水平方向からの磁場が磁気浮上鋼板に与える影響 (張力の印加位置に関する実験的検討)

伊藤誉淳、小田吉帆、奥野健吾、成田正敬、加藤英晃 (東海大学)

Effect of a magnetic field from the horizontal direction on a magnetically levitated steel plate (Experimental consideration on applied position of tension)

Y. Ito, Y. Oda, K. Okuno, T. Narita, H. Kato

(Tokai Univ.)

<u>はじめに</u>

薄鋼板の製造工程では、ローラとの接触による表面品質の 劣化が問題であるが、その解決策として電磁力による鋼板の 浮上・搬送制御が提案されている^{1,2)}。著者らはこれまでに水 平方向からエッジ部に設置した電磁石が磁気浮上中の鋼板の 浮上性能に与える影響について検討している。水平方向から エッジ部に設置した電磁石の位置が磁気浮上中の鋼板の浮上 性能に与える影響については、未だ十分な検討が行えていな い。そこで本研究では板厚 0.24 mmの薄鋼板を対象とし、水 平方向からの磁場の位置が非接触浮上時に与える影響を実験 的に検証する。

<u>実験装置</u>

実験装置の概略を Fig. 1 に示す。浮上対象は長さ 800 mm、 幅 600 mm、厚さ 0.24 mm の長方形亜鉛めっき鋼板(材質 SS400)とする。鋼板をアルミフレーム製装置内に設置した 5 か所のペアの電磁石を用いて非接触支持するために、鋼板の 変位を 5 個の渦電流式非接触変位センサにより検出し、非接 触位置決め制御する。鋼板水平方向(x 方向)の位置決めは Fig. 1 に示した通り、電磁石を鋼板端部の相対する二辺に対向 するように 4 か所配置し、レーザ式センサを利用することに よって水平方向の変位を非接触計測する。

<u>浮上実験</u>

磁気浮上システムの電磁石配置図を Fig. 2 に示す。水平方 向電磁石コアの中心間距離を a とする。磁気浮上鋼板に対し て水平方向から印加する磁場の位置の変化が浮上性能にどの ような影響を与えるのか検証するため、最適制御理論より求 めたフィードバックゲインを用いて浮上実験を行った。この とき、水平方向電磁石に印加する定常電流値を 0.025 A、中心 間距離 a を 550 mm とした。測定した鋼板の垂直方向の変位 の時刻歴波形を Fig. 3 に示す。実験結果より、張力の印加位 置によって、浮上性能が向上することを示した。







Fig. 2 Electromagnet arrangement.



Fig. 3 Time history of the vertical displacement of the steel plate.

参考文献

- 1) 川田他, 第2回電磁力関連のダイナミックスシンポジウム講演論文集, (1990), pp. 59-62.
- 2) 押野谷他, 日本機械学会論文集 C 編, Vol. 56 (1990), No. 531, pp. 2911-2918.
- 3) 木田他, 日本磁気学会論文特集号, Vol. 1 (2017), No. 1, pp. 76-81.

湾曲磁気浮上薄鋼板に発生する振動メカニズムに関する基礎的考察

多田誠、小川和輝、成田正敬、加藤英晃 (東海大学)

Fundamental consideration on vibration mechanism in thin steel plate with curvature during magnetic levitation

M. Tada, K. Ogawa, T. Narita, H. Kato

(Tokai Univ.)

<u>はじめに</u>

近年磁気浮上技術の応用による非接触搬送に関する 検討が盛んに行われている¹⁾。当研究グループは、板厚 が 0.30 mm 以下の鋼板を塑性変形しない範囲に曲げた 状態で浮上させることを提案し、湾曲浮上によって外乱 入力時でも安定した浮上状態が実現できることを確認 した²⁾。本研究ではこの湾曲磁気浮上システムの浮上対 象である薄鋼板の共振周波数を実験的に検討すること を目的に、浮上中の鋼板に外乱を入力し、その応答につ いて考察した。

浮上実験

Fig.1に装置の概略図を示す。浮上対象は長さ800 mm、 幅 600 mm、厚さ0.18 mmの長方形亜鉛メッキ鋼板を使 用する。鋼板を浮上させるために、5 つの電磁石ユニッ トを使用している。この電磁石ユニットの取り付け角度 を変更することで、鋼板を湾曲させて浮上させることが できる。また、この電磁石ユニットを設置しているフレ ームには加振器が備え付けられており、フレームを振動 させることで浮上鋼板に外乱を入力することができる。

本実験では、正弦波となるよう加振器を用いてフレー ムを振動させ、鋼板中央付近に設置したセンサから取得 した変位時刻歴から変位標準偏差を算出した。このとき、 鋼板の曲げ角度 θ は、過去の実験²⁾で最も振動が抑制さ れた θ =13°で行った。

<u>結果および考察</u>

Fig. 2 にフレームの時刻歴波形とスペクトル波形を、 Table 1 に周波数ごとの変位標準偏差を示す。Table 1 よ り、他の周波数に比べ5 Hz の時最も変位標準偏差が高 くなり、磁気浮上中に電磁石からの入力が比較的多く考 えられる低周波にて鋼板が振動しやすくなることが確 認できた。

<u>参考文献</u>

- 1) 石野他, 日本 AEM 学会誌, 26-1, (2018), 178-184
- 2) M. Tada et al., IPEC2018, (2018), 1580-1585







Fig. 2 Time histories of displacement and amplitude spectrums of vibrating frames by the sine disturbance (3 Hz).

 Table 1 Standard deviation of displacement under sine disturbance.

Frequency of sine wave [Hz]	Standard deviation of displacement [mm]
3	0.235
5	0.538
7	0.207
9	0.154

リラクタンスネットワーク解析に基づく 巻線界磁型クローポールモータの損失算定 市川優太,中村健二

(東北大学)

Loss Calculation of Field-Winding type Claw-Pole Motor based on Reluctance Network Analysis

Y. Ichikawa, K. Nakamura

(Tohoku University)

はじめに

近年,モータの構造を3次元化することで,鉄心 と巻線の空間利用率を高め,トルクを向上させるア イデアがいくつか提案されている。その中の一つで ある,界磁巻線型クローポールモータは,爪状の極 を上下でかみ合わせた特殊な構造の回転子鉄心の中 に,トロイダル状の界磁巻線を収めるため,巻線占 有率を大幅に高めることができる。しかしながら, クローポールモータの特性算定には,3次元電磁界 解析が必須であること,また電機子電流に加え,界 磁電流も制御パラメータとなるため,駆動回路も含 めた高速・高精度な解析が必要不可欠である。

先に筆者らは、リラクタンスネットワーク解析¹⁾ (RNA)に基づき、界磁巻線型クローポールモータ の特性算定法について検討を行い、トルク特性を高 速・高精度に算定可能であることを明らかにした²⁾。

本稿では、モータの性能評価を行う上で欠かすこ とのできない、損失の算定手法について、検討を行 ったので報告する。

RNA による回転子表面の渦電流損の算定

Fig.1に、クローポールモータの基本構成を示す。 本モータの回転子は、爪状の極を上下でかみ合わせ た特殊な構造を有するため、バルク状の鉄を削り出 して製作する。そのため、回転子表面にはギャップ 高調波磁束に起因する渦電流が生じる。RNAにおい て、このような渦電流を算定するためには、Fig.2 に示すように、導体を分割要素の形状・寸法と導電 率から求まる電気回路網モデルで表し、磁気回路網 モデルと連成すれば良い¹⁾。

Fig.3に、回転子表面の電気回路網モデルの一部 を示す。本モデルをクローポールモータの3次元磁 気回路網モデルと連成することで、様々な運転状態 における回転子表面の渦電流損を算定することが可 能になる。Fig.4に、回転子表面に生じる渦電流損 の算定結果を示す。また比較のため、3次元有限要 素法による算定結果も示す。この図を見ると、両者 は良く一致しており、本手法の有用性が了解される。

参考文献

ーノ倉,田島,中村,吉田,「磁気回路法によるモータの解析技術」,科学情報出版 (2016)
 1) 市川,中村,鄭,栗本,日本磁気学会論文特集号,2,29 (2018)



Fig. 1 Basic configuration of a claw-pole motor.



Fig. 2 Electric circuit model for calculating eddy current loss.



Fig. 3 Electric network model of a rotor surface of the claw-pole motor.



Fig. 4 Comparison of calculated eddy current losses.

移動支援機器用インホイール磁気ギヤードモータの高効率化

伊藤亘輝,門松孝尚,中村健二 (東北大学)

Efficiency Improvement of In-Wheel Magnetic-Geared Motor for Walking Support Machines

K. Ito, T. Kadomatsu, K. Nakamura

(Tohoku University)

1. はじめに

磁気ギヤードモータは、同一のトルク発生原理を有 する永久磁石モータと磁気ギヤを、磁気的に一体化さ せた構成を有するため、小型化や部品点数の削減が期 待できる。先に筆者らは、試作機を用いて実現可能性 と有用性を示したが、その一方で、効率についてはさ らなる改善が必要であることが明らかになった¹⁾。

本稿では、3次元有限要素法(3D-FEM)を用いて、 トルク向上と損失低減の両面から磁気ギヤードモー タの高効率化について検討を行った。次いで、これら の検討に基づき、改良機を試作して実証実験を行うと ともに、移動支援機器への適用可能性についても評価 したので報告する。

2. 改良型磁気ギヤードモータの構成

Fig.1に、改良型磁気ギヤードモータの基本構成と 諸元を示す。本ギヤードモータは、磁束変調型磁気ギ ヤの内側回転子の内部に、回転磁界を発生させるため の電機子を収めた構造を有する。これにより、磁束変 調型磁気ギヤの内側回転子が、永久磁石モータの回転 子も兼ねることになり、部品点数が削減される。モー タ部は3相9スロット集中巻の固定子と4極対の内 側回転子からなり、磁気ギヤ部はモータ部の回転子 と、27極のポールピース、そして23極対の外側回転 子で構成される。したがって、ギヤ比は5.75(=23/4) となる。

3D-FEM によるトルク向上と損失低減の検討に基づき,同図の改良型磁気ギヤードモータは,固定子をオープンスロット構造,内側回転子を埋込磁石構造とし,固定子・回転子鉄心には 6.5%Si-Fe を採用した。なお.ポールピースの材質は圧粉磁心,磁石材料はNd-Fe-B 焼結磁石である。

3. 実証実験および移動支援機器への適用評価

Fig. 2 に,実証実験の結果を示す。なお,この時の 外側回転子の回転速度は 174 rpm である。この図を 見ると,最大効率は負荷トルク 11 N m 時の 84.7%で あり,先行研究 いに対して,約 15%の向上を達成した。

さらに,移動支援機器への適用可能性について,改 良機のトルク - 速度特性や走行抵抗などを基に試算 したところ,路面が良好なアスファルトかつ低勾配時 には、十分に適応可能であることが明らかになった。 なお、本研究の一部は JSPS 科研費 基盤(B) JP16H04310の助成を受け行った。



Fig. 1 Specifications of the improved magnetic-geared motor.



Fig. 2 Load characteristics of the trial magnetic-geared motor.

<u>参考文献</u>

1) 中村健二, 秋本一輝, 一ノ倉理, 電気学会マグネティックス研究会資料, MAG-16-037 (2016)

LLG 方程式を利用した鉄心加工劣化予測手法に関する検討

羽根 吉紀, 中村 健二, *吉岡 卓哉, *川瀬 剛志, *石川 智一 (東北大学, *(株)デンソー)

Deterioration Prediction Method of Magnetic Properties in Magnetic Core due to Machining Process by using LLG Equation

Y. Hane, K. Nakamura, *T. Yoshioka, *T. Kawase, *T. Ishikawa (Tohoku University, *DENSO CORPORATION)

はじめに

モータなどの電気機器の鉄心材料に使用される電 磁鋼板は,製造工程における加工の際,結晶粒に歪 みが生じ,この影響で磁気特性が劣化し,機器の性 能が悪化することが知られている。したがって,電 気機器の高性能化のためには,加工による磁気特性 の劣化まで考慮した解析手法の確立と,それに基づ く,鉄心材料の最適な加工法の構築が必要不可欠で ある。しかしながら,任意の鉄心材料の加工後の磁 気特性を実測することは,実用上,必ずしも容易で はないことから,何らかの方法による推測が必要で ある。

そこで本稿では、電気機器への適用を目的として、 文献 1)で提案された簡略化された LLG 方程式に着 目し、加工前の材料の磁気特性を基に、加工後の特 性を推定する手法について検討を行ったので報告す る。

LLG 方程式を利用した加工後の鉄心材料の磁 気特性の計算結果

Table 1 および Fig. 1 に,それぞれ考察に用いた試料の諸元および寸法を示す。試料 1 は加工していない状態の材料である。試料 2 は,試料 1 に対して圧延を施し,厚みを変化させたものである。

Fig. 2 に,各試料の直流ヒステリシスループの実 測値を示す。この図を見ると,加工することでルー プの形状が元の状態から大きく劣化することがわか る。

次いで,加工前の材料の磁気特性をもとに加工後 の特性を予測するにあたり,ここでは加工前後の保 磁力の実測値の比を補正係数として,これを上述の LLG 方程式にパラメータとして与えた。

提案手法の妥当性を確認するために、上述の手法 を用いて計算したヒステリシスループを実測値と比 較検証した。Fig. 3 に、ヒステリシスループの実測 値と計算値の拡大図を示す。この図を見ると、提案 手法によって材料の磁気特性を精度良く算定可能で あることが了解される。

参考文献

1) 古屋,藤崎,上原,清水,大島,村上,高橋:「高周波 駆動における電磁鋼板の鉄損評価解析」,電学研資 SA-13-6, RM-13-6 (2013)

Table 1	Specifications of test	st samples.
---------	------------------------	-------------

fucto i opeenteurons of test sumptest					
Sample No.		1	2		
Rolled ratio	%	0	3		
Density	kg/m ³	7600			





Fig. 3 Measured and calculated dc hysteresis loops.

埋込磁石型磁気ギヤのトルク向上に関する検討

水穴裕真,中村健二,*鈴木雄真,*大石悠平,*立谷雄一,*操谷欽吾 (東北大学,*㈱プロスパイン)

Torque Improvement of Interior Permanent Magnet Magnetic Gear Y. Mizuana, K. Nakamura, Y. Suzuki, Y. Oishi, Y. Tachiya, K. Kuritani (Tohoku University, *Prospine Co., Ltd.)

はじめに

磁気ギヤは非接触で増減速可能であるため,機械 式ギヤと比べて振動や騒音が小さく,保守性に優れ る。その中でも磁束変調型磁気ギヤは,他の磁気ギ ヤと比べてトルク密度が高いことから¹⁾,実用化が 期待されている。一方,回転子磁石には非同期の高 調波磁束に由来する渦電流損が生じることが知られ ている。これに対し,回転子磁石をスポーク状に埋 め込むことで,磁石渦電流損を低減する手法が提案 されているが²⁾,有効磁束の減少に伴う,トルクの 低下が懸念される。

本稿では、回転子磁石の形状に着目し、埋込磁石 型(IPM)磁気ギヤのトルク向上に関する検討を行 ったので報告する。

IPM 磁気ギヤのトルク向上に関する検討

Fig. 1 に、従来の IPM 磁気ギヤを示す。回転子磁 石はスポーク状に埋め込まれており、磁気ブリッジ がギャップ側に設けられている。また、バックヨー クには非磁性のステンレスを用いることで、磁気回 路の短絡を防いでいる。

Fig. 2は,比較対象とした表面磁石型(**SPM**)磁 気ギヤである。全磁石体積が,**Fig. 1**の**IPM**磁気ギ ヤと等しくなるように設計してある。

Fig. 3 に、本稿で提案する IPM 磁気ギヤを示す。 内外回転子磁石の形状を台形にすることで、Fig. 1 および 2 の磁気ギヤと同体格のままで、磁石量を増 加させた。また、磁気ブリッジをギャップ側ではな く、非磁性ヨーク側に設けることで、ブリッジ部で の漏れ磁束の低減を図った。

Fig. 4 に、3 次元有限要素法で求めた、外側回転子 の最大トルクと効率の算定結果を示す。なお、この 時の高速側の回転数は 300 rpm である。同図(a)を見 ると、提案する IPM 磁気ギヤ(Trapezoid)の最大ト ルクは 39.2 N·m であり、従来の IPM 磁気ギヤ (Conventional)の 2.5 倍以上であることがわかる。 さらに、SPM 磁気ギヤに対しても、トルクは約 20 %

上回っている。また、同図(b)から、効率に関しても 提案のIPM磁気ギヤが最も優れていることがわかる。 なお、本研究の一部は JSPS 科研費 基盤(B)

JP16H04310の助成を受け行った。

参考文献

1) K. Atallah and D. Howe, IEEE Trans. Magn., 37, 2844 (2001).

 T. Ikeda, K. Nakamura, and O. Ichinokura, J. Magn. Soc. Jpn., 33, 130 (2009).



Fig. 1 Specifications of a conventional IPM magnetic gear.



Fig. 2 Specifications of an SPM magnetic gear.

10.33

150 mm

25 mm

3

31

34

35A250

Sintered Nd-Fe-B



Fig. 3 Specifications of a proposed IPM magnetic gear.



Fig. 4 Comparison of torque and efficiency of the magnetic gears.

横方向磁束型スイッチトリラクタンスモータの試作試験

小森谷 太希,伊藤 裕貴,中村 健二 (東北大学)

Prototype Tests of Transverse-Flux-type Switched Reluctance Motor T. Komoriya, Y. Ito, K. Nakamura (Tohoku University)

はじめに

我が国においては、総発電電力の約6割がモータ で消費されている現状から、小型高出力で高効率な 希土類磁石モータの需要が増大している。その一方 で、希土類は高価であり、資源も偏在していること から、希土類が不要なモータに対する期待も高い。

スイッチトリラクタンスモータ(SRM)は、構成 が簡単で堅牢、かつ永久磁石が不要であることから 応用範囲の拡大が期待されている。ただし、希土類 磁石モータと比べて、一般にトルクや効率は劣るな どの欠点がある。

これまで筆者らは、アキシャルギャップ型など、 構造の工夫による SRM のトルク向上に関して、様々 な検討を行ってきた¹⁾。本稿では、新たに横方向磁 東型 SRM (Transverse- Flux-type SRM: TFSRM) に着 目し、3 次元有限要素法 (3D-FEM) による解析・設 計と、実証機の試作・試験を行ったので報告する。

TFSRM の基本構成と試作試験結果

Fig.1に、3相TFSRMの基本構成を示す。各相は 固定子、回転子ともに同数のC形コアと、固定子コ アの内側に収められたトロイダルコイルからなり、 これを電気角で120度ずつ空間的位相をずらして、 軸方向に積み重ねることで構成される。TFSRMはC 形コアを用いることから、一般的な無方向性ケイ素 鋼板ではなく、より飽和磁束密度の高い方向性ケイ 素鋼板が使用でき、コイルもトロイダル形状である ことから巻線占積率を高めることができる。したが って、通常のラジアルギャップ型SRMよりも大き なトルクが得られることが期待される。

Fig. 2 に, 3D-FEM を用いて設計した TFSRM の試 作機の外観と諸元を示す。モータの相数や極数など の基本構成は, Fig. 1 に示したものと同一である。

Fig. 3 に、トルク対速度特性を示す。この図を見ると、ほぼ設計通りであることがわかる。一方、Fig. 4 の電流密度対トルク特性を見ると、軽負荷領域では設計通りであるのに対して、負荷の増大に伴い、誤差が拡大していることがわかる。これは 3D-FEM において無視した、C 形コアの支持構造や相間干渉の影響であると考えられる。今後は、上記影響の評価と改善策について検討を行う予定である。

参考文献

1) 小野, 中村, 一ノ倉, "アキシャルギャップ型 SR モータの 構成に関する基礎的検討", 日本磁気学会誌, **35**, 106 (2011)



Fig. 1 Basic configuration of TFSRM.



Fig. 2 Specifications of a prototype TFSRM.



Fig. 3 Comparison of torque versus rotational speed characteristics.





冷却ファン用高速回転モータの高効率化に関する検討

川村恭平,中村健二,一ノ倉理,*後藤博樹,**郭海蛟 (東北大学,*宇都宮大学,**東北学院大学) Efficiency Improvement of High-Speed Cooling-Fan Motor K. Kawamura, K. Nakamura, O. Ichinokura, *H. Goto, **H. J. Guo (Tohoku University, *Utsunomiya University, **Tohoku Gakuin University)

はじめに

エネルギー変換システムの代表格であるスイッチ ング電源やモータドライブシステムは、常に小型高 出力化が強く求められているが、出力密度の向上に 伴い、局所的な損失の増大と、それに伴う発熱の問 題が顕在化している。エネルギー変換システムにお ける冷却手段としては、ファンによる強制風冷が一 般的であるが、従来、これらのファンに用いられる モータはコストが最優先であったため、いわゆる矩 形波駆動方式が採用され、効率も決して高く無い。 一方で、冷却ファン用モータは常時駆動し続けるこ とから、その効率改善はシステム全体の省エネルギ ー化に寄与するところが少なくない。

本稿では、今後重要視されることが確実な冷却フ アン用モータの高効率化について、モータ構造の観 点から検討を行ったので報告する。

2種類の冷却ファン用モータの性能比較

本稿では、冷却ファン用モータとして、2 種類の 永久磁石モータを設計し、比較検討を行った。なお、 設計目標は回転数を 12600 rpm、トルクを 200 mN·m とし、駆動は従来の矩形波では無く、高効率化のた め、電流ベクトル制御による正弦波駆動を想定した。

Fig. 1 および Fig. 2 に, 設計した表面磁石型(SPM) と埋込磁石型(IPM)のモータの諸元を示す。どち らも3相6スロット4極のインナーロータ型であり, 体格や巻線の仕様は同一である。また,高速回転に 伴う磁石渦電流損を抑止するため,ネオジムボンド 磁石を採用した。ただし,磁石性能という観点から 見ると,ネオジム焼結磁石には劣るため,SPM モー タについては,一般的な径方向着磁では無く,極異 方性着磁を採用した。一方,IPM モータについては, 磁石を2層とすることで,リラクタンストルクを増 大させる工夫を施した。これらのモータについて,3 次元有限要素法を用いて,特性の算定を行った。

Fig. 3(a)に、電流密度対トルク特性の算定結果を示 す。この図を見ると、目標トルク到達時の電流密度 は SPM モータの方が低いことがわかる。一方、同図 (b)の損失特性を見ると、銅損は SPM モータの方が 低いが、それ以上に鉄損が大きいことがわかる。そ のため、Fig. 4 の効率は IPM モータの方が、特に軽 負荷側で上回っていることが了解される。



Fig. 1 Spesifications of an SPM motor.



Fig. 2 Spesifications of an IPM motor.



(a) Torque characteristics (b) Loss characteristics Fig. 3 Comparison of basic characteristics of the SPM and IPM motors.



Fig. 4 Efficiency comparison of the SPM and IPM motors.

