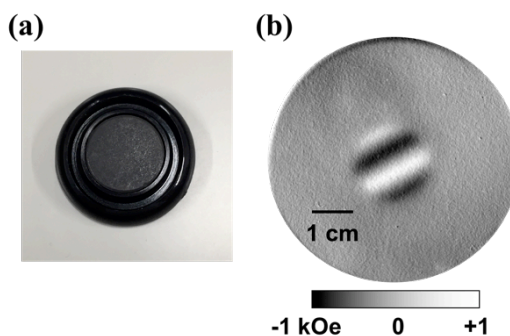


Fig. 2 (a) Digital photograph and (b) MO image of a ferrite magnet.

## J-PARC MLF における偏極パルス中性子イメージング技術の開発

廣井孝介、篠原武尚、林田洋寿\*、Joseph Don Parker\*、蘇玉華、及川健一、甲斐哲也、鬼柳善明\*\*  
 (日本原子力研究開発機構 J-PARC センター、\*総合科学研究機構、\*\*名古屋大学)

Development of Polarized Pulsed Neutron Imaging Technique at MLF J-PARC

K. Hiroi, T. Shinohara, H. Hayashida\*, J. D. Parker\*, Y. Su, K. Oikawa, T. Kai and Y. Kiyanagi\*\*  
 (J-PARC Center JAEA, \*CROSS, \*\*Nagoya University)

### はじめに

現在、我々は J-PARC センター 物質・生命科学実験施設 (MLF) において、偏極パルス中性子を用いた磁気イメージング手法の開発を行っている。本手法は、中性子ビーム経路内の磁場による中性子スピンのラーモア歳差回転に伴う中性子偏極度の変化を中性子 2 次元検出器を用いて取得し、そのエネルギー (波長) 依存性を位置毎に解析することで中性子が感じた磁気情報を定量的に評価するものである。本手法の特徴は、プローブとなる中性子ビームの高い物質透過能力により、比較的大きな固体試料内部の磁気情報を取得できる点や、物質中と空間中両方の磁束密度をベクトル情報として定量的に評価できる点、さらに、他の磁気イメージング手法に比べ、一度に観察できる視野範囲が数 cm 四方と広い点が挙げられる。これらの特徴から、本手法は他の磁気イメージング手法では困難であった稼働状態での磁場関連機器内部の磁場観察への応用が期待されている。そのため、我々は時間変動する交流磁場を解析する手法や観察視野の拡大など、本手法を磁場関連製品の観察技術として実用化するため技術開発を進めてきた。本発表では、MLF において開発が進められている偏極パルス中性子を利用した磁気イメージング手法の概要と、それを利用した幾つかの応用研究の結果を説明する。

### 実験方法

偏極パルス中性子イメージングは MLF の BL22 に設置された、エネルギー分析型中性子イメージング装置「螺鈿」にて実施した。螺鈿におけるイメージング用偏極度解析装置の模式図を Fig. 1 に示す。この装置では、偏極子および検極子に V 型磁気スーパーミラーキャビティを使用した。中性子波長約 1.5 ~ 8 Å の範囲での偏極度解析が可能であり、画角約 40 mm 四方の偏極度分布像を取得できる。試料スペースの前後には中性子スピンの向きを回転させる 2 組のスピントルターが設置されており、任意の方向に中性子スピンを制御することで、3 次元での偏極度解析が可能である。これにより、試料空間内の磁束密度の 3 次元ベクトル情報を取得する。現在、我々はこのイメージング用偏極度解析装置を利用して、稼働状態の小型モーターの磁場の観察や、トランス模擬試料からの漏洩磁場の観察、方向性電磁鋼板の磁区観察等の応用研究を実施しており、その結果を紹介する。

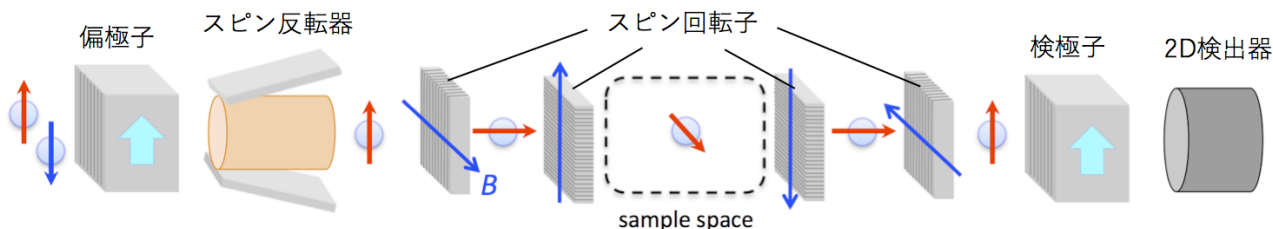


Fig.1 中性子イメージング用偏極度解析装置の模式図

### 謝辞

本研究は文部科学省 光・量子融合連携研究開発プログラム「実用製品中の熱、構造、磁気、元素の直接観察による革新エネルギー機器の実現」により実施された。