磁性塗布線を用いた近接効果に起因する交流抵抗の低減

鳥島健太,山本達也,卜穎剛,水野勉,本田祐樹* (信州大、*日立金属株式会社) Reduction of AC resistance caused by proximity effect using magnetocoated wire K.Torishima, T.Yamamoto, Y.Bu, T.Mizuno, Y.Honda (Shinshu Univ., *Hitachi Metals, Ltd.)

<u>はじめに</u>

電気電子機器は回路の駆動周波数を高周波化することで小型化,軽量化が図られている。しかし,駆動周 波数の高周波化に伴い銅線では表皮効果,および近接効果に起因する抵抗が増加する¹⁾。そこで,筆者らは 近接効果に起因する抵抗を低減するために磁性塗布線(Magnetocoated wire 以下, MCW)を開発した。本論文で は MCW でコイルを製作し,インピーダンスの測定結果について報告する。

<u>コイルの構造</u>

銅線(Copper wire 以下, COW)と MCW を用いたコイルを製作した。Fig.1 に COW と MCW の断面図を示した。MCW は銅(Cu)線の外周に磁性層が設けられている。磁性層にはファインメット[®] (FT-3)とポリイミドを 混合した磁性コンポジット材料を使用した。Fig.2 にコイルの構造図を示した。広い周波数範囲における抵抗 低減効果を確認するために, 巻数 N = 9, 144 の 2 つのコイルを製作した。

<u>測定結果</u>

Fig.3にコイルの抵抗-周波数特性の実測値を示した。9回巻のコイルにおいて,周波数1MHzのときのCOW, MCWの抵抗は、それぞれ311mQ、211mQであった。COWの抵抗と比較して、MCWの抵抗は32.1%低減した。また144回巻のコイルにおいて、周波数10kHzのときのCOW、MCWの抵抗は、それぞれ5.0Q、4.0Qであった。COWの抵抗と比較して、MCWの抵抗は20.0%低減した。上述の抵抗の低減は磁性塗布線の近接効果の抑制に起因する。磁性塗布線は10kHzから1MHzの幅広い周波数範囲において交流抵抗が低減した。



参考文献

 T.Mizuno, S.Enoki, T.Hayashi, T.Asahina, and H.Shinagawa : Extending the Linearity Range of Eddy-Current Displacement Sensor With Magnetoplated Wire, IEEE Transactions on Magnetics, Vol.43, No.2, pp543-548(2007)

有機インターポーザ内蔵 LLC 共振型 DC-DC コンバータ用 磁性微粒子複合材料磁心トランスの基礎検討

岡 亮太郎, 白澤 智寛, 石田 嵩, 秋山 知輝, 佐藤 敏郎, 曽根原 誠 (信州大学)

Fundamental study of a magnetic particle composite core transformer for the LLC resonance DC-DC convertor embedded in an organic interposer R. Oka, T. Shirasawa, S. Ishida, T. Akiyama, T. Sato, M. Sonehara (Shinshu University)

はじめに

パソコンや携帯電話の高性能化・多機能化に伴い、それらに搭載される LSI は低電圧かつ大電流で駆動しているが、電源と LSI 間の配線における損失の増大が問題となっている.この問題の解決策の一つとして、 電源回路を LSI パッケージに内蔵する手法が挙げられ、小型化できる利点もある¹⁾.

著者らは、大きな降圧比が期待でき、かつ数十 MHz スイッチング周波数の LLC 共振型 DC-DC コンバータ に注目し、その有機インターポーザ内蔵を目指している.本稿では、その基礎検討として磁性微粒子複合材 料磁心トランスの電磁界解析の結果について述べる.

解析方法

磁性微粒子複合材料磁心トランスの電磁界解析には、完全 3 次元 Full-wave 電磁界解析ソフトウェア (ANSYS; HFSS)を用いた.解析空間は、60 mm³の十分広い自由空間を設定し、Fig. 1 に示すような LSI イ

ンターポーザ基板の積層工程で作製可能なトランスについて解 析した.トランスは磁性微粒子複合材料シート内に埋め込まれ ている構造になっており,既報の有機インターポーザ内蔵プレ ーナインダクタと同様な構造である^{2),3)}.複合材料には,高い比 透磁率を有する鉄系アモルファス合金粉/エポキシ複合材料シ ートを想定した.また本稿では,一次巻線と二次巻線の間(Fig. 1 (c)における赤枠線内)の複合材料シートの有無について比較 した解析結果を述べる.

解析結果

LLC 共振型 DC-DC コンバータに本トランスを利用するにあ たり,結合係数 k は重要である.本解析では,一般的な LLC コ ンバータのトランスにおける k である 0.9 程度を目標とした. Fig. 2 に本トランスにおける一次巻線と二次巻線の間の複合材 料シート有無の k の周波数特性を示す.同図より,一次巻線と 二次巻線の間が複合材料シートでない非磁性のラミネーション シートの方が複合材料シートとするよりも k が高くなることが 分かった.これは一次巻線から生じる磁束と二次巻線から生じ る磁束が互いに打ち消し合い, k が低減したと考えられる.以 上より,一次巻線と二次巻線の間を非磁性シートにすることで 目標の k が得られる可能性があり,今後はこの構造を基に有機 インターポーザ内蔵 LLC 共振型 DC-DC コンバータの開発を進 める予定である.発表当日は,詳細な解析結果について述べる.

参考文献

- 1) H. Kobayashi, et al.: JMSJ, 37, 4, 314-319 (2013).
- 2) Y. Sugawa, et al.: IEEE Trans. Magn., 49, 7, 4172-4175 (2013).
- 3) Y. Yazaki, et al.: IEEE Trans. Magn., 50, 11, #8401304 (2014).



(c) Cross-sectional view Fig. 1 Schematic view of analysis model in magnetic particle composite core transformer.



Fig. 2 Analysis results of frequency dependence of coupling coefficient k in the transformer.

磁気機能性流体による平面研磨用工具の設計

池田愼治,松葉寿明*,藤平晃太朗*,山本久嗣*,西田 均* (公立小松大学,*富山高等専門学校)
Design of Micro Processing Tools for Flat Plate Utilizing Magnetic Functional Fluid S. Ikeda, T. Matsuba*, K. Fujihira*, H. Yamamoto*, H. Nishida* (Komatsu University, *National Institute of Technology Toyama College)

はじめに

磁気混合流体(MCF)はナノ、マイクロオーダーの磁性微粒子を分散させた感磁性コロイド溶液である。 MCF に非磁性砥粒を混合した上で、磁界によって微粒子を磁気クラスタ化し、加工対象面に対して摩擦運動 させ、精密加工を行う¹⁾²⁾。優れた加工特性が見出されている半面、効率的な工具設計の手法は確立されていな い。工具形状の工夫とその効果について、磁界数値解析により明らかにすることを目的とした。

数値解析の方法と結果

本研究の対象は、平面を対象とした精密加工である。この加工の様子を Fig.1に示す。加工工具は先端を円錐状に絞った形状で、先端は半径2.5 mm の平面である。先端を細くすることにより、狭い領域の加工が可能となる一 方で、磁路としての磁気抵抗が大きくなり、回転運動による加工距離も短く なるため加工能力は低下する。よって、これらのトレードオフを踏まえた工 具設計が重要となる。

先端のテーパ形状を変えて、微細加工を可能としつつ加工能力を高めることを目的として、磁界数値解析を行った。工具先端外周近傍(r=2.5)およびテーパ部上端近傍(r=10.05)の磁束密度をFig.2に示す。

これまでの研究により、加工面における磁束密度が最大となるのは、工具 先端の平面部の外周近傍であり、外周の外側の領域で加工量が最大であるこ とが明らかとなっている。また、加工に必要な MCF を保持するために必要 な磁束密度は、加工面において 0.18 T 程度あれば十分と見積もられている。 テーパ長を 5.0 mm の短テーパとした工具による実験の結果、工具先端以外

の部分でも多くの MCF が保持され、特にテーパ上端部での磁気クラスタ形成が目立った。加工面との距離が大きい場所に 0.35 mm

保持された MCF は加工に寄与しないため加 工量は低下した。これは工具先端よりテーパ 上端部の鈍角部に磁束が集中し、ここに多く の MCF が保持されるためであることが Fig.2 の計算結果より裏付けられた。

今後、微細加工と良好な加工量を両立でき る工具の設計を可能とするよう、検討を進め る予定である。



参考文献

- Fig.2 Magnetic flux density of edge part of polishing tools.
- 1) H. Nishida, et. al., Journal of JSAEM, Vol 22, pp.286-292 (2014)
- 2) Hitoshi Nishida, et. al., Journal of JSEM, Vol. 12, No. 4, pp.361-368 (2012)



Fig.1 Schematic view of MCF Polishing for flat plate

density [T]

Flux

Controlling the all-in-all-out magnetic domains in pyrochlore iridate thin films and heterostructures

Y. Kozuka¹

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

Domain walls of ferromagnetic or ferroelectric materials have attracted little attention as active elements of devices, but rather are considered to form as metastable objects of ferroic domains. In the case of ferromagnetic metal, domain walls frequently act as scatterers of electrons, deteriorating the device operation. Here we present transport properties of pyrochlore iridate thin films and heterosturctures, where metallic conduction at the domain walls are theoretically proposed while the bulk is kept insulating in stark contrast to conventional ferromagnetic metal.

Pyrochlore materials, expressed as $A_2B_2O_7$ (*A*: rare-earth, *B*: transition metal), are composed of tetrahedral network of rare-earth and iridium sublattices, respectively as shown in Fig. 1. Characteristic of this compound is the all-in-all-out spin structure, where all the four spins at the vertices of a tetrahedron point inward or outward alternatingly due to the cooperation of strong spin-orbit interaction and spin frustration. Although the all-in-all-out spin structure is antiferromagnetic, there are clearly distinct two magnetic domains as shown in Fig. 1, which we call A domain and B domain for simplicity. While pyrochlore iridates are metallic in the paramagnetic phase above the Neel temperature T_N , the all-in-all-out spin structure is theoretically predicted to induce intriguing semimetallic or insulating phases below $T_N^{(1)}$ depending on the strength of electron correlation tuned by the choice of rare-earth ions; the smaller the rare-earth ions are, the stronger the electron correlation is. Additionally, in the insulating phase, conducting domain walls are theoretically predicted, ²⁾ followed by experimental observation by microwave impedance microscopy.³⁾ Although the electronic phases of the pyrochlore iridates have recently been gradually clarified experimentally, thin films are still difficult to fabricate and controlling the domain walls is not easily accessible in heterostructures. In this study, we aim at fabricating pyrochlore iridate thin films and heterostructures to artificially control the all-in-all-out magnetic domains.

The pyrochlore iridate thin films are fabricated by pulsed laser deposition using Y-stabilized ZrO_2 (111) substrates. The oxygen partial pressure and substrate temperatures are varied to find optimum growth conditions but the epitaxial $Eu_2Ir_2O_7$ films are not obtained probably due to low formation energy of pyrochlore iridates. Instead, we anneal the thin films after depositing amorphous films, resulting in successful formation of $Eu_2Ir_2O_7$ thin films. This method, so-called solid-state epitaxy, is also found to be applicable to pyrochlore iridate thin films with other rare-earth ions. X-ray diffraction and transmission electron microscope also show single crystalline $Eu_2Ir_2O_7$ thin films are formed.⁴⁾

For controlling the all-in-all-out magnetic domain wall, we have fabricated $Eu_2Ir_2O_7/Tb_2Ir_2O_7$ heterosturucutres.⁵⁾ Eu^{3+} is nonmagnetic, while Tb^{3+} has a large magnetic moment of J = 6. Thus, we expect that magnetic domains of $Eu_2Ir_2O_7$ is not sensitive to external magnetic field and the domains of $Tb_2Ir_2O_7$ may be switched by magnetic field. Figure 2 shows magnetoresistance (MR) of $Eu_2Ir_2O_7$ and $Tb_2Ir_2O_7$ thin films. In the case of $Eu_2Ir_2O_7$, MR does not show hysteresis, but



Fig. 1. Ir sublattice of pyrochlore iridate A_2 Ir₂O₇ (*A*: rare-earth) and spin structures of two all-in-all-out magnetic domains (A domain and B domain).



Fig. 2. Magnetoresistance of (a) $Eu_2Ir_2O_7$ and (b) $Tb_2Ir_2O_7$ thin films at 2 K. For $Eu_2Ir_2O_7$ thin film, magnetoresistance is measured after cooling the sample under + 9 T and -9 T, while that of $Tb_2Ir_2O_7$ thin film shows double hysteresis, indicating domain switching. The insets are expected domains of Ir spins.

is asymmetric with respect to magnetic field. The sign of the asymmetric part is inverted between positive and negative field cooling, which suggests that all-in-all-out magnetic domain is selectively stabilized by the polarity of the magnetic field. In contrast, MR possesses double hysteresis for the $Tb_2Ir_2O_7$ thin film, suggestive of magnetic domain switching.⁶⁾ The stabilization of the all-in-all-out domains can be visualized by scanning SQUID microscopy.⁷⁾ Although all-in-all-out spin structure in the cubic symmetry does not produce dipole moment, subtle distortion of the lattice can hold dipole moment, the sign of which depends on the all-in-all-out magnetic domain. Figure 3 shows the images of scanning SUQID microscope. Under zero-field cooling, magnetic domains are clearly observed. After warming up and cooling down the sample from 130 K under positive magnetic field, uniform shift of magnetic field is observed. This

result clearly demonstrates the above assumption that the all-in-all-out magnetic domains can be selectively stabilized by cooling magnetic field.

Finally, we fabricated $Eu_2Ir_2O_7/Tb_2Ir_2O_7$ heterostructure and measured the magnetoconductance at the interface as shown in Fig. 4. The interface conductance exhibits hysteresis. Obviously, interface conductance is higher when the magnetic domains of $Eu_2Ir_2O_7$ and $Tb_2Ir_2O_7$ layers are opposite than when those magnetic domains are the same. This result indicates that the domain wall conduction is successfully controlled in the heterostructure with selective domain stabilization.

The scanning SQUID measurement was performed under the Inter-university Cooperative Research Program of the Institute for Materials Research, Tohoku University (Proposal No. 15K0063).

Reference

- 1) X. Wan et al., Phys. Rev. B 83, 205101 (2011).
- Y. Yamaji and M. Imada, Phys. Rev. X 4, 021035 (2014).
- 3) E. Y. Ma et al., Science 350, 538 (2015).
- 4) T. C. Fujita *et al.*, Sci. Rep. **5**, 9711 (2015).
- 5) T. C. Fujita et al., Phys. Rev. B 93, 064419 (2016).
- T. C. Fujita *et al.*, Phys. Rev. Mater. 2, 011402(R) (2018).
- 7) Y. Kozuka et al., Phys. Rev. B 96, 224417 (2017).



Fig. 3. Scanning SUQID images of a $Tb_2Ir_2O_7$ thin film at 4.7 K after (a) zero-field cooling and (b) cooling under positive magnetic field from 130 K.



Fig. 4. Conductance at the $Eu_2Ir_2O_7/Tb_2Ir_2O_7$ heterointerface after cooling under +9 T.

Atomic-scale studies of structural and electronic properties in functional transition metal oxide thin films using scanning tunneling microscopy/spectroscopy

Ryota Shimizu^{1,2}

¹School of Materials and Chemical Technology, Tokyo Institute of Technology, ²JST-PRESTO

Discovery of high- T_c superconductivity in cuprate has triggered enormous attention on strongly-correlated electron systems in transition metal oxides for decades. To elucidate the mechanism of exotic physical properties, many progressive efforts have been made to dramatically improve the resolution in measurements such as angle-resolved photoemission spectroscopy and scanning tunneling microscopy/spectroscopy (STM/STS). Nowadays, these techniques are widely used to understand structural and electronic properties in a variety of bulk cleavable materials as well as layered perovskite oxides. However, due to the poor cleavability, there are few reports on atomic-scale studies of three-dimensional perovskite oxides.

To overcome this problem, we focused on high-quality epitaxial thin films as a specimen, and *in-situ* studied the structures and electronic states on the thin film surfaces of transition metal oxides at the atomic level. For this purpose, we constructed ultrastable low-temperature STM combined with pulsed laser deposition (PLD) system[1] to eliminate the influence of surface contamination. In this talk, I show our atomic-scale investigations of SrTiO₃(100) substrates[2] (Fig. 1(a)) and thin film surfaces of perovskite-type La_{0.75}Ca_{0.25}MnO₃ (ferromagnet, Fig. 1(b))[3] and spinel-type LiTi₂O₄ (superconductor, Fig. 1(c))[4] using low-temperature STM/STS.

On a La_{0.75}Ca_{0.25}MnO₃/SrTiO₃(100) thin film surface, we observed uniaxial zigzag ($\sqrt{2} \times \sqrt{2}$) stripes with two orthogonal domains, accompanying an energy gap at the Fermi level. Combined with theoretical calculations, we found that the electrical dead layer (gap opening) at the surface is induced by the relaxation of the topmost truncated octahedra (MnO₅) correlated with the Mn 3*d* orbital reconstruction[3]. Furthermore, on a LiTi₂O₄/SrTiO₃(111) thin film surface, we succeeded in the observation of clear triangular lattices and superconducting properties (gap and vortex state) in tunneling spectra[4]. Thus, our PLD-STM studies open a path for atomic-scale visualization of functional transition metal oxides with three-dimensional structures.

This work was performed by the collaboration with Prof. T. Hitsougi, Dr. K. Iwaya, Dr. T. Ohsawa, Dr. Y. Okada, Prof. S. Shiraki, Dr. T. Hashizume, Dr. Y. Ando, Dr. E. Minamitani, and Prof. S. Watanabe. This work was also supported by KAKENHI, JST-PRESTO, and WPI Program.



Figures: STM images on (a) SrTiO₃(100) substrate and (b) La_{0.75}Ca_{0.25}MnO₃(100) and (c) LiTi₂O₄(111) thin films.

References

- [1]: Iwaya et al., Rev. Sci. Instrum. (2011), J. Vac. Sci. Technol. (2012),
- [2]: Shimizu et al., ACS Nano (2011), Appl. Phys. Lett. (2012), J. Am. Chem. Soc. (2014).
- [3]: Shimizu et al., Cryst. Growth & Des.(2014), 2016 Autumn Meeting in The Physical Society of Japan
- [4]: Okada et al, Nat. Commun. (2017).

Origin of interfacial ferromagnetism between perovskite transition-metal oxides LaNiO₃ and LaMnO₃

M. Kitamura^{1,2}, K. Horiba¹, M. Kobayashi¹, E. Sakai¹, M. Minohara¹, R. Yukawa¹, D. Shiga¹, K. Amemiya¹, T. Nagai³, Y. Nonaka⁴, G. Shibata⁴, A. Fujimori⁴, H. Fujioka², and H. Kumigashira¹
 ¹Institute of Materials Structure Science, High Energy Accelerator Research Organization, Tsukuba

305-0801, Japan

²Institute of Industrial Science, The University of Tokyo, Meguro-ku 153-8505, Japan ³National Institute for Material Science, Tsukuba 305-0044, Japan

⁴Graduate School of Science, The University of Tokyo, Bunkyo-ku 113-0033, Japan

Heterointerfaces between perovskite transition-metal oxides have attracted much attention because of their novel electronic and/or magnetic properties that are absent in their bulk form. Recently, it has been reported that an unusual spin order occurs in a paramagnetic LaNiO₃ (LNO) layer in the heterointerface region with a "ferromagnetic" LaMnO₃ (LMO) layer, resulting in the appearance of the exchange bias between the two oxides¹). For understanding these exotic magnetic properties appearing at the heterointerface between LNO/LMO, it is indispensable to elucidate the relationships between the electronic states at the heterointerface, especially the interfacial charge transfer between Ni and Mn ions, and the interfacial ferromagnetism. In this study, we have investigated the electronic and magnetic states of both the transition-metal ions in the interfacial region by utilizing the elemental selectivity and surface (interface) sensitivity of x-ray absorption spectroscopy (XAS): The changes in valence of both ions caused by the interfacial charge transfer and resultant spatial distributions of the transferred charges are determined by XAS, while the induced magnetization by magnetic circular dichroism (MCD) of XAS.

The XAS measurements on toplayer for both LNO/LMO and LMO/LNO bilayers demonstrated the occurrence of the electron transfer from LMO layers to LNO layers ($Ni^{3+} + Mn^{3+} \rightarrow Ni^{2+} + Mn^{4+}$) in the interface region²). Thus, to evaluate the spatial distribution of the interfacial charge transfer, we have measured the thickness dependent XAS spectra of underlayers for LNO/LMO and LMO/LNO bilayers as shown in Fig. 1. As can be seen in Fig. 1, the XAS spectra exhibit the small but distinct spectral modulation reflecting the valence changes due to the interfacial electron transfer. Furthermore, a closer look reveals that the spectral change of Mn-L_{2.3} XAS are totally saturated by 1-ML LNO deposition on LMO layer, while that of Ni-L2,3 XAS seems to continue up to 3-4 ML deposition of LMO overlayer on LNO. These results demonstrate that the spatial distribution of the interfacial charge transfer is significantly different between the two layers. Judging from the saturation of spectral change in the underlayer, the interfacial region subject to the charge transfer is evaluated to be about 1 ML for the LNO side, while 3-4 ML for the LMO side²⁾. Meanwhile, the Ni-L2.3 x-ray MCD spectra of LMO/LNO/LMO sandwiched structures revealed that net magnetization was induced only in the Ni²⁺ ions at a 1-ML LNO layer adjacent to the interface owing to the interfacial charge transfer. As for the counterpart Mn ions, the magnetic moment increased from that of LMO bulk within the 3-4 ML LMO layers from the interface where the transferred holes were distributed. Furthermore, both magnetic moments were ferromagnetically coupled to each other. These results suggest that the stabilization of ferromagnetism in LMO layers due to the interfacial charge transfer and the resultant ferromagnetic coupling between Ni and Mn spins are keys to understanding the induced net magnetization in Ni ions at the interface.

Reference

1) M. Gibert et al., Nat. Mater. 11, 195 (2012).

2) M. Kitamura et al., Appl. Phys. Lett. 108, 111603 (2016).



Fig. 1 (a) Mn- $L_{2,3}$ XAS spectra of the LMO *underlayer* of LNO/LMO bilayers (b) Ni- $L_{2,3}$ XAS spectra of the LNO *underlayer* of LMO/LNO bilayers.

Ferroelectric and Magnetic Properties in Room-Temperature Multiferroic GaFeO₃-type Thin Films

T. Katayama¹, S. Yasui², Y. Hamasaki³, and M. Itoh²

¹The University of Tokyo, Tokyo 113-0033, Japan ²Tokyo Institute of Technology, Yokohama 226-8503, Japan ³National Defense Academy, Kanagawa 239-8686, Japan

Multiferroic materials exhibiting ferromagnetic and ferroelectric properties in a single phase have been eagerly studied due to their fascinating physics and novel technological applications such as fast-writing, power-saving, and non-destructive data storage. However, such multiferroic materials rarely exhibit both spontaneous magnetization and polarization at room temperature. GaFeO₃-type iron oxides are promising multiferroic materials due to the coexistence of a large spontaneous magnetization and polarization near and above room temperature as well as their multiferroic properties such as magnetic-field-induced modulation of polarization. GFO consists of one tetrahedral (T_d) Ga1 site and three octahedral (O_h) Ga2, Fe1, and Fe2 sites. The ferrimagnetism in GFO is derived from superexchange antiferromagnetic interactions between Fe ions, where the Fe ion magnetic moments at Ga1 and Fe1 sites are antiparallel to those at Ga2 and Fe2 sites. Especially, the Fe $3d^5$ orbital at the Fe2 site has strong hybridization with O 2p orbitals, producing a large spin-orbit interaction. This interaction leads to a much larger coercive field (H_c) of 20 kOe at 300 K in GFO-type Fe₂O₃ nanoparticles compared to other room-temperature multiferroic materials. For the ferroelectricity in GFO films, a unique mechanism of polarization switching is predicted. The displacement length of the metal cations at the Fe1 and Fe2 sites can reach as high as 1.2 Å during polarization switching, whereas that of conventional perovskite ferroelectric such as BaTiO₃ is about 0.1 Å. Such a large displacement of magnetic Fe ions should realize a novel magnetoelectric effect.

To realize large magnetoelectric properties and applications of GFO films, the ferroelectric and ferrimagnetic properties at room temperature must be controlled. A key point for the existence of both ferroelectricity and ferrimagnetism at room temperature is to understand the relationship between the constituent composition at each cation site and the original character. Thus, a systematic investigation of multiferroicity as a function of the compositional ratio of Ga and Fe is important for a fundamental understanding and future applications. In this study, we fabricate high-quality $Ga_xFe_{2-x}O_3$ epitaxial thin films (x = 0.0-1.0) and systematically investigate their ferroelectric and ferrimagnetic properties. All films exhibit out-of-plane ferroelectricity and in-plane ferrimagnetism simultaneously. The coercive electric field (E_c) monotonically decreases with x. Additionally, increasing x reduces the coercive force (H_c) but enhances the saturated magnetization (M_s) at room temperature, according to the site of Ga ions. Finally, we demonstrate the room-temperature magnetocapacitance effects of the GFO films. The E_c , H_c , and M_s values can be widely controlled in ranges of 400–800 kV/cm, 1–8 kOe, and 0.2–0.6 $\mu_B/f.u$ at room temperature by changing x, respectively. Because such ferroelectric and magnetic ranges differ from those of well-known room-temperature multiferroic BiFeO₃, GFO-type iron oxides may expand the variety of room-temperature multiferroic materials.

Reference

- 1) M. Gich, et al., Adv. Mater. 26, 4645 (2014).
- 2) S. Mukherjee, et al, Phys. Rev. Lett. 111, 087601 (2013).
- 3) T. Arima, et al., Phys. Rev. B 70, 064426 (2004).
- 4) T. Katayama, et al., Adv. Funct. Mater. 28, 1704789 (2018).
- 5) T. Katayama, et al., Chem. Mater. 30, 1436 (2018).
- 6) T. Katayama, et al., J. Mater. Chem. C 5, 12597 (2017).
- 7) T. Katayama, et al., Appl. Phys. Lett. 110, 212905 (2017).

Synthesis and spectroscopic analysis of novel ordered alloy with large uniaxial magnetic anisotropy

Masaki Mizuguchi and Koki Takanashi (Institute for Materials Research, Tohoku University, Japan)

A large uniaxial magnetic anisotropy is a fascinating feature for magnetic materials because it gives birth to various intelligent functions. For instance, materials with a large uniaxial magnetic anisotropy are promising for the application to high-density magnetic storage devices since the thermal stability of magnetization is kept even in a nanometer scale. Furthermore, large uniaxial magnetic anisotropy energy (K_u) is one of the crucial matters to realize next-generation strong hard magnets. It is well known that L1₀-ordered alloys such as FePt, CoPt, and FePd show considerably large K_{u} . However, they include noble metals, thus it is an indispensable subject to find a noble metal-free large magnetic anisotropy ferromagnet. It is known that iron meteorites contain L10-ordered FeNi phase, so-called "tetrataenite", which induces unique magnetic properties different from usual Fe-Ni alloys. It has been reported that L10-ordered FeNi has a large K_u of 1.3×10^7 erg/cm³ for a bulk sample¹). However, there have been no studies on the fabrication of L₁₀-ordered FeNi thin films. We have been trying the fabrication of L10-ordered FeNi films by alternate monatomic layer deposition or the sputtering method for several years²⁻¹⁸⁾. In this talk, we present a review on the recent progress of our study on the synthesis and characterization of L10-ordered FeNi films. The maximum value of Ku, which was estimated from magnetization curves, reached 9.0×10^6 erg/cm³. The largest order parameter, which was estimated from XRD spectra, was 0.48. Ku monotonously increased with the order parameter. We also fabricated Ni/Fe superlattices with different layer thickness and investigated their magnetic properties to understand magnetic anisotropy in Ni/Fe system including L10-ordered FeNi. The spectroscopic analysis of the electronic structures of these films by the photoemission spectroscopy (PES) and the magnetic circular dichroism (MCD) measurements were made using a synchrotron radiation. The origin of the large uniaxial magnetic anisotropy will be discussed. In addition, recent progress on the synthesis of L1₀-ordered FeNi bulks by a chemical method will be also presented¹⁹).

This work was partly supported by JST under Collaborative Research Based on Industrial Demand "High Performance Magnets".

Reference

- 1) J. Paulevé et al., J. Appl. Phys. 39, 989 (1968).
- 2) T. Shima et al., J. Magn. Magn. Mater. 310, 2213 (2007).
- 3) M. Mizuguchi et al., J. Appl. Phys. 107, 09A716 (2010).
- 4) M. Mizuguchi et al., J. Magn. Soc. Jpn. 35, 370 (2011).
- 5) T. Kojima, M. Mizuguchi et al., J. Phys.: Conf. Ser. 266, 012119 (2011).
- 6) M. Kotsugi, M. Mizuguchi et al., J. Phys.: Conf. Ser. 266, 012095 (2011).
- 7) T. Kojima, M. Mizuguchi et al., Jpn. J. Appl. Phys. 51, 010204 (2012).
- 8) M. Kotsugi, M. Mizuguchi et al., J. Magn. Magn. Mater. 326, 235 (2013).
- 9) T. Kojima, M. Mizuguchi et al., Surf. Sci. 326, 235 (2013).
- 10) M. Ogiwara, M. Mizuguchi et al., Appl. Phys. Lett., 103, 242409 (2013).
- 11) T. Kojima, M. Mizuguchi et al., J. Phys.: Conden. Matter, 26, 064207 (2014).
- 12) M. Kotsugi, M. Mizuguchi et al., J. Phys.: Conden. Matter, 26, 064206 (2014).
- 13) T. Kojima, M. Mizuguchi et al., J. Phys. D, 47, 425001 (2014).
- 14) T. Tashiro, M. Mizuguchi et al., J. Appl. Phys., 117, 17E309 (2015).
- 15) K. Mibu, M. Mizuguchi et al., J. Phys. D, 48, 205002 (2015).
- 16) T. Kojima, M. Mizuguchi et al., Thin Solid Films, 603, 348 (2016).
- 17) K. Takanashi, M. Mizuguchi et al., J. Phys. D, 50, 483002 (2017).
- 18) T. Tashiro, M. Mizuguchi et al., J. Alloys Compd. 750, 164 (2018).
- 19) S. Goto, M. Mizuguchi et al., Scientific Reports, 7, 13216 (2017).

液中における酸化鉄ナノ粒子の交流磁界に対する振舞の解析

生田歩夢、北本仁孝

(東京工業大学)

Analytical relaxation behavior of iron oxide nanoparticles in fluids under AC magnetic field A. Ikuta,Y. Kitamoto (Toluu Institute of Technology)

(Tokyo Institute of Technology)

<u>はじめに</u>

超常磁性を有する酸化鉄ナノ粒子は外部磁場に対する迅速な応答と生体適合性を示すことからバイオセン シングのマーカーへの応用が期待されている。特に交流磁界を用いた磁気センシングは磁気による非接触で の測定や緩和現象の評価を応用した迅速な検査システムへの応用が見込まれる。液中における磁性ナノ粒子 の交流磁界に対する振舞はブラウン緩和とネール緩和で説明され、粒子径と流体的力学径に大きく依存する。 しかしながら実際の磁性流体内では磁性粒子は多分散の粒子径を持ち、また多くの場合に二次粒子を形成す ることから緩和メカニズムを精密に議論することは困難である。本研究では粒子径および分散状態が制御可 能なクエン酸修飾酸化鉄ナノ粒子分散流体を作製し、交流磁界に対する緩和現象を評価することで磁性ナノ 粒子の磁界応答を粒子径の多分散性、二次粒子形成の影響を考慮した集団的な振舞として実験的に評価する ことを検討する。今回はブラウン緩和とネール緩和の緩和周波数の交流磁場強度の依存性を報告する。

<u>実験方法</u>

エチレングリコールに塩化第二鉄、エチレンジアミン、酢酸ナトリウム、水を混合した反応溶液を作製し、 耐圧容器内で180℃、8時間反応させて酸化鉄ナノ粒子を合成した。クエン酸ナトリウム水溶液内で70℃、2 時間超音波照射することでクエン酸修飾を行った。磁気特性の測定において印加する交流磁場は磁場強度が 10~1000eで、周波数を200~10kHzの範囲で走査した。

実験結果

Fig.1 に合成したクエン酸修飾酸化鉄ナノ粒子の特性を 示す。TEM 画像から一次粒子径が 20~30nm の分布を持っ ており、DLS の結果から純水中で 40~50nm の流体的力学 径を持つことがわかる。クエン酸由来のカルボキシ基によ る静電反発で水中での高分散が達成された。XRD で得ら れた回折ピークは Fe₃O₄ と一致し、結晶子径が 19.8nm で あることから、ほぼ単一結晶の酸化鉄ナノ粒子であること がわかる。Fig.2は印加する交流磁場の強度を10、 50、100Oe と変えて磁化率の周波数依存性を測定 したうちの虚数部の結果を示す。左は懸濁液、 8 右は乾燥した粉末を ABS 樹脂で固めたサンプル part c (emu に対する測定結果である。液中では粒子自体の 回転によるブラウン緩和、粉末では粒子内の磁 気モーメントに起因するネール緩和による応答 が観測される。ブラウン緩和は1kHz以下の低周 波数で、ネール緩和は 20kHz 以上の高周波数で 観測された。液中サンプルでは磁場強度が強い ほど緩和周波数が高周波側にシフトし、粉末サ



Fig.1 Characteristics of iron oxide nanoparticles synthesized by TEM, DLS, XRD measurement.



Fig.2 Dependence on AC magnetic field strength of imaginary of magnetic susceptibility in suspension and powder samples.

ンプルでは低周波側にシフトしている。これは印加磁場が大きいほど液体サンプルでは応答する粒子の流体 的力学径の減少、粉末サンプルでは応答する二次粒子群内の異方性エネルギーの増大の影響と考えられる。

Effect of ionic concentration on dynamic magnetic susceptibility of iron oxide nanoparticles embedded in chitosan hydrogel matrix

M. E. Villamin, and Y. Kitamoto

Department of Material Science & Engineering, Tokyo Institute of Technology, Kanagawa, Japan

Recent interest in ferrogels consisting of iron oxide nanoparticles (FeO_x NPs) attached to a polymer network, such as chitosan hydrogel (CH), is driven by both the desirable properties of FeO_x NPs and CH, which can be useful in many biomedical applications [1-2]. One important potential application is magnetic based biosensing. In this case, it is important to understand how certain chemical stimuli affect the magnetic properties of FeO_x NPs inside the CH polymer. However, actual demonstrations of using chemical stimuli on CH for sensing are limited. In our previous study, we experimentally demonstrate how pH affects the magnetic relaxation of FeO_x NPs embedded in CH under AC field [3]. We observed that as the pH solution decreased, the CH swells and the peak position of the imaginary part (χ') of the AC susceptibility (ACS) is shifted to higher frequencies. From these results, we inferred that the CH swelling enhances the Brownian relaxation, thus we have demonstrated that chemical stimuli can be magnetically detected. In the present study, we extended our research by using other external stimuli, i.e. ionic concentration, and study its effect on the magnetic relaxation of FeO_x NPs in the CH. Swelling ratio (SR), which is a measure of water absorption of the hydrogel, and ACS were measured after the FeOx-CH are immersed to different NaCl concentrations. SR results in Fig. 1 show that the swelling of the FeOx-CH decreases as the ionic concentration increases. When CH is immersed in high NaCl solution, the water inside the CH diffuses outside the CH causing it to shrink. In contrast, in low NaCl solution, the water goes inside the gel resulting to swelling. The inset of Fig. 2 illustrates the frequency dependence of χ'' at different ionic concentrations of FeO_x-CH measured by ACS. From these results, the χ'' peaks are found around 200 Hz. The frequency position of the χ'' peak, f, is generally associated with the magnetic relaxation time, with $\tau \approx 1/f$, where τ is the magnetic relaxation time [4-5]. The χ'' peak frequency values are accurately extracted by fitting the data in the inset of Fig. 2 with a Gaussian function. The χ'' peak values at different NaCl concentration are plotted in Fig. 2. It is evident that χ'' peak frequency positions shift to lower frequencies as the ionic concentration increases. The shift is again expected, since it is inferred that the swelling of the CH enhances the Brownian relaxation. These results, as far as the authors' knowledge, is the first time demonstration of ionic concentration sensing via magnetic detection, which may become useful for magnetic biosensing applications.

References:

- 1) A. Kaushik, et al Biosens. Bioelectron., 24 (2008), 676-683.
- 2) J. Cho et al., J Food Eng., 74 (2006), 500-515.
- 3) M.E. Villamin, & Y. Kitamoto, ICM2018, B10-02.
- 4) F. Ludwig, et al., IEEE Trans. Magn., 53 (2017), 1-4.
- 5) S. Bogren, et al., Int J Mol Sci., 16 (2015), 20308-20325



Fig. 2. Measured χ'' peak frequency plotted against varying ionic concentrations. Inset: χ'' frequency dependence of FeOx-CH.



Fig. 1. Swelling ratio plotted against different 10mM, 150mM and 500mM NaCl concentration. Inset: Actual FeOx-CH sample used.

磁気粒子イメージングの原理検証装置の開発

山内一輝¹,野村航大¹,松田哲也¹,坂本裕介¹,井上啓¹,殿岡俊¹,佐藤伸治¹,井手太星²,

藤原康暉², 一柳優子².

(1三菱電機株式会社,2横浜国立大学)

Development of Verification System for Magnetic Particle Imaging

Kazuki Yamauchi¹, Kota Nomura¹, Tetsuya Matsuda¹, Yusuke Sakamoto¹,

Hiroshi Inoue¹, Shun Tonooka¹, Shinji Sato¹, Taisei Ide², Koki Fujiwara², Yuko Ichiyanagi²

(¹Mitsubishi Electric Corp., ² Yokohama National Univ.)

はじめに

磁気ナノ微粒子からの高周波磁場応答を検出し、高感度にイメージングする磁気粒子イメージング (Magnetic Particle Imaging: MPI)¹⁾が新しい医療画像診断として注目されている。MPI は原理的に、核磁気共 鳴画像法(MRI)と比べて高感度、陽電子放射断層撮像法(PET)と比べて高分解能が実現できるとされる。また、 粒子密度と信号強度に線形の関係があり、定量性に優れる。本研究では、磁気ナノ微粒子の磁化を励起する 高周波磁場コイルと磁化変動を検出する受信コイルを組み合わせた MPI の原理検証装置を開発し、磁気ナノ 微粒子量及び粒子径と磁気信号の関係について検討した。

実験方法

本研究では、磁気ナノ微粒子として MRI 用の造影剤と して使われる Resovist[®]と、磁気信号の粒子径依存性を評 価する目的で作成した Mn_{0.8}Zn_{0.2}Fe₂O₄(粒径:6.5-31.2 nm) をそれぞれ用いた。磁場振幅 6.5 mT,周波数 500 Hz の高 周波磁場を印加し、受信コイルで検出した信号をロック インアンプにて高調波成分(第二~五高調波)を測定し 評価した。

実験結果

Fig.1はResovist[®]内の磁気ナノ微粒子からの磁気信号 をスペクトルアナライザーにて周波数分析した結果であ る。周波数 f=500 Hz の励磁磁界に対して,第5高調波ま で強度高く検出できることを確認した。

Resovist[®]を用いた実験において,Resovist[®]濃度を希釈し サンプル内の磁気ナノ微粒子量を変化させた場合の磁気信 号検出結果を Fig. 2 に示す。磁気ナノ微粒子量と磁気信号 強度に線形関係があることを確認した。更に、理論計算と 比較し、実験値の妥当性も確認した。当日は、Mn_{0.8}Zn_{0.2}Fe₂O₄ を用いて検証した磁気信号の粒子径依存性の結果について も報告する。

謝辞

本研究の一部は国立研究開発法人科学技術振興機構(JST)の未来社会創造事業の支援により実施した。

参考文献

- 1) T.Knopp et al., Phys. Med.Biol. 62 R124
- 2) Y.Ichiyanagi, et al., J. Appl. Phys. 117, 17D157 (2015)



Fig.1 Harmonic spectrum of MPI measurement (Resovist®).



Fig.2 Relationship of signal voltage to the amount of magnetic particle (Resovist[®])

Resovist の磁化容易軸配向による SLP 向上

史冠男¹, 竹田遼二¹, 西本築¹, トリスナント・スコバグース¹, 山田努¹, 大多哲史², 竹村泰司¹ (¹横浜国立大学, ²静岡大学)

Specific loss power of Resovist enhanced by aligning its magnetic easy axes G. Shi¹, R. Takeda¹, K. Nishimoto¹, S. B. Trisnanto¹, T. Yamada¹, S. Ota², Y. Takemura¹ (¹Yokohama National University, ²Shizuoka University)

はじめに

磁性ナノ粒子を用いたハイパーサーミアにおいて人体サイズで励磁可能な磁場強度・周波数下で十分な発 熱を得ることが課題である。我々は交流磁場を印加した際の磁性ナノ粒子の温度測定ではなく、交流ヒステ リシス測定から発熱特性、Specific loss power (SLP)を計算する手法を報告している¹⁾。磁性ナノ粒子の磁化 容易軸を配向させることにより、SLP が向上することを見いだしたので報告する。

実験方法·結果

Resovist[®](コア粒径:5–10 nm)を希釈した液中分散試料に加え、エポキシ樹脂で固定した試料を作製した。 全ての試料において鉄濃度を2 mg/mlになるように調整を行った。固定試料については、磁性ナノ粒子を無磁場下で固定した無配向固定試料と、エポキシ樹脂が固化する過程で直流磁場(575 kA/m)を印加させて粒子の磁化容易軸を揃えた配向固定試料^{2,3)}の2種類を作製した。この直流磁場下では Resovist[®]の磁化は飽和磁化の85%以上となる。これらの試料の直流磁化特性および交流磁化特性(磁場強度4、16 kA/m、周波数1–100 kHz)の測定を行い、SLPを計算した。

Fig. 1 に磁化容易軸を配向させた固定試料の直流および交流ヒステリシス曲線を示す⁴⁾。配向と垂直方向に 励磁した場合にはヒステリシス面積が生じないことがわかる。平行方向の励磁下ではネール緩和の位相遅れ に起因するヒステリシスが顕著になっている。これらの傾向は磁気異方性エネルギーにより説明でき、シミ ュレーション結果³⁾と一致した。Fig. 2 に SLP を示す。ブラウン緩和の位相遅れも重畳する液中試料において SLP が大きくなることと一般的に理解されるが、磁化容易軸に平行励磁した配向固定試料の SLP は液中試料 の 2.5 倍以上となった。これらの結果に加え、γ-Fe₂O₃(4 nm)や Fe₃O₄(20–30 nm)の SLP との比較なども 当日報告する。

謝辞

本研究の一部は、科研費 15H05764、17H03275、17K14693 の助成を受けて実施した。

参考文献

1) K. Nakamura , K.Ueda , A. Tomitaka , T.Yamada, Y. Takemura: IEEE Trans. Magn. 49, 240 (2013).

- T. Yoshida, Y. Matsugi, N. Tsujimura, T. Sasayama, K. Enpuku, T. Viereck, M. Schilling, and F. Ludwig: J. Magn. Magn. Mater., 427, 162 (2017).
- 3) R. Takeda, S. Ota, T. Yamada, Y. Takemura: J. Mag. Soc. Jpn., 42, 55 (2018).
- 4) G. Shi, R. Takeda, K. Nishimoto, S.B. Trisnanto, T. Yamada, S. Ota, Y. Takemura: *12th International Conference on the Scientific and Clinical Applications of Magnetic Carriers*, PI-32, Copenhagen, Denmark, May 23, 2018.





Fig. 2 Frequency dependence of SLP of Resovist[®].

磁気マーカーを用いた洗浄工程不要の免疫検査法の開発

入江康太*、秋吉一輝*、吉田敬*、笹山瑛由*、圓福敬二*、原美里** (九州大学*、多摩川精機**) Wash Free Detection of Biological Targets Utilizing Magnetic Markers K. Irie*, K. Akiyoshi*, T. Yoshida*, T. Sasayama*, K. Enpuku*, and M. Hara**

(Kyushu University*, Tamagawa Seiki**)

免疫検査とは血液検査などの医療診断において、疾患由来の蛋白質や病原菌などのバイオ物質(抗原)の 有無や量を測定する方法である。近年、磁気マーカーと磁気センサを用いた磁気的な免疫検査法の開発研究 がなされている。本手法では、溶液中における磁気粒子のブラウン緩和現象を用いることにより、バイオ物 質に結合した磁気マーカー(Bound)と未結合の磁気マーカー(Free)を磁気的に識別できる。このため、従来の 光学的手法で必要とされてきた B/F 分離のための洗浄工程を省くことが出来、迅速な検査が可能となる。

Fig.1に磁気的免疫検査法の原理を示す。本研究では、バイオ物質としてC-反応性蛋白質(CRP)を用いた。 CRP は体内で組織破壊や炎症が起こった際に増加するた め、疾患の検査や経過観察などに用いられている蛋白質で ある。CRPの検出のため、CRP固定用のC2抗体付きポリ マービーズ(Spherotech)、及び、検出用の C6cc 抗体付き FG ビーズ(多摩川精機)を用いた。CRP、磁気マーカー、及 びポリマービーズを試料溶液に投入して 1 時間反応させ た。反応後には、Fig.1に示す様に、CRPは固定用のポリ マービーズに固定化され、これに磁気マーカーが結合する。 溶液中には未結合マーカーも共存する。

結合マーカーのブラウン緩和時間T_Bはポリマービーズ の直径 (3.3 μm)で決まり、τ_{BB}=13 s となる。一方、磁気マ ーカーの流体力学的直径は d_H = 160 nm であり、未結合マ ーカーの緩和時間はτ_{BF}=1.6 ms となる。この緩和時間の差 を利用して、結合 / 未結合マーカーを磁気緩和測定法に より磁気的に識別した。実験では、最初に試料溶液に励起 磁界を印加して試料を磁化した。その後、励起磁界をゼロ としてから3s後の磁気信号を測定した。この時点では、 未結合マーカーの磁気緩和は完了しており、未結合マーカ ーからの磁気信号はゼロとなる。このため、結合マーカー からの磁気信号のみを測定できることになる。磁気信号は MR センサを用いて測定した。

Fig. 2 に CRP の検出結果を示す。図の横軸は CRP の濃 度 n_{CRP}である。図の縦軸は MR センサの出力電圧 V(n_{CRP}) の測定結果である。なお、CRP が無い場合の Blank signal V(n_{CRP}=0)を差し引いている。図に示す様に、センサ出力 は CRP の濃度とともに増加し、両者には良い相関が得ら れた。最小の検出濃度は0.1 ng/mLとなった。この結果は、 洗浄工程無しで CRP の検出が可能なことを示しており、 本手法の有効性が示された。



Fig.1 Wash free detection of biological targets using magnetic markers. Bound and free markers can be differentiated by using Brownian relaxation.



Fig.2 Wash free detection of CRP. Signal measured with MR sensor is shown when concentration of CRP is changed from 0.1 to 10 ng/mL.

SAXS による磁性流体中のナノ粒子の特性評価

周藤宏典¹、間宮広明²、ジョンクヤ¹、鈴木一正¹、宮村弘¹、バラチャンドランジャヤデワン¹ (¹滋賀県立大学、²物質・材料研究機構)

Evaluation of dispersion characteristics of nanoparticles in magnetic fluid by small angle X-ray scattering H. Sudo¹, H. Mamiya², J. Cuya¹, K. Suzuki¹, H. Miyamura¹, and B. Jeyadevan¹ (¹The University of Shiga Prefecture, ²NIMS)

<u>はじめに</u>

磁性流体は磁性かつ流動性を有することから様々な分野への応用が行われている。また、これらの特性に 加えて、粒子間相互作用による現象を活かしたダンパなどの応用も考えられている。一方、磁性流体中の粒 子間相互作用による相分離や鎖状構造の形成などの現象が数多く研究されているが、その本質は解明されて いない。その要因として、粒子径の多分散性にともなう相互作用の不均一性があげられる。しかし、近年、 単分散マグネタイトの合成方法が確立され¹¹¹、この合成方法を用いることで、磁性流体中の多分散性による 影響を除去することが可能になった。そこで、磁性流体中の単分散マグネタイトナノ粒子間に働く相互作用 を、小角 X 線散乱により評価した結果を報告する。

実験方法

最初に、熱分解法を用いて、粒径が 17 nm であるマグネタイトナノ粒子を合成した(Fig.1)。その後、作製した粒子をケロシン中に分散させ、体積分率(vol.%)が 0.2~1.7 %の磁性流体を調製した。次に小角 X 線散乱 (SAXS)を用いて零磁場下および 0.5 T の磁場下におけるナノ粒子間に働く相互作用の影響を評価した。

<u>実験結果</u>

零磁場下でナノ粒子間に働く粒子間相互作用による現象を SAXS を用いて評価した結果を Fig.2 に示す。 凝集して得られるナノ構造体の形成は確認されず、磁性粒子は安定に分散していた。これは、用いた磁性流 体が希薄であったこと、そして、ナノ粒子が単分散であったために、多分散性による相互作用の影響を抑制 できたと考えられる。また、1.7 vol. % の磁性流体において、0.5 T の磁場を印加すると、磁場方向への一次 元鎖状構造の形成が確認された(Fig.3)。これは、粒子の磁気モーメントが磁場方向に容易に配向したためと考 えられる。講演では、磁場の有無における、より高濃度な粒子濃度、粒子サイズに対する依存性も議論する 予定である。



 10^6 10^5 10^4 10^2 10^1 10^2 10^1 10^0 0.5 1q (nm¹) Fig. 2 Scattering intensity for samples

with different volume fractions



Fig. 3 Structure factor for sample having volume fraction of 1.7 % under magnetic field.

Fig. 1 TEM image of magnetite NPs with an average diameter of 17 nm.

[1]福本浩哉, 滋賀県立大学, 学士論文 (2017)

Magnetocardiography Measurements via Peak to Peak Voltage Detector Type MI Gradiometer

Jiaju Ma and Tsuyoshi Uchiyama

Graduate School of Engineering, Nagoya University, Nagoya 464-8603, Japan

In the previous study, we had reported a high-performance MI magnetometer [1]. However, for detecting extremely weak magnetic field such as a bio-magnetic field, we have to cancel the background uniform noises such as geomagnetic field. In this study, we have proposed a peak to peak voltage detector type MI gradiometer (shortened: Pk-pk VD-type MI gradiometer), which is aimed to measure an extremely weak magnetic field. Meanwhile, we have demonstrated Pk-pk VD-type MI gradiometer for detecting magnetic cardiogram signals, with simultaneous measurement of cardiac electric activity. The new MI gradiometer is composed of a pair of MI elements: a sensing element and a reference element. The distance between the coils is set to be 3cm. The figure 1 illustrates the block diagram of new MI gradiometer. The pulse generator produces a rectangular voltage wave to differential circuit. Then, the rectangular waves are transferred into three different positive pulses. We detect both the positive peak and negative peak of induced waves in each pick-up coil excited by rising edge and drop edge of the excitation pulse, by using the staggered pulses and analog switches. Finally, the Pk-pk VD-type MI gradiometer outputs the difference between the sensing element and reference element for canceling out uniform magnetic field noise. Therefore, we can achieve a highly sensitive, low noise level, and stable MI sensor system for bio-magnetic field measurement in unshielded environment, at room temperature. Both of sensing and reference MI elements illustrate good linearity. The difference in the sensitivity of sensing and reference elements is within 1%. The noise floor of the Pk-pk VD-type MI gradiometer is lower than 2 pT/Hz^{1/2} in the frequency range from 1 Hz to 100 Hz. It is 1/5 of noise level of previous MI gradiometer in a 1-100 Hz frequency range.

MCG measurement by using the Pk-pk VD-type MI gradiometer is carried out on a male subject (aged 26) in siting position, without any magnetic shielding equipment. We set up the MI gradiometer on a wooden table, and the sensor head is perpendicularly placed to the chest surface, with a distance of 10 mm between the chest surface and sensor head. The measurement point is set at the chest surface, 25 mm to the left of the pit of stomach. The output superposing noise of new MI gradiometer is lower than previous MI gradiometer. Meanwhile, we have successfully measured the MCG signals in averaging over only 6 cycles. Comparing with the previous MCG measurements [2], we have markedly reduced the cycles for arithmetic average processing. The Fig.2 illustrates the simultaneously measured ECG and MCG signals in averaging over only 6 cycles. As illustrated in Fig.2, we can obviously identify a sharp magnetic peak, corresponding to the QRS complex of ECG. The amplitude of this magnetic peak related to the R peak is approximately 100 pT, which coincides well with the reported MCG value.

Reference

- 1) J. Ma, and T. Uchiyama, IEEE Trans. Magn., VOL. 53, NO. 11, (2017).
- 2) T. Uchiyama and T. Takiya, AIP Adv., vol. 7, no. 5, 2017



Fig. 1. The block diagram of Pk-pk VD-type MI gradiometer.



Fig. 2. Simultaneously measured ECG and MCG signals in averaging over 6 cycles.

心磁図のためのリファレンスセンサを用いない Time-shift PCA によるノイズ除去法

岩井守生、小林宏一郎 (岩毛大学)

Noise reduction in Magnetocardiograph based on Time-shift PCA without reference sensor system M. Iwai, K. Kobayashi (Iwate University)

<u>はじめに</u>

心疾患の初期発見が可能な心磁図は臨床研究において注目されている。しかし、心磁図は環境磁気ノイズ に比べて非常に小さいため、何らかのノイズ除去なしに心臓活動を正確に評価することは困難である。ノイ ズを抑制できる解決法の1つに、Time-shift PCA¹⁾がある。この方法は、測定データからリファレンスデータ による再現ノイズを減算することによってノイズ除去を行う。この方法はリファレンスセンサを必要とする ため、リファレンスセンサのないシステムでは使用できない。そこで、我々は、リファレンスセンサを用い ない Time-shift PCA を提案し、シミュレーションにより評価した。

提案手法

提案手法は、従来の Time-shift PCA と基本的な処理は同じである。従来の方法との違いは、測定データか らリファレンスデータを再構成するプロセスを追加することである。リファレンスデータを再構成する方法 は、第1に測定データに PCA を適用する。第2に尖度順に主成分を並べ替える。第3に尖度の値が低い主成 分を選択する(選択数は任意である)。第4に選択した主成分に逆 PCA を適用する。このリファレンスデー タ再構成処理の後、再構成されたリファレンスデータを用いて従来の Time-shift PCA を適用する。ここで尖 度を指標とする理由は、ノイズ成分を持つ主成分は尖度が低い傾向にあるためである²⁾。

<u>シミュレーション結果</u>

本研究ではシミュレーションによりノイズ除去精度を確認した。図1は-20dBシミュレーションデータでの シミュレーション結果を示している。図1(a)は-20dBの測定データであるシミュレーションデータの波形 であり、図1(b)は信号処理後のノイズ除去データの波形である。シミュレーションの結果、提案手法は約 40dBの雑音を低減できることがわかった(ノイズ除去後の SNR は 20.83dB であった)。



参考文献

- Alain de Cheveigne, Jonathan Z. Simon, "Denoising based on time-shift PCA", Journal of Neuroscience Methods, vol. 165, pp. 297-305, 2007.
- M. Iwai, K. Kobayashi, "DIMENSIONAL CONTRACTION BY PRINCIPAL COMPONENT ANALYSIS AS PREPROCESSING FOR INDEPENDENT COMPONENT ANALYSIS AT MCG", Biomedical Engineering Letters, August 2017, vol. 7, no. 3, pp. 221-227.

磁石片と SQUID を用いて、繊毛運動を測定する

牧畠 亮太、小山 大輔、河合 淳、辰巳 仁史 (金沢工業大学) Remote sensing of ciliary beating with magnetic sensors R.Makibatake, D.Oyama, J.Kawai, H.Tatsumi (Kanazawa Institute of Technology)

はじめに

哺乳類の脳室内にある繊毛運動は、脳脊髄液の循環を引き起こしており、ラットの側脳室の壁面に存在す る神経芽細胞の移動に関係していることが報告されている¹⁾。脳室内の繊毛運動に関する研究では、繊毛細 胞を培養して研究が行われているが、非侵襲で測定する方法は今のところ知られていない。超高感度磁気セ ンサである超伝導量子干渉計(SQUID)とネオジウム磁石片を用いて、生体組織を貫き遠くまで伝わる磁場 変化を利用した脳室内の繊毛運動を非侵襲で測定する技術を開発した。

実験方法

図 1-A-b のように、繊毛に直径 100 µm の磁石片を結合させ、繊毛運動に伴う磁石片周囲の磁束密度の変化 を超高感度磁気センサによって測定し、ラットの体外に置いたセンサにより非侵襲測定が可能であることが わかった。この非侵襲測定法に必要な要素は、3 つあり、(1)磁束密度の高く小さい磁石片の作成、(2)高 感度な磁気センサ、(3)磁石片を繊毛表面に結合させる方法である。これら3 つの要素技術を組み合わせ、 繊毛運動に伴う磁石片周辺の磁束密度の変化量を、高感度な磁気センサによって遠隔測定した。

実験結果

(1) ネオジウム磁石を-80 ℃ に冷やしたハンマーで砕くことで、直径 100 µm の磁石片を手に入れた。作成した磁石片の中から、磁束密度の高い磁石片を手に入れるための分離装置を開発した。(2) ジョセフソン

接合素子と液体ヘリウムを利用した SQUID や、マグネトインピーダンス効果を 利用した MI センサによる高感度な磁気測 定装置を用いて高感度磁束密度測定が可 能であることが分かった。(3)細胞膜にあ る糖鎖に結合するレクチンというタンパ ク質を用いて、磁石片を脳室内の繊毛表面 に結合させることができた。

磁石片の運動に伴う磁束密度の変化量 を、SQUIDから10mm離れた位置から測 定することができた。実際麻酔下のラット による実験では、15Hzの磁束密度の変化 量を測定できた。また、同時にラットの心 拍に対応する信号が重なって観察された。 参考文献

 Sawamoto K. New Neurons Follow the Flow of Cerebrospinal Fluid in the Adult Brain. *Science*. 2006;311(5761):629-632. doi:10.1126/science.1119133.



Fig. 1. Beating of ependymal cilia and remote sensing of beating. (A-a) Time-lapse images of an ependymal cilium, taken at 0.00 s, 0.03 s, 0.05 s from left to right. (A-b) A schematic block diagram of measuring the beating of ependymal cilia in the lateral ventricle of a newborn rat using the SQUID. (B-a) The magnetic signal from ependymal ciliated cells in the culture condition measured by the MI sensor. (B-b) The magnetic signal from a post-freezing and thawing sample. (B-c&d) A magnetic signal from ependymal cilia beating in a lateral ventricle of a live animal. Red dots in the panel (B-d) show the magnetic signal associated with the heart beat. The rectangle shown by the arrow is magnified and shown in panel (B-c). Scale bars in (A-a) 10 μ m.

ソレノイド型磁気マーカーコイルの位置推定手法

小山大介,足立善昭 (金沢工業大学 先端電子技術応用研究所) Localization Method of a Solenoid Magnetic Marker Coil Daisuke Oyama, and Yoshiaki Adachi (Applied Electronics Laboratory, Kanazawa Institute of Technology)

はじめに 脳磁計や心磁計などの生体磁気計測装置では、計測装置に対する被験者の位置を知ることが重要 である. 被験者にマーカーコイルと呼ばれるコイルを取り付けて磁気信号を発生させ、磁気センサで計測し たデータから逆問題を解いてコイルの位置を推定し、被験者と装置の位置合わせがおこなわれる. 一般的に、 マーカーコイルには被験者に取り付けやすい形状として直径 10 mm 程度の円盤型のコイルが用いられてい る¹⁾. 一方、生体磁気計測は近年、頭部や胸部を対象とした脳磁計や心磁計だけでなく首や四肢を対象とし た脊磁計や筋磁計にも拡大しつつある. これらの場合、円盤型よりも円筒型の方が被験者の対象部に貼り付 け易く、後者形状としてソレノイド型のマーカーコイルが適している. しかし、位置推定において広く利用 されている磁気ダイポールモデルは軸方向に長さを有するコイルについて想定したモデルではなく、ソレノ イド型コイルの位置推定には適切でない. そこで本研究では、ソレノイド型コイルの位置推定に用いるモデ ルを決定するため、シミュレーションによってソレノイド型コイルの位置推定における逆問題モデルの比較 をおこなった.

方法 本研究でのシミュレーションに用いた順問題および逆問題モデルを Fig.1 に示す.従来形状との比較 のため,順問題モデルとして従来のマーカーコイルを模した同心円状コイルと、ソレノイド型コイルを設定 した.逆問題モデルとしては各コイルを模した円電流モデルと、円筒側面に一様に流れる電流モデル²⁾,磁 気ダイポールモデルを設定し、組み合わせ(A)~(E)を使用した場合の位置と角度の推定誤差を比較した.

シミュレーションでは半径 100 mm の球の表面上に約 20 mm 間隔で並べた 289 箇所の観測点を仮定し,半径 75 mm の球体領域内にランダムに配置した同心円状コイルまたはソレノイド型コイルが作る磁場分布を 計算した.計算した磁場分布データに仮想的なノイズデータを加え, Fig.1 に示した 5 通りの組み合わせで 位置推定をおこなった.信号源の推定には直接探索法を用いた.本実験では信号源の位置と向きをランダム に変えて磁場計算と信号源推定を 1000 回繰り返し,位置推定誤差の平均と標準誤差を導出した.

結果 Fig. 2 に信号源推定結果と真値とのずれを示す. 位置のずれはコイルの軸方向(axial) と径方向(radial) に分けて表示している. 従来の同心円状コイルの場合には逆問題に円電流モデル,磁気ダイポールモデルを用いた場合で大きな差は無かった. 一方, ソレノイド型コイルの場合には,逆問題に円電流モデルや磁気ダイポールモデルを使うと従来手法に比べて推定精度が悪くなるが,円筒側面電流モデルを用いることで従来手法と同程度の精度での位置・向きの計測が可能であることが分かった.

<u>参考文献</u>

1) 久保田他, 第 31 回日本生体磁気学会大会論文集, Vol. 29, pp.178-179 (2016).

2) N. Derby, S. Olbert, American Journal of Physics, Vol. 78, 229 (2010).







Fig.1 Forward and inverse model of numerical experiments.

交流磁界がヒト肝がん細胞への抗がん剤作用に及ぼす影響評価

前田哲哉¹,柿川真紀子¹,山田外史² (¹金沢大学,²公立小松大学)

Effect of ELF Magnetic Field on anticancer drug potency to human liver cancer cells T.Maeda¹, M.Kakikawa¹, S.Yamada²

(¹Kanazawa University, ²Komatsu University)

<u>はじめに</u>

本研究室ではこれまでヒト肺がん細胞株 A549 において、交流磁界による抗がん剤作用増強を確認した。 しかし、がんは人体の様々な部位で発生し、がん細胞の性質は異なる。一例として、部位によって細胞質内 に存在するタンパク質などが異なり、細胞の働きが異なる。そのため様々な部位のがん細胞において交流磁 界影響を検証する必要がある。そこで本研究では、がんの中でも罹患率・死亡率が高い肝がんに関して、ヒ ト肝がん細胞株 HepG2 を用いて、交流磁界による抗がん剤作用への影響評価を行った。

抗がん剤作用への極低周波磁界影響の評価方法

交流磁界条件は磁束密度 50 mT,周波数 60 Hz を使用した。抗 がん剤の作用機序による作用増強度を検証するために、本研究で は Cisplatin, Doxorubicin, Mitomycin C, Etoposide, Bleomycin の 5 種 類の抗がん剤を用いた。Cisplatin, Doxorubicin, Mitomycin C の作用 機序は架橋形成による DNA 合成阻害,Etoposide はトポイソメラ ーゼ II 阻害による DNA 合成阻害,Bleomycin は DNA2 本鎖切断 による DNA 合成阻害である。磁界曝露群・非曝露群に同濃度の 抗がん剤を添加し,反応時間 0.5 h~4 h 経過後、抗がん剤を除去し た。コロニーアッセイ法によって両群の細胞生存率を測定し比較 することで,抗がん剤作用に対する交流磁界影響を評価した。

抗がん剤作用への極低周波磁界影響の結果と考察

ヒト肝がん細胞株 HepG2 に対して交流磁界を曝露しながら, 抗がん剤 Cisplatin, Doxorubicin, Mitomycin C を反応させた後の、 磁界非曝露群に対する曝露群の細胞生存率相対比の実験結果を それぞれ, Fig.1, Fig.2, Fig.3 に示す。実験結果から Cisplatin で は反応時間 4 h において約 40%, Doxorubicin では反応時間 0.5 h において約40%, Mitomycin Cでは反応時間2hにおいて約35%, 非曝露群に比べて曝露群の細胞生存率が有意に減少した。この結 果からヒト肝がん細胞株においても、ヒト肺がん細胞株と同様に, 交流磁界による抗がん剤作用増強が確認された。しかし、作用増 強が最も大きく得られる反応時間はそれぞれの抗がん剤で異な るという結果が得られた。上記の抗がん剤は反応速度が異なり, それぞれの抗がん剤で反応速度が最も早い反応時間において, 交 流磁界影響が最も大きいことが確認された。Etoposide, Bleomycin に関しては現在検証中である。また,交流磁界による抗がん剤作 用増強のメカニズムはまだ解明されていない。作用増強メカニズ ムの一因として、交流磁界がヒトがん細胞の膜タンパク質に影響 を与え,抗がん剤取り込み量が増加している可能性がある。そこ で, 膜タンパク質の物質輸送に関わる膜電位への交流磁界影響に 関しても現在検証中である。



Fig.1 Effect of MF on Cisplatin potency



Fig.2 Effect of MF on Doxorubicin potency



減衰振動磁場中における酸化鉄ナノ粒子分散液の吸光度変化

諏訪雅頼、魚谷明良、塚原 聡 (大阪大学)

Absorbance change of iron oxide nanoparticle suspension under damped oscillatory magnetic field.

M. Suwa, A. Uotani, S. Tsukahara

(Osaka Univ.)

<u>はじめに</u>

磁気粒子イメージングや磁気ハイパーサーミアのように、超常磁性酸化鉄ナノ粒子の磁化ダイナミクスを利 用する医療技術が発展してきている。これらの技術では、粒子内の磁化の回転(ネール回転)のみでなく、 粒子自体の回転(ブラウン回転)を考慮することで精確なイメージングや発熱効率の上昇につながることが 数値計算によって示唆されている^{1,2)}。磁気モーメントの配向挙動は通常、磁化測定により観察する。しかし、 磁化曲線の微小な変化からネール回転とブラウン回転を見分けることは難しい。そこで本研究では、減衰振 動パルス磁場中での酸化鉄ナノ粒子分散液の吸光度変化から、ブラウン回転の観測を試みた。

<u>実験手法</u>

Ewijk らの手法³⁾で直径 10.4 ± 1.4 nm のマグへマイト (γ-Fe₂O₃) 磁性ナノ粒子 (magnetic nanoparticle, MNP) を合成した。これを水中に分散させ、吸光度測定に適した 50~200 µg cm⁻³の濃度になるよう希釈した。また、 溶媒の粘性依存性を調べるため、グリセロールを添加した。LCR 回路の放電により、初期振幅~1 T の減衰振 動パルス磁場を発生させた。その周波数はコンデンサの電気容量に依存し、今回は主に 34.4 kHz で実験を行 った。10 mm × 10 mm (直径×長さ)の空芯ソレノイドコイルを用い、上記の MNP 分散液を 5 mm × 5 mm (内 径×長さ)の円筒型ガラスセルに封入し、コイル内に設置した。光源には Xe ランプ用い、モノクロメータで 波長 405 nm に単色化した光を磁場と平行にセルに照射、パルス磁場に伴う吸光度変化を観測した。

<u>実験結果</u>

Fig. 1 に MNP 分散液の吸光度変化を示す。磁場 印加後、直ちに吸光度が減少し、振動磁場の2 倍の周波数をもつ櫛型波形が観測された。吸光 度の極小は磁場の極値付近、極大はゼロ交差付 近にあったが、いずれも磁場に対して遅れてい た。マグヘマイト MNP は磁化容易軸と同じ方 向に光軸を持つことが報告されている⁴⁾。磁場 印加により磁化容易軸が磁場と平行に配向す るため、光軸と照射した光の進行方向とが一致 する。これにより、ランダム配向である無磁場 下に比べ、磁場中では吸光度が減少したと考え られる。従って吸光度変化の波形は、ブラウン 回転のダイナミクスを反映する事が示差され た。更に、吸光度変化から磁化容易軸の配向度



Fig. 1 (A) The absorbance change of the MNP suspension (top) under the damped oscillating magnetic field (bottom) and (B) the expansion of the highlighted region in (A).

を見積もることが可能であり、交流磁場中における超常磁性ナノ粒子の回転運動のメカニズムを考察した。

<u>参考文献</u>

- 1) D. B. Reeves, J. B. Weaver: Appl. Phys. Lett., 107, 223106 (2015).
- 2) H. Mamiya, B. Jeyadevan: Sci. Rep., 1, 00157 (2011)
- 3) G. A. van Ewijk et al.: J. Magn. Magn. Mater., 201, 31-33, (1999)
- 4) F. Bentivegna, et al.: J. Appl. Phys., 85, 2270-2278 (1999)

液中磁性ナノ粒子の磁化・容易軸ダイナミクス

大多哲史¹,トリスナント・スコバグース²,竹村泰司² (¹静岡大学,²横浜国立大学)

Dynamics of magnetization and easy-axis of magnetic nanoparticles dispersed in liquid

S. Ota¹, S. B. Trisnanto², Y. Takemura²

(¹Shizuoka University, ²Yokohama National University)

はじめに

ハイパーサーミアや磁気粒子イメージング(MPI)において、交流磁場に対する磁化ダイナミクスの解明が必要不可欠である。特に血中などの液中においては粒子(磁化容易軸)の回転も重要である。ネール緩和時間 τ_N とブラウン緩和時間 τ_B によって、 $1/\tau = 1/\tau_N + 1/\tau_B$ と表される実効的緩和時間 τ の理論に従うと、 τ_B » τ_N において磁化回転に比べて遅い容易軸回転は実質的に生じない¹⁾。しかし、我々は τ_B » τ_N の条件下で、容易軸回転を観測するという実効的緩和時間の理論では説明できない現象²⁾を実験的に確認した³⁾。本研究では、磁化及び容易軸のダイナミクスを磁化曲線による定常的な応答とパルス磁場を用いた過渡的な応答の計測により初めて解明し、さらに数値解析により計測結果を裏付けると共に各粒子一つの応答を観測した。

実験方法・結果

超常磁性のマグへマイト粒子(フェルカルボトラン)について、水中に分散させた液中試料と、寒天によ り容易軸回転を固定した固体試料を用意した。Figure 1 に液中試料と固体試料の磁化信号の差分を容易軸回転 を表した磁化曲線として示した⁴⁾。差分磁化曲線の残留磁化はゼロであり、これはゼロ磁場において液中試 料と固体試料の磁化が同一であることを示している。特に 0.2 kHz というネール緩和時間、ブラウン緩和時間 と比較して低周波条件では、容易軸回転が磁化回転に追随し、磁化が完全に緩和するゼロ磁場において、容 易軸も完全に緩和したと考えられる。磁化に追随した容易軸回転は数値計算でも示されている⁵⁾。高磁場で は、差分磁化曲線がヒステリシスを示した。これは磁場増加過程(磁化配向過程)と磁場減少過程(磁化緩 和過程)で固体試料に対する液中試料のエネルギー状態が異なることを示している。磁化の配向・緩和過程 において、容易軸も配向・緩和することにより、固体試料に比べて液中試料の方が磁化回転が促進する。Figure 2 のようにパルス磁場を印加した際に、磁場の立ち上がりに伴う磁化増加に加えて、静磁場状態においても 磁化の増加を確認した⁶⁾。これは最初に磁化のみが磁場増加に伴って回転して、磁化に遅れて容易軸が回転 する過渡的な応答を示しており、特にコア粒径の大きな粒子で顕著である。発表では、数値解析によって各 粒子一つの配向状態に注目をした結果も示す。

謝辞

本研究の一部は、科研費15H05764、17H03275、17K14693の助成を受けて実施した。

参考文献

- 1) R. E. Rosensweig, J. Magn. Magn. Mater., 252, 370 (2002).
- 2) H. Mamiya and B. Jayadevan, Sci. Rep., 1, 157 (2011).
- 3) S. Ota, T. Yamada, and Y. Takemura, J. Appl. Phys., 117, 17D713 (2015).
- 4) S. Ota and Y. Takemura, Appl. Phys. Express, 10, 085001 (2017).
- 5) T. Yoshida, S. Bai, A. Hirokawa, K. Tanabe, and K. Enpuku, J. Magn. Magn. Mater., 380, 105 (2015).
- 6) S. B. Trisnanto, S. Ota, and Y. Takemura, Appl. Phys. Express, 11, in print (2018).







Fig. 2 Temporal magnetization response in applying pulse field with respect to magnetic nanoparticles of different core sizes ⁶).

磁気的粒子間相互作用の無い状態における サイズおよび形状の異なるマグネタイトナノ粒子の磁気特性

福本浩哉¹,間宮広明²,ジョンクヤ¹,鈴木一正¹,宮村弘¹,バラチャンドランジャヤデワン¹ (1:滋賀県大,2:物質・材料機構)

Magnetic property of interaction-free magnetite nanoparticles with different size and shape H. Fukumoto¹, H. Mamiya², J. Cuya¹, K. Suzuki¹, H. Miyamura¹ and B. Jeyadevan¹ (1: The University of Shiga Prefecture, 2: NIMS)

<u>はじめに</u>

マグネタイトナノ粒子(MNPs)は、磁気温熱療法や MRI など医療応用への検討が盛んに行われている磁性 材料である。応用に適した MNPs の厳密な設計を行うためには、個々のナノ粒子の磁気応答を求める必要が ある。そこで考慮すべき点として、サイズや形状による表面効果と磁気的粒子間相互作用の 2 つが挙げられ る。本研究では、サイズや形状による表面効果の影響を調べるためサイズの異なる八面体 MNPs の作製を行 い、さらに非磁性体であるシリカを粒子表面に被覆することで磁気的粒子間相互作用の無い試料の作製を試 みた。また、得られた試料の磁気特性評価を行い、八面体 MNPs のサイズが磁気特性に与える影響について 系統的に調査した。

<u>実験方法</u>

オレイン酸とオレイルアミンを等モル混合した溶媒に前駆体となる鉄(Ⅲ)アセチルアセトナート (Fe[acac]₃)を加え、280 ℃で加熱することで八面体の形状を有するMNPsを作製した。得られた粒子をシクロ ヘキサンとIGEPAL®CO-520の混合溶液中に加え、懸濁液を撹拌しながら、アンモニア水とオルトケイ酸テト ラエチル(TEOS)を滴下し、粒子へのシリカ被覆を行った。作製した試料の粒径および形状評価には透過型電 子顕微鏡を、磁気特性評価には磁気特性測定装置(Quantum Design社製MPMS-5XL)を用いた。

<u>実験結果</u>

Fig. 1 に示すように、前駆体である Fe[acac]₃の濃度を変化させることで、直径 11.2, 15.1, 23.4 nm の異なる サイズを有する単分散八面体の形状を有す MNPs を得た。次に、磁気的粒子間相互作用のない試料を得るた め、各サイズの八面体 MNPs に対して TEOS の濃度および塩基性度を調整し、膜厚 28.5, 32.7, 30.7 nm にシリ カ被覆された MNPs を作製した。作製したシリカ被覆 MNPs を用いて、FORC 図解析より粒子間相互作用の

評価を行った。その結果、各試料において粒子間相互作 用が無いことが確認された。磁気的に孤立した MNPs の 粒子サイズが磁気特性に与える影響を系統的に調べる ため、粒径-実効磁気異方性相関図を算出した (Fig. 2)。 全ての試料において実効磁気異方性定数 K_{eff} が 20 kJ/m³ で、粒子サイズへの依存性は確認されなかった。この理 由は、今回作製した八面体の形状を有する MNPs が、粒 子サイズより形状による磁気特性への寄与が大きいため であると考えられる。今後、立方体や球など他の形状を 有する MNPs の粒子間相互作用の無い状態で磁気特性の 評価を行うことで、サイズ・形状それぞれの磁気特性へ の寄与が明らかになると期待される。





Fig.2 Effective anisotropy constant - particle diameter correlation diagram of silica coated magnetite samples with average diameters (a) 11.2, (b) 15.1 and (c) 23.4 nm.

鍼加温用アプリケータのコイル形状と誘導加温実験

山田外史,池畑芳雄^{*},池田慎治 (公立小松大学,*金沢大学)

Shape of the coil and the induction heating experiment of acupuncture warming applicator S.Yamada, Y.Ikeda^{*}, S.Ikeda (Komatsu Univ., *Kanazawa Univ.)

<u>はじめに</u>

高齢化社会に伴い低侵襲な医療技術が求められてい る。東洋医学における「灸」治療は「つぼ」の部位に 対し温熱刺激を与えることによって生理状態を変化さ せ、疾病を治癒する。しかし、皮膚上から「もぐさ」 などの燃焼により加温するため皮膚等への影響を軽減 することが求められる。

今回, 鍼治療用の「鍼」を用いて皮膚外部からアッ Fi プリケータ(励磁コイル)を用いて,皮下部の鍼部分 のみを誘導加熱できれば,皮膚などへの影響を抑え必要なつ ぼのみを必要な温度,時間間隔で加温できる。ここでは,キ ャンセルコイル付励磁コイルを提案し,コイル形状,磁界分 布,発熱・温度計測を行ったので報告する。

<u>誘導加温コイル</u>

提案する鍼の温熱刺激の励磁装置の基本構成を Fig.1 に示 す。身体に刺された鍼に、励磁コイル部分をセットし、その 後一定時間励磁コイルに電流を流し加温する。

Fig.1に示すような皮膚外部に位置する平面コイルで鍼を 励磁してもコイル中心が最大となる。これを避けるために①磁 性体でシールドする方法,②キャンセルコイルの2方法を検討 したが今回は後者の方法について検討した。

Fig. 2 がキャンセルコイル付のアップリケータである。皮膚 近傍鍼の磁界を逆巻コイルにより弱める。励磁コイルとキャン セルコイルは,直列に接続される。

該導加温実験

Fig.3は、磁界解析から得られた鍼に沿った中心軸上の磁束 密度分布である。コイルは皮膚に面して設置されており、キャ ンセルコイルにより磁界は部分的に弱められる。

Fig.4は、空気中の鍼をサーモグラフィーにより測定した温度分布である。図の右端が表皮である。表皮近くの温度は抑制されているが、すぐ下では最高温度となっている。 まとめ

励磁コイルにより鍼を電磁誘導して加温する灸システムにおいて,皮膚近傍の加温を抑制する加温システムについて検討した。

参照文献

 S. Yamada, Y. Ikehata, R. Hayashi, T. Ueno, M. Kakikawa, J. Magn. Soc. Jpn., Vol.39, No.2, pp.30-34, 2015.







Fig. 3 Magnetic flux density around acupuncture



空隙 100 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開発

伊藤哲也*,中川貴,長谷川諒,清野智史,山本孝夫 (大阪大学 大学院工学研究科)

Development of a 100-mm gap magnetic circuit type magnetic field generator for magnetic hyperthermia T. Ito, T. Nakagawa, R. Hasegawa, S. Seino, T. Yamamoto

(Graduate School of Engineering, Osaka University)

1.研究背景

近年,新たながんの治療法として磁気ハイパーサーミア療法が注目されている.これは適切な発熱体をがん 患部周辺に挿入し,体外から交流磁場を印加することで発熱体を発熱させ,がん細胞を加温する治療法であ る.発熱体には金属の針や磁性流体などが検討されており,その発熱量は磁場強度に強く依存する.さらに 発熱体は体内のどの位置にあっても適当な温度まで上昇できる必要があり,そのために体内の広い領域に均 一かつ高強度な交流磁場を発生できる装置が求められている.これまで我々は,人体適用規模である空隙 300mmの装置の前段階として,空隙 50 mmの磁気回路型磁場発生装置を作製し,得られる磁場の空間均一性 を示してきた¹⁾.本研究ではそれを小動物治療に適用可能な空隙 100 mmに拡張した装置を作製・評価した 成果について報告する.

2.実験

フェライト(日立フェライト電子, ML33D)を用いて磁気回路を構成し,100 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). 励磁コイル L_e は整合器を介して電源装置に接続され、共振回路を構成する(Fig. 2). 共振条件の調整は整合器内の可変インダクタ L_m ,可変キャパシタ C_m を用いて行い、磁場強度の測定には ピックアップコイルを用いた.本研究では磁場発生装置が持つ励磁能力を周波数 fと磁場強度 Hのべき乗の 積で表し、これを推定発熱指標(Estimated Heating Index : EHI)と呼ぶ.発熱体として有用とされている磁性流 体の EHI は fH^2 である.この装置を一定電力で稼働させ、EHI が最大になるよう共振回路の最適化を行う.

3.実験結果と考察

実験より、7×2巻きのコイルを使用し、*C_m*を 500 pF に設定して共振(*f*=417.5 kHz)させた場合に磁性流体の EHI が最大になることがわかった(Fig. 3). コイルの巻き数を増やす(*L_e*を増加させる)と磁場強度は増加する が、インピーダンスが増加し励磁電流が減少する.また、*C_m*を増加させると励磁電流は増加するが、共振周波 数*f*が減少する.これらのことから EHI を最大にするための条件は一意に定まり、空隙 100 mm の磁気回路 型磁場発生装置では、上記の条件が最適であることが明らかとなった.



Fig. 1 Magnetic field generator

Fig. 2 Resonant circuit

Fig. 3 Relationship between matching capacitance and estimated heat index

参考文献

 R. Hasegawa, T. Nakagawa, S. Seino and T. A. Yamamoto, "Optimization of Resonant Circuit and Evaluation of Magnetic Field Uniformity with 50 mm Gap Magnetic Field Generator", J. Magn. Soc. Jpn 42(2018) 90-95.

GdFe 合金薄膜における Gd 磁気モーメントと異常ホール効果の相関

蜂須賀 裕重1, 笠谷 雄一2,3, 吉川 大貴2, 塚本 新2

(1日本大学大学院理工学研究科,2日本大学理工学部,3日本学術振興会特別研究員-PD)

Correlation of Gd magnetization and anomalous Hall effect in GdFe alloy thin film

Hiroshige Hachisuka¹, Yuichi Kasatani^{2, 3}, Hiroki Yoshikawa², Arata Tsukamoto²

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

³JSPS Research Fellow)

はじめに 異常ホール効果は膜面垂直方向の磁化成分*M_s* cos *θ*に比例する. 代表的な強磁性体である Fe 薄膜 の磁化が形状磁気異方性に打ち勝ち, 膜面垂直方向に飽和させるには約 20 kOe の強磁場を必要とする. その ため, 低磁場でのホール電圧は小さい. そこで, 主として局在電子が磁気モーメントを担う Gd と遍歴電子 が磁気モーメントを担う Fe の磁気モーメントの反平行結合に由来し, 正味の磁化の減少, 形状磁気異方性の 低減, そして磁化補償組成近傍では垂直磁気異方性を発現する GdFe 合金薄膜に着目した. また異常ホール 効果において遍歴電子が磁気モーメントを担う Fe が伝導電子に強く影響を与えるものと考えられるが, 原子 当たりの磁気モーメント量の大きな Gd による寄与度も重要となる. そこで, GdFe 合金薄膜における異常ホ ール効果の広範囲な組成依存性の検討を行った.

実験方法 試料はガラス基板上に SiN (60 nm) / Gd_xFe_{100-x} (20 nm) / SiN (5 nm) / glass sub. (x = 0, 10, 16.7, 20, 25, 30, 40, 50, 60, 70, 80, 90, 100 at. %)をマグネトロンスパッタリング法により作製した. 室温にて膜面垂直方向に 外部磁場を印加し, 面内に 0.1mA の電流を印加した際の電流に対して垂直方向の電圧を測定した. また試料 振動型磁力計を用いて 300 K における磁気特性を計測した.

実験結果及び考察 Fig. 1 に電圧計測より求めた異常ホ ール抵抗 (R_{AHE})を示す. R_{AHE} は大きな組成依存性を示 した.特に Gd 組成 x = 25 at.%で膜面垂直方向に磁化容 易軸を持ち無磁場下でも大きな異常ホール効果が計測 された.また, Gd 組成 x = 10, 60 at.%では磁化容易軸が 面内方向となり R_{AHE} は 4kOe においても飽和せず, Gd 組成 x = 25 at.%に比べが低いことが確認された.

Fig. 2 に磁気特性の計測より印加磁場 4 kOe における 磁化角度 θ から求めた磁化角度無依存定数 $|R_{AHE}/\cos\theta|$ を示す. Gd 組成 Fe 薄膜に対し Gd 組成 xの増大と共に $|R_{AHE}/\cos\theta|$ が増加し, Gd 組成 x = 30 at. %において Fe (x = 0 at. %)と比べて最大約 30 倍と大きな効果が得られ た.また, Gd 組成 x > 40 at. %では単調な $|R_{AHE}/\cos\theta|$ の 減少がみられた.次に, Fe の正味の磁化が組成 xの増加 に対し一様に減少すると仮定し見積もった Gd の単位体 積当たりの有効磁気モーメント M_{Gd} の組成依存性を Fig. 2 に示す. Gd 組成 x = 40 at. %程度まで M_{Gd} が増加し, Gd 組成 x > 40 at. %では M_{Gd} が減少した.一方, Fe に対



して Gd の異常ホール係数は約-10 倍大きい^{1,2)}と報告されている.これらのことから異常ホール効果の増減 と Gd の磁気モーメントに強い相関があることが示唆された.

1) T. R. McGuire, J. A. Aboaf and E. Klokholm; IEEE Trans. Magn. 20, 5 (1984)

2) N. V. Volkenshtein, I. K. Grigorova, and G. V. Fedorov; Soviet Physics JETP 50 (1966)

<u>謝辞</u> 本研究の一部は平成 25~29 年度文部科学省私立大学戦略的基盤形成支援事業 (S1311020),平成 26~30 年度文部 科学省科学研究費援助金「新学術領域研究(研究領域提案型)」ナノスピン変換科学の助成を受けて行った. 参考文献

Tb12Cossアモルファス垂直磁化膜の磁化反転挙動の温度変化

原子 秋乃、櫻井 浩、拝詞 健人、劉 小晰*、馬 闖*、鈴木 宏輔、星 和志、辻 成希**、櫻井 吉晴**、 安居院 あかね***

(群馬大、*信州大、**JASRI、***QST)

Temperature dependence of the magnetization switching behavior

of a $Tb_{12}Co_{88}$ amorphous perpendicular magnetic anisotropy film

A. Harako, H. Sakurai, K. Haishi, X. Liu, C. Ma*, K. Suzuki, K. Hoshi, N. Tsuzi**, Y. Sakurai**,

and A. Agui***

(Gunma Univ, *Shinshu Univ., **JASRI, ***QST)

<u>はじめに</u>

我々は、磁気コンプトン散乱を用いて、磁性薄膜のスピン選択磁化曲線(Spin Specific Magnetic Hysteresis curve: SSMH)、軌道選択磁化曲線(Orbital Specific Magnetic Hysteresis curve: OSMH)を測定する手法を提案している¹⁻⁴。本研究では、近年磁気トンネル接合で磁気スイッチングを制御する目的で導入されている垂直磁気異方性を有する希土類・遷移金属アモルファス薄膜(TbCoアモルファス薄膜)の磁化反転挙動の温度依存性を調べることを目的とした。

<u>実験方法</u>

Tb₁₂Coss 単層膜を Al 基板上に DC スパッタリング法で作製した。組成は EPMA で決定した。XRD に よりアモルファス構造を確認した。SQUID 磁力計を用いて全磁化曲線を求めた。SPring-8 BL08W にて 磁気コンプトン散乱実験を行い、SSMH を求め、全磁化曲線と SSMH の差より OSMH を求めた。

実験結果

Fig.1 に試料面直方向に-2.5T から 2.5T の磁場をかけたときの全磁化曲線、SSMH、OSMH の温度変 化を示す。温度減少と共に保磁力は増大するが全磁化曲線、SSMH、OSMH の保磁力はそれぞれ一致し ている。また、各温度の SSMH と OSMH の比は一定であった。次に全磁気モーメント、スピン磁気モ ーメントと軌道磁気モーメントの 2.5T の飽和磁化の温度変化を調べた。その結果、温度低下と共に全磁 気モーメントは減少した。これは、スピン磁気モーメントが減少し、全磁気モーメントと逆を向いてい る軌道磁気モーメントの大きさは増大するためである。さらに、これは Tb 磁気モーメントと Co 磁気モ

ーメントの温度変化を反映すると考えられる。

<u>参考文献</u>

- A. Agui et al., J. Synchrotron Rad. 17 (2010) 321.
- 2) A. Agui et al., APEX 4 (2011) 083002.
- A. Agui et al., J. Appl. Phys., 114 (2013) 183904.
- A. Agui et al., Mater. Res. Express, 4 (2017) 106108.



Fig. 1
川井哲郎・武田 茂*・大竹 充・二本正昭** (横浜国大, *Magnontech, **中央大) Gilbert damping constant of Fe-Al(001) single-crystal films Tetsuroh Kawai, Shigeru Takeda, Mitsuru Ohtake, and Masaaki Futamoto (Yokohama National University, *Magnontech, Ltd., **Chuo University)

はじめに スピントロニクスの進展に伴い磁性薄膜の Gilbert ダンピング定数を精度良く測定することの重要性 が増している¹⁾.磁場掃引強磁性共鳴の吸収幅(ΔH)から Gilbert ダンピング定数を求める方法は良く知られてい る²⁾.本報告では Fe-A(001)単結晶薄膜を例として,周波 数掃引強磁性共鳴の吸収幅($\Delta \omega$)から Gilbert ダンピン グ定数を求める方法について報告する.Fe-Al 合金薄膜は 幅広く実用化されているだけでなく,軟磁気特性に優れ ているので $\Delta \omega$ に及ぼすさまざまな要因を分離しやすい と考え測定試料に選んだ.

実験方法 Fe-Al 合金ターゲットを使用して UHV RF マ グネトロンスパッタ法で MgO(001)単結晶基板上に厚さ 40 nm の膜を作製した. 基板温度は 300 °C の一定温度と した. 膜の構造が bcc(001)単結晶膜であることを RHEED と XRD で確認した. 1 kOe までの静磁場を膜面内に印加 して周波数掃引で強磁性共鳴(FMR)の測定を行なった³⁾. 最大周波数は 10 GHz である. 共鳴吸収の半値幅 (2 $\Delta \omega$) を ΔH に換算して Gilbert ダンピング定数を求めた.

実験結果と考察 Fe₈₀Al₂₀(001)単結晶薄膜の困難軸方向 (//bcc[110]) に1 kOe までの静磁場を印加した時の共鳴 周波数(f_r)の磁場依存性を Fig. 1 に示す. 異方性磁場近く で f.が一旦小さくなり, さらに磁場が大きくなるとそれ につれて f. も大きくなるという典型的な単結晶膜の挙動 を示している. 充分飽和していると考えられる 845 Oe の 静磁場を印加した時の FMR 測定例を Fig. 2 に示す. 実線 は LLG 方程式の解から計算した値を示す(計算に使った パラメーターは図中に記載).一見、ダンピング定数 a=0.009 で実験と計算が良く一致しているように見える. しかし、 $\Delta \omega$ には Gilbert ダンピング定数だけでなくさま ざまな外部因子の影響も含まれることが知られている. そこで、磁場掃引の場合と同様な解析を行うため、Δω をΔH に換算し,充分飽和していると考えられる領域で ΔHのf.依存性を示したのがFig.3である.直線近似した 傾きから算出した Gilbert ダンピング定数はa=0.005 程度 である.本実験ではfrに依存しないΔHoが 30 Oe 程度と大 きな値となった. 今後はこのようにΔH₀ が大きくなった 原因を明らかにする.

参考文献

- J. C. Slonczewski, J. Magn. Magn. Matter., 159, L1 (1996).
- 2) S. S. Kalarickal et al., J. Appl. Phys., 99, 093909 (2006).
- S. Takeda and H. Suzuki, J. Magn. Soc. Jpn., 33, 171 (2009).



Fig. 1 Static magnetic field dependence of resonant frequency measured for an $Fe_{80}Al_{20}(001)$ single-crystal film.



Fig. 2 Measured complex permeability for the $Fe_{80}Al_{20}(001)$ single-crystal film. Circles are experiments and the solid lines are calculations.



Fig. 3 Resonant frequency dependence of ΔH of the Fe₈₀Al₂₀(001) single-crystal film.

XMCD と第一原理計算から見た Mn_{3-x}Ga の垂直磁気異方性

岡林潤1、小田洋平2、鈴木和也3,4、佐久間昭正5.4、水上成美3,4

¹東大理、²福島高専、³東北大 AIMR、⁴東北大 CSRN、⁵東北大工

Perpendicular Magnetic Anisotropy in Mn_{3-x}Ga studied by XMCD and first-principles calculations

Jun Okabayashi¹, Yohei Kota², Kazuya Z. Suzuki^{3,4}, Akimasa Sakuma^{5,4}, and Shigemi Mizukami^{3,4}

¹The Univ. of Tokyo, ²NIT Fukushima Collage, ³AIMR, Tohoku Univ., ⁴CSRN, Tohoku Univ., ⁵Tohoku Univ.

Introduction

Magnetic ordered alloys have attracted significant attention for use as spintronics materials because they are highly likely to exhibit perpendicular magnetic anisotropy (PMA). Tetragonal Mn_{3-x}Ga alloys are widely recognized as hard magnets which exhibit high PMA, ferromagnetic or ferrimagnetic properties depending on Mn composition, and metallic properties [1]. Two kinds of Mn sites, which couple antiferromagnetically, consist of the Mn_{3-x}Ga with the D0₂₂-type ordering. On the other hand, the L1₀-type ordered Mn₁Ga alloy possesses the single Mn site. In order to investigate the mechanism of PMA and large coercive fields in Mn_{3-x}Ga, site-specific magnetic properties have to be investigated explicitly. X-ray magnetic circular dichroism (XMCD) can become a powerful tool to study them. However, the difficulty in deconvolution of two kinds of Mn sites has prevented the site-resolved detailed investigations. Some assumptions are required for the analysis [2]. First-principles calculations were also performed, resulting in the small orbital moment anisotropy in the Mn compound cases because of the spin-flip contribution of MA [3]. In this study, we perform the deconvolution of each Mn site using the systematic XMCD measurements for different Mn contents in Mn_{3-x}Ga. We discuss the site-specific spin and orbital magnetic XMCD measurements for different Mn contents in Mn_{3-x}Ga. We discuss the site-specific spin and orbital magnetic moments which are deduced from angular-dependent XMCD and compare with the density-functional-theory (DFT) calculations.

Experimental

The samples were prepared by magnetron sputtering on MgO substrates. On the 40-nm-thick Cr and 30-nm-thick CoGa buffer layers [4], 3-nm $Mn_{3-x}Ga$ were deposited at room temperature and capped by the 2-nm-thick MgO layer. We prepared the samples of *x*=0 (Mn₃Ga), 1 (Mn₂Ga), and 2 (Mn₁Ga) cases. X-ray diffraction peaks originated from D0₂₂ and L1₀-type orderings were clearly observed. The X-ray absorption spectroscopy (XAS) and XMCD were performed at BL-7A in the Photon Factory (KEK). The total-electron-yield mode was adopted, and all measurements were performed at room temperature.

Results

Mn $L_{2,3}$ -edge XAS in Mn_{3-x}Ga showed clear metallic line shapes. XMCD intensities decreased with increasing the Mn contents, resulting in antiferromagnetic coupling. With increasing Mn contents, the fine structures in XMCD line shapes which come from two kinds of Mn sites were clearly detected. Based on the spectrum of Mn₁Ga which consists of single Mn site, the subtraction from Mn₁Ga XMCD spectrum after the normalization of spectral intensities deduces the anti-parallel coupled another Mn site. After the deconvolution processes, the spin and orbital magnetic moments for each site were estimated using magneto-optical sum rules. Furthermore, clear hysteresis curves at Mn L_3 -edge XMCD were also detected, which was consistent with the results of magneto-optical Kerr effects. In the presentation, we discuss the site-specific magnetic properties depending on the Mn contents and compared with the DFT calculations.

This work was in part supported by KAKENHI and the ImPACT program.

References

- [1] S. Mizukami *et al.*, Mn-based hard magnets with small saturation magnetization and low spin relaxation for spintronics, *Scr. Mater.* **118**, 70 (2016).
- [2] K. Rode et al., Site-specific order and magnetism in tetragonal Mn₃Ga thin films, Phys. Rev. B 87, 184429 (2013).
- [3] Y. Kota and A. Sakuma, Mechanism of Uniaxial Magnetocrystalline Anisotropy in Transition Metal Alloys,
- J. Phys. Soc. Jpn. 83, 034715 (2014).

^[4] K. Z. Suzuki et al., Perpendicular magnetic tunnel junction with a strained Mn-based nanolayer, Sci. Rep. 6, 30249 (2016).

Fe-Ga 合金単結晶の<100>方向への引張りおよび圧縮応力印加 による磁区構造の変化

藤枝 俊*、浅野晨平*、志村玲子*、枦 修一郎**、石山和志**、福田承生***、鈴木 茂* (*東北大 多元研、**東北大 通研、***福田結晶研)

Modulation of magnetic-domain structure of Fe-Ga alloy single crystal by applying tensile and compression stresses parallel to a <100> direction

S. Fujieda*, S. Asano*, R. Simura*, S. Hashi**, K. Ishiyama**, T. Fukuda*** and S. Suzuki* (*IMRAM Tohoku University, **RIEC Tohoku University, ***Fukuda Crystal Laboratory)

背景

Fe-Ga 合金を利用した振動発電デバイスは、身の回りの振動を高効率に電気エネルギーに変換できるため IoT (Internet of Things) への応用が期待される¹⁾。このデバイスでは、コイルの中に Fe-Ga 合金を配置する。 Fe-Ga 合金が振動により引張られたり圧縮されたりすると、逆磁歪効果に起因した磁区構造の変化によりコ イルを貫く磁束が変化するため電磁誘導により誘導起電力が生じる²⁾。しかし、逆磁歪効果に起因した磁区 構造の変化の詳細は明らかでない。そこで、本研究では、Fe-Ga 合金単結晶の磁化容易軸である<100>方向へ 引張りおよび圧縮応力を印加した状態で磁区観察を行い、磁区構造に及ぼす逆磁歪効果の影響を調べた。

実験方法

Czochralski (CZ) 法により作製した大型 Fe-Ga 合金単結晶から板面が(001)面および縦方向が[010]方向(応 力印加方向)の試験片を切り出した。結晶方位は、背面反射 Laue 法により評価した。Kerr 効果顕微鏡を用い て Fe-Ga 合金単結晶(001)面の磁区観察を行い、特別に作製した治具を用いて応力を印加した。

実験結果

図 1(a)に[010]方向と平行の観察光を用いて得た応力印加前における Fe-Ga 合金単結晶の(001)面の磁区構造を示す。推察される磁化方向を矢印で示す。Fe-Ga 合金単結晶の(001)面の磁区構造は、面内の4つの<100>

磁化容易軸方向を磁化方向とする磁区および階段状の 180°磁壁と直線的な90°磁壁で構成されることが報告 されている³⁾。同様の特徴は図 1(a)において確認される。 このような状態の Fe-Ga 合金単結晶の[010]方向と平行 に16 MPaの引張り応力を印加した状態の磁区構造を図 1(b)に示す。引張り方向と平行の<100>方向を磁化方向と する磁区および直線的な 180°磁壁で構成された縞状磁 区が観察される。図1(c)および(d)に[100]方向と平行の観 察光を用いて得た同一箇所の圧縮応力印加前後におけ る磁区構造を示す。12 MPaの圧縮応力の印加により、圧 縮方向と垂直の<100>方向を磁化方向とする磁区および 直線的な180°磁壁で構成された縞状磁区が観察される。 本合金において、<100>方向の磁歪定数は正の値を示す ため磁歪により結晶格子は磁化方向に伸びている。従っ て、磁区構造は引張りおよび圧縮応力を緩和するように 変化する。逆磁歪効果が Fe-Ga 合金単結晶の磁区構造に 及ぼす影響の特色が明らかになった。



図 1 Fe-Ga 合金単結晶の(001)面の磁区構造。(a) 引張り応力印加前、(b) 16 MPa の引張り応力下、(c) 圧縮応力印加前、(d) 12 MPa の圧縮応力下。(a)およ び(b)は[010]方向と平行の観察光で撮影。(c)および (d)は[100]方向と平行の観察光で撮影。

参考文献

- 1) T. Ueno and S. Yamada, IEEE Trans. Magn., **47** (2011) 2407.
- 2) S. Fujieda, S. Suzuki, A. Minato, T. Fukuda and T. Ueno, IEEE Trans. Magn., 50 (2014) 2505204.
- 3) S. Asano, S. Fujieda, S. Hashi, K. Ishiyama, T. Fukuda and S. Suzuki, IEEE Magn. Lett. 8 (2017) 6101004.

M型フェライトにおける Fe²⁺の異方性: La-Na M型フェライト

和氣剛,高尾健太,田畑吉計,中村裕之

(京大院工)

The magnetic anisotropy of Fe²⁺ in M-type ferrite: study on the La-Na M-type ferrite T. Waki, K. Takao, Y. Tabata, H. Nakamura (Dept. Mater. Sci. Eng., Kyoto Univ.)

1 はじめに

六方晶マグネトプランバイト型フェライト ($AFe_{12}O_{19}$; A = Ca, Sr, Ba, La, Pb) は、永久磁石材料として大量に利用されている。現在主流の材料は SrFe_{12}O_{19} の Sr²⁺(SrM) と Fe³⁺ の一部を La³⁺ と Co²⁺ でそれぞれ置換したもので¹⁾、Co²⁺ の 残留軌道モーメントが磁気異方性を増強していると考えられており、La³⁺ は電 荷補償のため添加されている。近年、電荷補償は必ずしも La³⁺ と Co²⁺ の間の みで行われるのではなく、Fe³⁺ の還元により発生する Fe²⁺ も加わって電気的中 性が保たれていることが明らかとなった^{2,3)}。Fe²⁺ も残留軌道モーメントを有す るため、磁気異方性に寄与すると考えられるが、最近 Sr_{1-x}La_xFe_{11.6}Co_{0.4}O₁₉ で Fe²⁺ の存在により一軸異方性が増強されている⁴⁾ と報告され、M 型フェライト における Fe²⁺ の磁気異方性が注目されている。Sr_{1-x}La_xFe₁₂O₁₉(0 ≤ x ≤ 1)に おいて、系統的に Fe²⁺ の効果が調査されており、0 < x < 0.7 では一軸異方性 が低下する一方で、0.7 < xでは増強されることが報告されている⁵⁾。Fe²⁺ の 単イオン異方性が柔全体の異方性に影響を及ぼしていると考えられるが、一方で Fe²⁺ の異方性が濃度で決まるとは考えにくく、異方性を決定づける要因の解明



Fig.1 (NaLa)Mの磁化曲線

が不可欠である。最近、六方晶フェライトの置換 Co²⁺ の磁気異方性が局所歪に敏感である⁶⁾ ことが示され、Fe²⁺ の異方性との関 連に興味が持たれる。本研究では Sr-La 系以外で Fe²⁺ を含む M 型フェライトとして (NaLa)M⁷⁾ に着目し、その単結晶試料を用 いた磁性研究を行った。

2 実験方法

(NaLa)Mの単結晶試料はセルフフラックス法により合成した。原料は La₂O₃, Na₂CO₃, Fe₂O₃の粉末を用い、金属組成が La: Na: Fe = 0.65: 1.85: 12 となるように秤量した。混合した原料を白金るつぼに入れ、電気炉で 1400°C まで加熱した後、1100°C まで-2.5°C/h で徐冷し、その後室温まで炉冷し単結晶を得た。相同定は粉末 X 線解析により行い、組成については波長分散型 X 線分析にて金属イオン量を定量した。磁化測定は SQUID 磁束計を用い、単結晶試料の磁化容易軸 ($H \parallel c$) 及び困難軸 ($H \perp c$)方 向について行った (T = 5 - 300 K, H = 0 - 7 T)。測定した磁化は形状を勘案し反磁場補正を行った。

3 結果および考察

フラックス合成の結果、平板状の単結晶試料を得た。粉末 X 線回折により M 相であることを確認し、格子定数は a = 5.885 Å, c = 22.954 Å と文献値⁷⁾ とよく一致した。組成については Na + La と Fe の比が 1:12 からずれ (= 1:11.3)、A サイトのイオン が過剰であるが、(CaLa)M でも同様のことが報告されている⁸⁾。金属イオンを 13 で規格化すると La_{0.79}Na_{0.27}Fe_{11.94}O₁₉ となり、Fe²⁺ の量は 0.46 と見積もられる。T = 5 K の磁化困難軸方向の磁化曲線には 0.7 T 付近でスピンフリップ転移が観測され、温度の 上昇とともに線形の振る舞いとなる (Fig. 1)。また、全温度域で SrFe₁₂O₁₉ と比べ異方性が低下している。磁化困難軸方向へのス ピンフリップ転移は、Fe²⁺ の異方性エネルギーに c 軸と垂直方向に極小が存在するためと考えられ、この単イオン異方性が、系全体の異方性を低下させている。Fe²⁺ の量は、Sr_{1-x}La_xFe₁₂O₁₉ で異方性磁界が低下している組成のものと同程度である。一方で、軸比 c/a は Sr_{1-x}La_xFe₁₂O₁₉(x > 0.7)と同程度で、単純な軸比を異方性を決める因子と解釈することはできない。今後はより詳 細な局所構造を検討する必要がある。

References

- 1) K. Iida, Y. Minachi, K. Masuzawa, M. Kawakami, H. Nishio, H. Taguchi, J. Magn. Soc. Jpn. 23, 1093 (1999).
- 2) A. Shimoda, K. Takao, K. Uji, T. Waki, Y. Tabata, H. Nakamura, J. Solid State Chem. 239, 153 (2016).
- 3) N. Langhof and M. Göbbels, J. Solid State Chem. 182, 2725 (2009).
- 4) H. Ueda, Y. Tanioku, C. Michioka, and K. Yoshimura, Phys. Rev. B 95, 224421 (2017).
- 5) M. Küpferling, R. Grössinger, M. W. Pieper, G. Wiesinger, H. Michor, C. Ritter, and F. Kubel, Phys. Rev. B 73, 144408 (2006).
- 6) J. Inoue, private communication.
- 7) D. Le Roux, H. Vincent, J. C. Joubert, and M. Vallet-Regi, Mat. Res. Bull., 23, 299 (1988).
- 8) K. Uji, T. Waki, Y. Tabata, H. Nakamura, J. Solid State Chem. 245, 17 (2017).

La-Co 共置換 M 型 Sr フェライトにおけるサイト選択 Co 置換: ⁵⁹Co-NMR による研究 ^{中村裕之, 和氣剛, 田畑吉計, C. Meny*} (京大工, *IPCMS)

Site-selective Co substitution in La-Co co-substituted M-type Sr ferrite: ⁵⁹Co-NMR study H. Nakamura, T. Waki, Y. Tabata, C. Meny* (Kyoto Univ., *IPCMS)

1 はじめに

フェライト磁石母材の La-Co 共置換 M 型 Sr フェライト Sr_{1-x}La_xFe_{12-y}Co_yO₁₂ では、Co が複数の Fe サイトを占有することが 知られているが、一軸異方性に寄与するのは特定のサイトの Co であり、それ以外のサイトの Co は磁気特性改善に役立っていな い可能性がある。そのため、限られた Co 量で磁気特性を改善するには、特定の Co サイトを選択的に置換することが望まれる。 我々は、以前、⁵⁹Co-NMR 実験より、Co の占有サイトは少なくとも 3 サイトあり¹⁾、それらのサイトを占有する Co は全て 2 価の高スピン状態にあることを報告した²⁾.また、様々な実験・計算を通じて、一軸異方性に寄与するのは四面体配位の 4f₁ サ イトの Co である可能性が高まっている³⁾.ところで、試料作製時の酸素分圧を上げると、Co の固溶限が拡大すると伴に、異方 性磁場が Co 組成に対してほぼ線形に増大する⁴⁾.本研究では、高圧酸素下(HIP)で合成し Co 濃度を実用材より大幅に高めた Sr-La-Co 系 M 型フェライトの⁵⁹Co-NMR 実験を行い、Co のサイト選択性を調べた。

2 実験方法

HIP(酸素分圧 387 atm)で合成した x = 0.92, y = 0.93 (WDX 分析組成)の粉末試料⁴⁾を測定に用いた. ⁵⁹Co-NMR 実験は, Strasbourg の IPCMS の無同調広帯域装置を用いて行い,ゼロ磁場,2K で行った.

過去に報告した Sr-La-Co 系試料も含めて 3 種類の試料の ⁵⁹Co-NMR スペクトルを図に示す. それぞれ大気中で合成した x > y の試 料¹⁾,酸素雰囲気下で合成した $x \approx y$ の試料²⁾,および HIP 合成した 試料の結果である. これらのスペクトルは全て同一のスペクトロメー タで測定したものであり、強度が原子数比になるように必要な補正を 加えてある.概ね3種類の信号が観測されるが、全て2価の高スピン の Co の信号であり²⁾, 共鳴周波数の違いは主に軌道磁気モーメント の違いに帰される 5). すなわち内部磁場はスピン成分より軌道成分の 方が大きく、それらの符号が逆のため、共鳴周波数はそれらの相殺の バランスで決まる.低周波域の最も強い信号 S1 が四面体配位 4f1 サ イトの Co 由来であり, 高周波域の 2 つの信号 S2, S3 は八面体配位 12k または 2a サイトの Co 由来と考えられる.酸素分圧が増大すると 高周波域の S2 と S3 が抑制される傾向が見られ, HIP 試料では, 信 号強度は S1 に集中し、S2 と S3 の強度は強く抑制される(実際には S2 が最も強く抑制される). (現時点では、12k/2aの Coの価数やスピ ン状態が変化する可能性を完全には排除できないが)以上の結果は, HIP 合成の試料では、そのほとんどの Co が 4f1 サイトを選択的に占 有することを強く示唆する. すなわち, 酸素分圧の増大は Coの固溶 限を広げると同時にサイト選択性を強める.この結果は、何らかのパ ラメータを適切に制御すれば、スピンマイノリティサイトで一軸異方 性に寄与する 4f1 サイトに Co を集められる可能性を示すものであり, 注目される.

References

- 1) H. Nakamura et al., J. Phys.: Condens. Matter, 28, 346002 (2016).
- 2) 中村裕之他, 第 41 回日本磁気学会学術講演会, 21pC-2 (2017).
- 3) 例えば、中村裕之、まぐね、13,59 (2018).
- 4) T. Waki et al., Mater. Res. Bull. 104, 87 (2018).
- 5) H. Sakai et al., Phys. Rev. B, submitted.

3 結果および考察



酸素分圧制御によるCe置換SrM型フェライトの合成

井上剛、和氣剛、田畑吉計、中村裕之 (京都大学工学研究科材料工学専攻)

Synthesis of Ce Substituted Sr M-type Ferrite by Controlling Oxygen Pressure G. Inoue, T. Waki, Y. Tabata, H. Nakamura (Department of Materials Science and Engineering, Kyoto Univ.)

<u>はじめに</u>

M型フェライト(AFe₁₂O₁₉, A=Ca, Sr, Ba, Pb)は、安価かつ化学的熱的に安定であることから、永久磁石として広く普及している。現在主流の製品は、SrFe₁₂O₁₉のSrとFeがLaとCoで一部置換されたもの(Sr_{1-x}La_xFe₁₂yCo_yO₁₉)であり¹⁾、Co²⁺が磁気異方性を増強していると考えられている。La³⁺は電荷補償のために添加されているが、他の軽希土類(Pr³⁺, Nd³⁺, Sm³⁺)も代替として可能である。La³⁺はSr²⁺に対して全率固溶であるが、Pr³⁺, Nd³⁺, Sm³⁺については固溶限が報告されており²⁾、イオン半径が小さくなるにつれ、固溶しにくくなる。 一方、同じく軽希土類であるCeについては、M相中における安定な価数(Ce³⁺あるいはCe⁴⁺)など不明な点が多く、固溶域は明らかになっていない。

そこで今回、我々はLa³⁺の代替としてCeに注目し、酸素分圧を制御した条件で、Ce置換SrM型フェライトの合成を試み、本系の安定性を検討した。

<u>実験方法</u>

Ce-SrM(Sr_{1-x}Ce_xFe₁₂O₁₉)およびCe-Co SrM(Sr_{1-x}Ce_xFe_{12-y}Co_yO₁₉)の多結晶試料(x,y ≤ 0.4)を固相反応法により合成した。SrCO₃, CeO₂, Fe₂O₃, Co₃O₄を所定の量秤量して混合し、ペレットに成型したのち1200~1300°Cで24時間焼結した。反応時は大気中(P_{02} =0.2 atm)、Ar雰囲気中(P_{02} <0.01 atm)、酸素雰囲気(P_{02} =1.0 atm)と酸素雰囲気を制御した。これらに加えて、高酸素雰囲気中(P_{02} =387 atm)においてもHIP装置を用いることで焼結を行った。得られた焼結体は一部を粉砕し粉末X線回折により相同定を行い、波長分散型X線分光(WDX)により金属イオン濃度を定量した。

実験結果

粉末X線回折の結果、M相が主相の試料を得ることができた。Ceの仕込み濃度が高くなるにつれ、Fe₂O₃およびCeO₂が不純物として現れるようになった。Ceの置換上限は酸素分圧に依存し(高酸素雰囲気で0.05、酸素雰囲気で0.10程度、大気中およびAr中で0.25程度)、分圧が低いほど置換上限が向上することが判明した。 また、格子定数と置換したCeの濃度の関係を他の軽希土類元素と比較したところ、イオン半径を考えるとM相中に置換したCeの価数は3価である可能性が高いことが判明した。

このことから、SrFe₁₂O₁₉に対するCeの固溶域は、イオン半径のみならず、酸素分圧に対するCe³⁺の価数安 定性に強く依存し、高酸素分圧下では著しく置換が抑制されることがわかった。

一方で、Co²⁺置換量の上限は、高酸素分圧下で大きくなり³⁾、酸素分圧に対しCeとCoの置換上限は相反す る傾向を示す。今後のCe-Co置換SrMフェライト磁石の実現に向けては、精密な分圧制御が重要になると考え られる。

参考文献

- 1) K. Iida et al., J. Magn. Soc. Jpn. 23, 1093 (1999).
- 2) D. Seifert et al., J. Am. Ceram. Soc. 94, 2109 (2011).
- 3) T. Waki et al., Mat. Res. Bull. 104, 87 (2018).

M型フェライトにおける一軸磁気異方性の局所歪み依存性

井上順一郎^{1,2}、中村裕之³、柳原英人¹ (筑波大学物理工学域¹、東北大学応用物理学専攻²、京都大学工学研究科) Local strain dependence of uniaxial magnetic anisotropy in M-type ferrites J. Inoue^{1,2}, H. Nakamura³, and H. Yanagihara¹ (Inst. Appl. Phys., Univ. of Tsukuba¹, Dept. Appl. Phys. Tohoku Univ², Kyoto Univ.³)

はじめに 高性能永久磁石の開発は、エネルギー節約型社会実現をめざして達成すべき課題の一つである。実用的磁石として広く使用されている六方晶フェライトの一軸磁気異方性に関しても、その元素置換効果が詳細に調べられている[1]。特に M 型フェライトへの Co²⁺の導入が効果的であることが注目されている[2]。磁気異方性は、基本的には磁性原子(イオン)のスピン軌道相互作用、およびその周りの 格子の低対称性により発現すると考えられる。M 型フェライトにおいても、Fe³⁺イオンとその周りの酸素からなる局所構造が歪んでいることが知られている[1]。

本研究の目的は電子論に基づいて、M型フェライトにおける磁気異方性発現機構の詳細、一軸磁気異 方性に対する局所歪の効果、および元素置換効果を調べることにある。

計算モデル 磁性イオンとその周りの再隣接酸素イオンを含むクラスターに、p-d 混成とスピン軌道相 互作用(SOI)を取り入れた1電子模型を採用する。電子状態の計算には既存の tight-binding 法を採用す る。SOIとしては原子内 SOI を採用する。クラスター内の磁性イオンのシフトおよびクラスターの変形 に伴う一軸磁気異方性の変化を計算する。

計算結果 表1に Ba-ferrite と Sr-ferrite に対する計算結果を示す。Ideal 構造とは、各クラスター形状が 立方晶フェライトのものと一致している構造である。Ideal 構造に対する Ku の計算値は実験値と比較し 小さいが、Fe³⁺から予想される値より大きい。これは p-d 混成による結果である。局所的に歪んだ現実 的結晶構造に対する Ku の計算値は実験値にかなり近い。局所歪の重要性を示す結果である。

図2は、4f₁サイト(4面体クラスター内のサイト)に導入された Co²⁺イオンの一軸異方性の歪依存性 を示す。Sr-ferriteのFe³⁺の位置は dz = 0.002, [c/a]_{ratio} = 1.07 である。したがって、この位置に存在する Co²⁺は負の一軸異方性を与える[3]。一軸異方性の増大のためには、4面体の大きな歪または磁性イオン のシフトが必要であることがわかる。六方晶フェライトの磁気異方性の実験的検証には、高精度の歪測 定が必須である。同様に第一原理計算においても高精度の計算が要求されることになろう。

表1 M型フェライトの一軸異方性係数 Ku の計算値と実験値。各クラスターの形状が 立方晶フェライトのものと一致している場合 を ideal 構造としている。単位は M erg/cm³

	Ideal str.	Ba	Sr
K _u (cal)	0.95	2.45	2.60
K _u (exp)		3.25	3.57

謝辞 本研究は産学共創基礎基盤研究

参考文献

- [1] 中村裕之、Mag. Jpn. 13, 59 (2018).
- [2] 小林善徳、Mag. Jpn. 13, 68 (2018).

0.90 0.95 1.00 1.05 1.10 [**c**/**a**]_{ratio} 図 1 4f1 サイト上の Co²⁺イオンの示す局所磁気異方 性の計算値。δz はクラスター内 Co²⁺イオンの z 軸方向

[3] J. Smit and H. P. J. Wijn, Philips Research Report "Ferrites" (1959).



性の計算値。 δz はクラスター内 Co^{2+} イオンの z 軸方向 のシフト(0.001 が 1% に対応)、 $[c/a]_{ratio}$ は c/aの理想 値で規格化された値である。

プログラムの援助で行われた。

Co フェライト薄膜の結晶配向制御及びその磁気特性

馬闖¹, 原佑輔¹、Sagar Shirsath²、Danyang Wang², 森迫昭光¹, 劉小晰¹ (¹信州大学、²ニューサウスウェールズ大学) Magnetic properties of Co-ferrite/Fe-Co bilayers C. Ma¹, Y. Hara¹, S. Shirsath², D. Wang², A. Morisako¹ and X. Liu¹ (¹Shinshu University, ¹University of New South Wales)

はじめに

スピネル構造を有する Co フェライトはスピントロニクス及び人工マルチフェロイックの材料として注目 を集めている。高い抵抗率と高キュリー温度を有するため、Co フェライト薄膜は絶縁フェライトと非磁性電 極を組み合わせるとスピン偏極電流を生成することができ、いわゆるスピンフィルタにおいて有用である。 また、Co フェライトではマルチフェロイック構造を有する強磁性相の間で大きな磁歪効果を示す。更に、Co フェライト薄膜の興味深い特性を実現するためには、(001)配向及び垂直磁気異方性を有する薄膜が不可欠で ある。これまで、Co フェライトのヘテロエピタキシャル成長において SrTiO₃や MgO などの単結晶基板を用 いたが、実用的な観点から我々は SiO₂/Si 基板上に(001)配向を有する Co フェライト薄膜の作製を試みた。

実験方法

薄膜形成には対向ターゲット式パッタリング装置(FTS)を用いて、熱酸化シリコン(SiO₂/Si)基板上に Co-Fe-O/Co-Fe 薄膜を作製した。但し、試料作製時に基板加熱を施さない。

作製した試料に VSM を用いて磁気特性を測定し、X 線回折装置(XRD)による結晶構造の解析を行った。

実験結果

Fig. 1 に膜厚が 60 nm を有する Co フェライト薄膜の磁化曲線を示す。(a)に FeCo 下地層を有しない試料、 及び(b)は 3 nm の FeCo 下地層を有する試料とする。FeCo 下地層なしの試料では約 110 emu/cc の飽和磁化を 有するが、バルクの Co フェライトと比較するとほぼ 1/4 である。これは結晶膜中に非磁性結晶相を有するこ とを示す。しかし、FeCo 下地層 3 nm を有する試料では飽和磁化が急激に増加した。X 線回折の測定結果か らは FeCo 下地層を用いて基板加熱しなくても結晶化しスピネル構造を有することを明らかにした。この結果 からは、FeCo 下地層がスピネル構造の結晶化温度を劇的に低下させたことを示唆している。また、全ての試 料を 800 ℃ で 2 時間熱処理を施すことにより保磁力が劇的に増加した。Fig. 1(c)に FeCo 下地層を有しない試 料、及び(d)に FeCo 下地層 3 nm を用いた試料のそれぞれの熱処理後の結果を示す。両方の試料とも優れた垂

直磁気異方性を示すが、FeCo下地層を用 いた試料はより小さい面内保磁力を示し、 更に優れた垂直磁気異方性を示した。Fig. 2(a)はFeCo下地層を有しない試料、及び (b)にFeCo下地層を用いた試料の熱処理 後のX線回折結果を示す。FeCo下地層を 有しない場合は(311)面が最も強い回折線 であるが、FeCo下地層を有する試料では (004)面が最も強い回折線であることを示 した。また、面内X線回折法によって a=b=8.43Å、c=8.35Åと結晶格子のパラメ ータを算出した。これは、立方晶スピネル 構造の c 軸を圧縮したことを示唆する。こ のような圧縮結晶構造はCoフェライトに 大きな保磁力をもたらす要因である。







粒界改質法による高保磁力 Nd-Fe-B 系磁石の作製と 磁気特性の精密評価

町田憲一、李 娜, 鄭 翰林、西尾博明、遠藤政治 (大阪大学)

Preparation of Highly Coercive Nd-Fe-B Magnets by Grainboundary Modification Method and Precise Characterization of the Magnetic Properties Ken-ichi Machida, Na Li, Hanlin Zheng, Hiroaki Nishio, Masaji Endo (Osaka Univ.)

1. 緒言

近年、EV や HEV などの普及に伴い、高温仕様モータ用の高保磁力磁石の需要が高まっている。ここで、 当該高保磁力磁石の評価に必要な磁場との関連から、1) 温度を上げて低下した保磁力の状態で測定する、2) パルス磁場または超電導マグネットによる静磁場下で測定する、等の方法により磁石仕様が算定されている。 これに対して当研究室では、円柱 (~10 mm) 磁石の評価が可能な超電導磁石式 VSM を導入し、球状試料 を基準として反磁界補正パラメータを設定することで、一連の仕様の Nd-Fe-B 系焼結磁石の磁気特性を高精 度で測定できることを明らかにした[1,2]。今回は、市販の磁石を粒界改質法により保磁力を高めた Nd-Fe-B 焼結磁石を作製し、これらの磁気特性を反転磁界分布などの概念をもとに評価したので報告する。

2. 実験

改質に用いた磁石は信越化学工業㈱製の N52、N36Z および N32EZ の市販品で、円柱状(10 mmφ×3.5 mmL) のサイズに切断し有機溶媒で脱脂後、既報[3]に従い改質処理を行った。改質材である Nd-Al 系または Tb-Al 系と Nd と Tb と同時に含む Tb-Nd-Al 系合金は、所定量の各単体金属(純度:99~99.99%)をアーク溶解す ることで作製し、これらを粉砕後スラリーの状態で所定量磁石表面に塗布した。引き続き、これらを精製 Ar 雰囲気中、950℃で4時間加熱後、更に550℃~600℃で2時間アニール処理した。得られた円柱状磁石では 高さ方向Lに沿って垂直に各底面を研磨し、超電導式 VSM 装置を用いて室温で測定した。

3. 結果と考察

Nd-Al 系または Tb-Al 系と Nd と Tb と同時に含む Tb-Nd-Al 系合金粉末を改質材として処理した試料の磁気ループ曲線(上 図)と、Tb₂Al 合金で処理した磁石の磁気ループ曲線に同微分 曲線を併記したもの(下図)を併せて図1に示す。なお、改質 磁石試料の測定は2個の円柱状磁石を上下方向に2枚重ね、 L=7 mm として測定を行ったものである。上図から、Tb-Al 系 合金の改質により保磁力が効果的に増大する反面、未処理磁石 に比べて角型性が多様に変化することがわかる。同様の結果は N52 および N36Z 磁石でも見られた。

図1の下図は、Tb₂Al 合金粉末を用いて粒界改質した磁石の 磁気ループ曲線と同微分曲線を示したもので、微分曲線の半値 幅を反転磁界分布と定義し、講演では改質成分である Tb の分 布と磁石の角型性との相関について議論する。

参考文献

- H. Nishio, K. Machida, K. Ozaki, *IEEE Trans. Magn.*, 53 (2017) 6000306.
- 町田、難波、愈、西尾、遠藤、第41回日本磁気学会学術講 演会 (2017) 21aC-4.
- 3)町田、李、金属、78 (2008) 760 など.



Nd-Fe-B系焼結磁石の磁気特性

Temperature dependence of microstructure of Tb-rich shell in grain boundary diffusion processed Nd-Fe-B sintered magnets

Tae-Hoon Kim^(a), T. T. Sasaki^(a), T. Ohkubo^(a), Y. Fujikawa^(b), M. Miwa^(b), Y. Enokido^(b), and K. Hono^(a) ^(a) Elements Strategy Initiative Center for Magnetic Materials, National Institute for Materials Science, Tsukuba-city, Ibaraki 305-0047, Japan ^(b)TDK Corporation, Narita-city, Chiba 286-8588, Japan

In Nd-Fe-B sintered magnets, the formation of heavy rare earth (HRE, Dy or Tb) enriched shell by the grain boundary diffusion process (GBDP) is essential to improve the coercivity while minimizing the HRE usage [1]. Due to higher anisotropy field of $Tb_2Fe_{14}B$ than $Dy_2Fe_{14}B$, the Tb-GBDP is more effective to enhance the coercivity of the magnets. During the GBDP of Tb at 970 °C, the Tb-rich shell is formed by the diffusion induced grain boundary migration (DIGBM) [1]. The Tb concentration at the Nd-rich grain boundary (GB) region abruptly increases upon the GBD of Tb, and it provides a chemical driving force for the GB migration. Thereby, after the Tb-rich shell formation, the size of the main phase grain increases by the thickness of the shell [1]. This implies that the thickness of Tb-rich shell and the size of main phase grain can be controlled simultaneously by controlling the driving force for DIGBM. According to the simulation, the formation of thinner Tb-rich shell and smaller main phase grain are strongly required to further improve the coercivity of Tb-GBDP magnets [2], and we can expect that those microstructure is obtained by reducing the Tb-GBDP temperature. In this study, we investigated the change in the microstructure of Tb-rich shell as a function of the Tb-GBDP temperature.

The as-sintered Nd-Fe-B magnets were GBD processed using TbH₂ powder at 870, 920, and 970 °C. The GBDP magnets were annealed at 520°C. Magnetic and microstructure characterizations were carried out using a BH-tracer, EDS, SEM, and TEM.

Fig. 1 shows the magnetic property changes as a function of the Tb-GBDP temperature. The coercivity of GBDP magnet increased from 1.9 to 2.1 T as the GBDP temperature decreased from 970 to 870 °C. The remanence was not affected by the change of GBDP temperature. Fig. 2(a) shows the microstructure of 870 °C and 970 °C GBDP magnets at a depth of 100 µm. In the higher temperature GBDP magnet, the thickness of Tb-rich shell was thicker and the size of main phase grain was larger, compared to those in the lower temperature GBDP magnet. Notably, the average Tb concentration of the shell was higher in the lower temperature GBDP magnet, as shown in Fig. 2(a). Upon the GBD of Tb, the increment of Tb concentration at the Nd-rich GB region (*i.e.* driving force for DIGBM) was larger when the GBDP temperature was higher, thereby forming thicker Tb-rich shell and larger grain in the higher temperature GBDP magnet. Since the GB migrated while consuming the Tb during the Tb-rich shell formation, the average Tb concentration within the shell was higher when the thinner Tb-rich shell was formed at lower GBDP temperature, as shown in Fig. 2(a). Interestingly, the formation of Tb-rich shell was also observed at the center part of both the 870 °C and 970 °C GBDP magnets as shown in Fig. 2(b). Unlike near the magnet surface, the Tb-rich shell at the magnets center seems to be formed by the solid diffusion of Tb rather than the DIGBM. Nevertheless, as observed at 100 depth, thinner shell with higher Tb concentration was also formed at the center part of the lower temperature GBDP magnet, as shown in Fig. 2(b). Conclusively, the smaller grain size and the formation of thinner Tb-rich shell with higher Tb concentration are the main factor for higher coercivity of lower temperature GBDP magnet. The relationship between the GBDP temperature and microstructure of Tb-rich shell at various magnet depths will be discussed in detail. References

[1] T. H. Kim et al., to be submitted (2018).

[2] T. Oikawa et al., AIP Advances, 6 (2016) 56006-1.



Figure 1. Magnetic property change of Tb-GBDP magnet as a function of GBDP temperature



Figure 2. (a) BSE images and tracings of GB at 100 μm depth of Tb-GBDP magnets. (b) 3DAP atom maps for Tb at center part of Tb-GBDP magnets.

異なる結晶粒配向度を有する Nd-Fe-B 磁石の

First-order reversal curve (FORC)

山本 浩之,甕 久実,北川 功 (日立製作所 研究開発グループ)

First-order reversal curve diagrams in sintered Nd-Fe-B magnets with different crystal grain alignment

H. Yamamoto, K. Motai, and I. Kitagawa (Hitachi, Ltd. Research & Development Group)

研究背景

Nd-Fe-B 磁石のさらなる保磁力(H_{cJ})の向上のためには、H_{cJ}と磁石内の組織要因(粒界幅¹⁾や粒界相の 磁性²⁾など)との関係性を明らかにすることが不可欠である。これまでの先行研究から、Nd-Fe-B 焼結磁石 の結晶粒の配向度が向上すると H_{cJ} が低下することが報告されている³⁾。この H_{cJ} の配向度依存性の理解を 進めるには、H_{cJ} という一つの磁気特性値だけでなく、配向度を変えた際に磁化反転にどのような変化が生 じるか、より詳細な情報を得ることが重要となる。磁石の磁化反転挙動を詳細に解析する手法として FORC (First-Order Reversal Curve)が知られており、メジャーヒステリシス曲線では見えにくい磁石内の磁化過程 を調べる手法として有望視されている^{4,5)}。本研究では結晶配向度と磁化過程の対応関係を明らかにすること を目的として、配向度が異なる Nd-Fe-B 焼結磁石試料の FORC 解析を行った。

実験方法

圧粉成型時の印加磁場強度を変えることにより、配向度 α が異なる複数のNd-Fe-B 焼結磁石を作製した。ここで α は3方向の残留磁束密度(B_r)の測定値から $\alpha = B_{r,z}/(B_{r,x}^2 + B_{r,y}^2 + B_{r,z}^2)^{1/2}$ で定義した。作製した試料の特性値をTable 1 に示す。マクロな反磁場の影響を抑制するため、各試料は 1×1×6 mm のピラー形状に加工し

た。これらの試料について,超伝導 VSM (最大印加磁場 60 kOe) により室温での FORC データを測定した。

実験結果

Fig. 1 に、各試料の FORC ダイアグラム(回転なしの H_a - H_b ダ イアグラム)の比較を示す。最も配向度 α と B_r が高い試料Aでは、 局所的な保磁力の分散(σ H_c)が他の試料に比べて最小である。 これは、高配向磁石では粒子群の反転挙動がより均一化されてい ることを示唆する。それに対し、無配向の試料Cではダイアグラ ムのピークが、低磁場領域(左上)から高磁場領域(右下)まで 広範囲に広がり、 σ H_c および相互作用磁場の分散(σ H_{int})が増大 する。この特徴は、無配向磁石では異なる反転磁場を有する多様 な粒子群が存在し、その中には反転磁場の高い粒子群も存在する ことを示唆する。今後、これらダイアグラム上の特徴と、磁石内 の微細組織との関連性を明らかにできれば、さらなる高 H_{cl} 化に むけて有効な知見が得られると期待される。

謝辞

本研究研究における磁石材料は日立金属㈱より提供頂いた。

参考文献

- 1) H. Yamamoto et al., REPM 2016, P3-05 (2016)
- 2) T. Kohashi et al., Appl. Phys. Lett. 104, 232408 (2014)
- 3) Y. Matsuura et al., J. Magn. Magn. Mater., 336, 88 (2013)
- 4) C. R. Pike et al., J. Apple. Phys., 85, 6660 (1999)
- 5) T. Yomogita et al., J. Magn. Magn. Mater., 447, 110 (2018)

Table 1. Sample Properties



熱間加工 Nd-Fe-B 磁石の微小領域の高感度磁化測定

蓬田貴裕¹, 岡本聡^{1,2}, 菊池伸明¹,北上修¹, Sepehri-Amin Hossein²,

大久保忠勝², 宝野和博², 秋屋貴博³, 日置敬子⁴, 服部篤³

(東北大学¹, ESICMM, NIMS², (株)ダイドー電子³, 大同特殊鋼(株)⁴)

Highly sensitive magnetic measurement for a very small area of hot-deformed Nd-Fe-B magnet

T. Yomogita¹, N. Kikuchi¹, S. Okamoto^{1, 2}, O. Kitakami¹, H. Sepehri-Amin²,

T. Ohkubo², K. Hono², T. Akiya³, K. Hioki⁴, and A. Hattori³

(¹Tohoku Univ., ²ESICMM, NIMS, ³Daido Electronics Co. Ltd., ⁴Daido Steel Co. Ltd.)

<u>はじめに</u>

バルク永久磁石における磁化反転過程は、膨大な数の反転核生成ならびに磁壁デピニングが同 時多発的に進行している.これらの反転核生成や磁壁デピニングの単一のイベントを直接計測で きれば、磁化反転過程機構に関し一層理解が深まることが期待される.その為にはバルクの磁気 特性を保ったまま試料を少なくともミクロンサイズまで微細化し、その磁化を高感度に検出する 必要がある.異常ホール効果 (Anomalous Hall Effect, AHE) 測定では磁化 z 成分に比例するホー ル信号を検出するが、それは原理的に試料サイズに依存しないため、微小領域の高感度磁化測定 に適している.試料に関しては、熱間加工 Nd-Fe-B 磁石を用いることを検討している.熱間加工 Nd-Fe-B 磁石は *c*-面に平行な薄い板状粒子が緻密に配列した特徴的な構造を有しており¹⁾、各粒子 が数百ナノメートルオーダーの大きさであることから加工ダメージの影響を受けにくいものと期 待できる.本研究では、試料を厚さ 5 µm 程度にまで薄手化し、さらに FIB 加工により測定領域を ミクロンサイズにまで追い込んだ上で AHE 測定を行い、一連の加工ダメージの影響ならびに計測 感度などに関する知見を得た.

<u>実験方法</u>

1 mm 角に加工した熱間加工磁石をガラス基板に固定 し、機械研磨により厚さ 5 μm 程度にまで薄手化をし た. 試料の表面には保護層として Ta を 4 nm 製膜し, 電極との最終的な導通には銀ペーストを用いた. この 試料に対し, Fig.1 に示すように, FIB により十字型の 切り込みを入れて, 140 μm の AHE クロスを作製し た. AHE 測定には PPMS (カンタム・デザイン社製)を 用いた.

結果と考察

Fig. 2 に FIB 加工前後の AHE 測定結果を示す. 5 µm まで薄手化しても高感度に磁化曲線が観察されており, FIB 加工前後の磁化曲線に変化が認められないことか ら,加工によるダメージは僅かだと考えられる. 今後は 単一の磁壁のみが存在する 10 µm 程度にまで AHE クロ スを微小化し,磁化反転過程の解明に向けた実験,解析 を行う予定である.

謝辞:FIB加工は東北大学産業連携先端材料研究センター共用機器 Helios NanoLab[™] 600i (FEI 社製)を用い,佐藤香織氏にご協力頂きました.また本研究は科研費ならびに ESICMM による支援の元で行われた.

4. <u>参考文献</u>

1) J. Liu et al., Acta Mater. 61, 5387 (2013)



Fig. 1 Optical image of microstructured Nd-Fe-B magnet for AHE measurements.



Fig. 2 AHE signals before and after FIB fabrication.

*RE*₂Fe₁₄B 及び *RE*Fe₁₁Ti 希土類磁石に対する 非弾性中性子散乱を用いた研究

羽合孝文¹, 矢野正雄², 庄司哲也², 齋藤開^{1,3}, 横尾哲也^{1,3}, 伊藤晋一^{1,3}, 小野寛太¹ (¹高エネ研,²トヨタ自動車, ³J-PARC MLF)

Inelastic neutron scattering study for *RE*₂Fe₁₄B and *RE*Fe₁₁Ti

Takafumi Hawai¹, Masao Yano², Tetsuya Shoji², Hiraku Saito^{1,3}, Tetsuya Yokoo^{1,3}, Shinichi Itoh^{1,3}, Kanta Ono¹ (¹KEK, ²Toyota Motor Corp, ³J-PARC MLF)

はじめに

ハード磁性材料の磁気特性を有限温度で定量的に理解するには、実験及び理論両方からのアプローチが必 重要である。特に、磁性イオン間の磁気相互作用は第一原理計算において重要な量である。この量を実験的 に決定する方法の一つとして、中性子非弾性散乱によるスピン波測定が挙げられる。中性子非弾性散乱は、 希土類永久磁石の持つエネルギースケールでスピン波を測定することができるといった利点を持つ[1]。特に 希土類元素や組成が変化した時に磁気相互作用がどのような影響を受けるかという興味が持たれる。そこ で、本研究では、様々な希土類磁石に対して非弾性中性子散乱実験を行ったので結果を報告する。

実験方法

 RE_2 Fe₁₄B (RE = Y, Nd) 及び REFe₁₁Ti (RE = Y, Nd)の多結晶をそれぞれ 20 g 程度用意し、非弾性中性子散乱実験を J-PARC センター 物質・生命科学 実験施設 (MLF) にある BL12-HRC 分光器を用いて行った[2]。試料中の B は吸収の影響を抑えるため¹¹B に置換してある。多結晶体の磁気励起の 強度は粉末平均及び磁気形状因子により散乱ベクトルの大きさ q に対し て急激に減衰するため、q=0 近傍の磁気励起を測定する必要がある。今 回の実験は中性子ブルリアン散乱法を用いて測定した。これは、前方散乱 に対する非弾性中性子散乱実験であり、 $q\sim0.1$ Å⁻¹ 程度までの低角側の 励起を測定できる。

実験結果

図1 に YFe₁₁Ti の非弾性中性子散乱スペクトルを示す。楔形状に強度が あるところがスピン波によるシグナルである。強磁性体のスピン波は q が小さい領域では q の二次関数($E = Eg + Dq^2$)で近似でき、図中にアイガ イドとして示してある。それらの結果をまとめてプロットしたものが図 2 である。 $RE_2Fe_{14}B$ 系に置いては、Y を Nd に置換することでスピン波の ギャップが広がり、磁気異方性が大きくなることを示している。一方で $REFe_{11}Ti$ 系においては Y を Nd に置換してもギャップには大きな変化は 見られない。また、 $RE_2Fe_{14}B$ と $REFe_{11}Ti$ 系ではスピン波の速度が大きく 異なることがわかった。詳細な議論は当日行う。

謝辞:本研究は文部科学省の委託事業である元素戦略磁性材料研究拠点の 支援を受けて実施された。試料作成は高効率モーター用磁性材料技術研究 組合の支援のもと行った。非弾性中性子散乱実験は J-PARC にてマルチプ ローブ共同利用実験 (Proposal No. 2015MP004)により行われた。

参考文献

[1] K. Ono, et al., J. Appl. Phys. 115, 17A714 (2014)

[2] S. Itoh, et al., J. Phys. Soc. Jpn. 82, SA033 (2013)



図 1: YFe₁₁Ti の非弾性中性子 スペクトル。図中の点線は各 q で E 方向にガウシアンフィ ッティングすることにより求 めたスピン波の分散。



(Sm,Y)(Fe,Co)_{12-x}Ti_xにおける生成相と磁気特性

萩原 将也、眞田 直幸、桜田 新哉 (株) 東芝 研究開発本部 研究開発センター Structural and magnetic properties of (Sm,Y)(Fe,Co)_{12-x}Ti_x Masaya Hagiwara, Naoyuki Sanada, Shinya Sakurada

Corporate Research & Development Center, Research & Development Division, Toshiba Corporation

<u>緒言</u>

近年、Sm(Fe,Co)₁₂薄膜で1.78 T の高い飽和磁化が報告されるとともに[1]、バルク材料としては従来よりも Ti 濃度の低い(Sm_{0.8}Zr_{0.2})(Fe_{0.75}Co_{0.25})_{11.5}Ti_{0.5}において高い磁気物性値が報告されており[2]、ThMn₁₂型結晶構 造を有する希土類鉄系化合物が再び注目を集めている。著者らは過去に R-Fe-Si 系において、Zr が希土類サ イトを占有し、希土類サイトの平均原子半径を低下させることによって ThMn₁₂型構造が安定化することを 見出しているが[3]、R-Fe-Ti 系においても類似の安定化機構が関与しているものと考えられ、相安定性や磁 気特性に及ぼす希土類サイトの影響についてはさらに系統的な研究が必要である。本研究では、その一環と して、Sm よりも原子半径の小さな Y に着目し、Sm の一部を Y で置換した(Sm,Y)(Fe,Co)_{12-x}Ti_xにおける生 成相および磁気特性について検討した。

<u>実験方法</u>

(Sm_{0.8}Y_{0.2})(Fe_{0.8}Co_{0.2})_{12-x}Ti_x (x=0.5, 0.6, 1)組成の合金インゴットをアーク溶解で作製した後、Ar 雰囲気中 1523 K で 25~50 h の熱処理を施すことにより試料を作製した。試料における生成相および微細組織は XRD、SEM を用いて評価した。磁気特性は VSM を用い 300K にて印加磁場 9T まで測定した。測定試料は試料粉末を溶融パラフィン中 2T の磁場で配向させた後に固化することで作製した。反磁界補正は行わなかった。

<u>実験結果</u>

Fig.1 に各試料の XRD プロファイルを示す。Sm の 20 原子%をYで置換することによって、x=0.6までTi量を 低減しても x = 1 の場合と同様 α-(Fe,Co)相からの回折ピ ークはほとんど見られず、ThMn₁₂型相がほぼ単相状態で 得られることが明らかになった。Y 置換に伴う希土類サ イト平均原子半径の低下が ThMn₁₂型相の安定性向上に 寄与したものと推測される。一方、x=0.5 まで Ti 量を低 下すると、α-(Fe,Co)相のピークが明確に現れるとともに、 ThMn12型相特有の(310), (002), (202), (222)面からの回折 ピーク強度が低下した。ThMn12型相ほぼ単相が得られた x=0.6.1の各試料の磁化容易軸方向および磁化困難軸方 向のMHカーブをFig.2に示す。容易軸方向と困難軸方 向の外挿線の交点から求めた飽和磁化と異方性磁界はそ れぞれ $\mu_0 M_s = 1.34 \text{ T}, \mu_0 H_a = 11 \text{ T} (x = 1), \mu_0 M_s = 1.50 \text{ T}, \mu_0 H_a$ =11T(x=0.6)であり、Ti量の低減により飽和磁化が向上 することが確認できた。

参考文献

- 1) Y. Hirayama et al. Scr. Mater. 138 (2017) 62-65.
- 2) T. Kuno et al. AIP Adv. 6 (2016) 025221.
- 3) S. Sakurada et al. J. Alloys. Compd. 187 (1992) 67-71.



Fig.1 XRD patterns of (Sm_{0.8}Y_{0.2})(Fe_{0.8}Co_{0.2})_{12-x}Ti_x (x=0.5, 0.6, 1).



Fig.2 Magnetization curves of (Sm_{0.8}Y_{0.2})(Fe_{0.8}Co_{0.2})_{12-x}Ti_x (x=0.6, 1).

Nd-Fe-B 磁石における強磁性共鳴の温度依存性

西野正理¹、宮下精二²

(¹物材機構、²東大院理)

Temperature dependence of the ferromagnetic resonance of Nd-Fe-B magnets

Masamichi Nishino¹ and Seiji Miyashita²

(¹NIMS, ²Univ. of Tokyo)

イントロダクション

ネオジム磁石 Nd2Fe14B は高い保磁力を持つ永久磁石として知られ、モーターや発電機など広い範囲で商 用に利用されている[1]。しかし、保磁力機構は未解明の部分も多く、その解明には磁化ダイナミクスの機構 の理解が不可欠である。磁石の理論計算は、マイクロマグネティクスにおける連続体モデルによるシミュレ ーションの研究が主に行われてきたが、機構のミクロなスケールからの解明には、原子論からの微視的なモ デルに基づくダイナミクスの解析[2]が必要である。我々は、微視的モデルからの磁石の動的特性の理解をめ ざしている。今回我々は、ネオジム磁石の原子論的スピンモデルを用いて強磁性共鳴周波数の温度依存性を 調べ、その非単調な振る舞いを見いだした。

磁化ダイナミクス

 $\mathcal{H} = -\sum_{i < j} 2J_{ij} \boldsymbol{s}_i \cdot \boldsymbol{s}_j - \sum_i^{\text{Fe}} D_i (s_i^z)^2 + \sum_i^{\text{Nd}} \sum_{l,m} \Theta_{l,i} A_{l,i}^m \langle r^l \rangle_i \hat{O}_{l,i}^m$ スピンモデルは次のように与えられ、 交換相互作用や磁気異方性の値は、第一原理計算あるいは実験から決められたものを使用した[3.4.5]。 モデルは T=150 K 付近で磁気再配列転移を示し、実験値をほぼ再現する。また、臨界温度は Tc~800 K であ り、実験値のTc~600-700Kよりは少し高いが、総じてモデル化が妥当なことを示している。我々は、磁化 ダイナミクスを記述する基礎方程式である Landau-Lifshitz-Gilbert(LLG)方程式に熱揺らぎ(温度効果)を正し く取り込んだ方法論(Stochastic LLG法)[2]を用いて Power Spectrum を計算した。このピーク位置に相当す る周波数が共鳴周波数に相当する。我々は、Power Spectrum の温度依存性の解析において、図1のようにピ ークの周波数位置が温度上昇とともに一度上昇して下降するという、非自明な振る舞いを見出した。本講演 では、この非自明な温度依存性は磁気再配列転移を示す系に普遍的なものであり、その起源は、再配列にお

いておこる内部磁場の特徴的な変化に由来することを理論的に示す。



図1 Power Spectrum の温度依存性。

参考文献

- S. Hirosawa, M. Nishino and S. Miyashita, Adv. Nat. Sci.: Nanosci. Nanotechnol. 8, 013002 (2017). 1)
- M. Nishino and S. Miyashita, Phys. Rev. B. 91, 134411 (2015). 2)
- Y. Toga et al., Phys. Rev. B 94, 174433 (2016). 3)
- M. Nishino, Y. Toga, S. Miyashita, H. Akai, A. Sakuma, S. Hirosawa, Phys. Rev. B 95, 094429 (2017). 4)
- T. Hinokihara, M. Nishino, Y. Toga, and S. Miyashita, Phys. Rev. B 97, 104427 (2018). 5)

14pC - 8

磁化反転における粒界相の効果

塚原宙、岩野薫、三俣千春¹、石川正、小野寛太 (高エネ研,¹物材機構)

Effects of grain boundary phases on magnetization reversal process

H. Tsukahara, K. Iwano, C. Mitsumata¹, T. Ishikawa, and K. Ono $({\rm KEK},\,^1{\rm NIMS})$

はじめに

温暖化などの環境問題が深刻さを増しておりヨーロッパ諸国など多数の国々で電気自動車への以降が進んで いる. 高エネルギー効率な電気自動車には高性能な永久磁石が不可欠であり精力的に研究されている. 永久磁 石の保持力は浸透処理により改善される. 浸透処理により各粒子間に存在する粒界相が改善され粒子間の磁 壁移動を阻害する. しかしながら磁化反転過程における粒界相の働きは完全には理解されていない. 我々は減 磁過程における粒界相の効果を大規模シミュレーションを用いて研究を行った.

計算手法

多数の立方体粒子を格子状に並べた異方性磁石モデルを用いて減磁過程のシミュレーションを実行した (図1(a)参照). 異方性磁石モデル1辺の長さは1024nm であり各粒子の粒径は62nm である. また粒 界相は図1(b),(c)に示されるように z 軸方向のみもしくは全ての方向に粒界相がある場合を考え、それ ぞれ type A および type C とした. シミュレーションでは外部磁場を z 方向に印加し Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式を有限差分法を用いて周期境界条件下で計算した. 異方性磁石モデルは1辺2nmの多数の 立方体セルで分割し、Nd₂Fe₁₄Bを想定し粒子内では飽和磁化1281.2 emu/cm³、磁気異方性定数4.5×10⁷ erg/cm³、交換スティフネス定数12.5×10⁻⁷ erg/cm とした. 粒界相では主相粒子に比べ飽和磁化は10%、 交換スティフネス定数は1%とし、磁気異方性は無いとした. 各粒子の容易軸は z 軸から Δθ 傾いており、

平均の $\Delta \theta$ は 11.6 °である. シミュレーションで は独自に開発したシミュレーターを使用した [1]. 結果

Type A および C の減磁曲線を図 1(d) に示す. 減磁曲線は 2 つの粒界相によらずほぼ同じ形状を 持ち、図 1(e) および (f) に示す様に磁化反転した 領域もどちらの場合も z 軸方向に広がる傾向を持 つ.しかしながら反転する粒子の $\Delta \theta$ は粒界相に より大きく異なる.図 1(g) に保持力近傍における 磁化反転した粒子 (青線)としない粒子 (赤線) の $\Delta \theta$ に対するヒストグラムを示す.Type A で は磁化反転の有無にかかわらずヒストグラムは同 じ形状の曲線となる.これに対し type B では小 さな $\Delta \theta$ を持つ粒子では磁化反転を起こさない傾 向があり type A と顕著な違いを示す.

謝辞

本研究の一部は、高エネルギー加速器研究機構 (KEK)の大型シミュレーション研究(課題番号 16/17-25)により行われた.

H. Tsukahara, K. Iwano, C. Mitsumata, T. Ishikawa, K. Ono, Comput. Phys. Commun, 207, 217 (2016).



Fig 1: The simulation model (a), the grain boundary phase of type A (b) and C (c). The black lines represent the grain boundary phase. The calculated hysteresis curve (d), and the magnetization of type A (e) and C (f) at coercive field. The histograms of (g) the grains with $m_z > 0$ and (h) $m_z < 0$. N_g is the number of the grains.

Magnetic properties of $L1_0$ -Mn₅₀Ga_{50-x}Al_x epitaxially grown thin films

Keisuke Kamiya^{1,2}, Yoshitomo Tanaka², Siqian Zhao¹, Gary Mankey¹ and Takao Suzuki¹

¹Center for Materials for Information Technology (MINT), The University of Alabama, Tuscaloosa, AL, United States ²Materials Development Center & IP HQ, TDK Corporation, Ichikawa, Chiba, Japan

The L1₀-MnGa and –MnAl alloy thin films have received much attention because of their high magnetic anisotropy of the order of 10^7 erg/cm³ at room temperature, for potential applications such as rareearth free permanent magnets. ^{1), 2), 3)} The present work aims to study the magnetic anisotropy mechanism of L1₀-Mn₅₀(GaAl)₅₀ films in conjunction with structure.⁴⁾

Thin films of $Mn_{50}Ga_{50-x}Al_x$ were grown onto MgO (001) substrates by DC magnetron sputtering using $Mn_{50}Ga_{50-x}Al_x$ (x = 0 ~ 20) alloy targets. During deposition, the substrates were heated at around 600 °C. The film thicknesses for all the samples were about 60 nm. The crystal structures of the films were characterized by XRD (Cu K α) and TEM. Measurements of magnetic properties were carried out by VSM and torque magnetometer in fields up to 90 kOe over temperatures ranging from 20 to 300K.

Figure 1 shows the XRD patterns of the films. All the samples possess the c-axis orientation along the film normal and exhibit a (001) super lattice peak of the ordered L1₀ structure. The order parameter S were estimated based on the intensity ratio of $I_{(001)}/I_{(002)}$ to be about 0.9⁴), 0.8, 0.6, 0.4 for x = 0, 5, 10 and 20. Figure 2 shows the temperature dependence of saturation magnetization M_s and uniaxial magnetic anisotropy K_u over a temperature range of 20 to 300 K. It is seen that the K_u decreases rapidly with T than the M_s does. The exponent n in the correlation of K_u \propto M_sⁿ is found to decrease with x from around 2.5 for x= 0 to about 2 for x= 20, as shown in the inserted figure in Figure 3. These results suggest the significant deviation from the single ion-model for the magnetic anisotropy mechanism.⁴

The present work was supported in part by NSF-CMMI (#1229049) and TDK Corporation.

References

- 1) T.J. Nummy et al., Appl. Phys. Lett., 99, 252506 (2011).
- 2) Q.M. Lu et al., Sci. Rep., 5, 17086 (2015).
- 3) L.J. Zhu et al., Chin. Phys. B, 22, 118505 (2013).
- S. Zhao *et al.*, IEEE Trans. MAG. (DOI:10:1109/TMAG 2018.2833800) (in press.).



Fig.1 XRD patterns of Mn(GaAl) films. The data for x=0 is after ref.⁴⁾



Fig.2 Temperature dependence of M_s and K_u for x= 5, 10, 20. The data for x= 0 is after ref.⁴⁾



Fig.3 The correlation between K_u and M_s together with the n values (inset). The data for x=0 is after ref.⁴⁾

FeCoへの VN 添加による正方晶構造の安定化と一軸磁気異方性

長谷川崇,新堀拓哉(院生),中村靖子(院生),武政友佑(院生),及川光彬(院生), 白井千尋(学部生), 関勇希(学部生), 中川颯太(学部生) (秋田大理工)

Stabilization of tetragonal FeCo structure and uniaxial magnetocrystalline anisotropy by VN addition T. Hasegawa, T. Niibori, Y. Nakamura, Y. Takemasa, M. Oikawa, C. Shirai, Y. Seki, S. Nakagawa

(Akita Univ.)

はじめに

永久磁石や磁気記録媒体の機能向上のためには、高い結晶磁気異方性定数(K_u)と高い飽和磁化(M_s)を兼 ね備えた材料の開発が必須である。筆者らの研究室ではこれまでに、格子ミスフィットが比較的大きな Rh と FeCo の組合せで、Rh バッファ上に FeCo 薄膜をエピタキシャル成長させることで、bcc FeCo 格子に対し て軸比 c/a≈1.2の正方晶歪みを導入し、10⁶ J/m³オーダーの高 K_uが得られることを報告している[1]。しかし この格子ミスフィットを利用する手法では、膜厚(t)が5nm 程度で格子緩和が生じて元のbcc FeCoに戻っ てしまう。そこで本研究では、第三元素添加による正方晶構造の安定化を目的として、VN 添加を行った。

実験方法

成膜には超高真空多元同時マグネトロンスパッタリング装置(到達真空度~10⁻⁷ Pa)を用いた。 膜構成は次の 通りである: MgO (100) substrate/ Rh (t = 20 nm)/ (Fe_{0.5}Co_{0.5})_{90-x/2}V_{10-x/2}N_x ($0 \le x \le 9.6 \text{ at.}$ %, t = 20 nm)/ SiO₂ (t = 5nm)。Rh と FeCoVN は基板加熱温度が各々300 、200 で成膜した。V 組成は、先の報告で K_uが最大値を示 した 10 at.%に固定した[2]。N 添加量は、スパッタガスである Ar と N2の混合比で制御した。本実験での N2

の分圧 (N₂/(Ar + N₂)) は 0~50%で変化させた。FeCoV の 組成分析には EPMA、N 組成の分析には XPS を用いた。格 子定数 a 及び c の算出には各々In-plane XRD、out-of-plane XRD を用いた。Kuの算出には VSM を用いた。

実験結果

Figure 1(a)は、FeCoVN 薄膜(t = 20 nm 固定)の軸比 c/a O N 組成 (x) 依存性である。x に依存して結晶構造は bcc から bct を経て fcc までほぼ連続的に変化している。軸比が 1.05 < c/a < 1.30 の bct 構造は、組成範囲が 1.0 < x < 5.5 at.%で得ら れている。また fcc 構造は、 $x \ge 5.5$ at.%で得られている。 Figure 1(b)は、 K_u の x 依存性である。ここには示していない が1.7 ≤ x ≤ 2.2 at.%で垂直磁化膜(磁化容易軸が膜面に対し て垂直方向)が得られ、この範囲で K_uは 10⁶ J/m³ オーダー の極大を示している。K_uの最大値は、x = 2.0 at.%において $1.24 \times 10^{6} \text{ J} \cdot \text{m}^{-3}$ ($M_{s} = 1.60 \text{ Wb} \cdot \text{m}^{-2}$)が得られた。ここには示 していないが、このようなbcc-bct-fcc変態は、膜厚が100 nm でも確認された。またアモルファス SiO2基板上に直接成膜 された膜厚 100 nm の試料でも、c/a≈1.14 の bct 構造が得ら れた。以上のことから、FeCoへの VN 添加は、将来の永久 磁石応用に向けたバルク化の指針になると考える。

[1] 石尾俊二, 長谷川崇 et al. まぐね, 12, 21 (2017). [2] K. Takahashi et al., J. Phys. D: Appl. Phys. 51, 065005 (2018).

この研究は科研費若手 A (JP15H05518)、NEDO 未踏チャレ ンジ 2050、ASRC、東北大学金属材料研究所との共同研究 (18K0062)の支援を受けた。



Figure 1. Dependences of (a) c/a ratio and (b) $K_{\rm u}$ of the MgO (100) substrate/ Rh (t = 20 nm)/ $(Fe_{0.5}Co_{0.5})_{90-x/2}V_{10-x/2}N_x \ (0 \le x \le 9.6 \text{ at.}\%, t =$ 20 nm)/ SiO₂ (t = 5 nm) continuous films on the N content x.

熱処理した FeCoAlC 薄膜の格子歪と一軸磁気異方性

武政友佑(院生), 熊谷洸平(院生), 長谷川崇 (秋田大理工)

Lattice distortion and uniaxial magnetocrystalline anisotropy of annealed FeCoAlC films

Y. Takemasa, K. Kumagai, T. Hasegawa

(Akita Univ.)

はじめに

FeCo 合金は、遷移金属合金中で最大の飽和磁化 (M_s) と、比較的高いキュリー温度を有する材料であるが、 立方晶であるため、一軸磁気異方性 (K_{ul}) をもたない軟磁性材料として知られる。そのような中、FeCo 格 子に正方晶歪 (c/a=1.25) を導入することで高い K_{ul} と M_s が実現することが、理論計算[1]と実験[2]の両面か ら報告された。また理論計算では、FeCo の B2 規則化による K_{ul} の増加が予測されている[1]。しかし規則化 のためには熱処理が必須であり、未だ実験的な格子歪と B2 規則化の両立は報告されていない。そのような中、 格子歪の導入の観点からは、C 添加の効果が実験的に調べられている[2]。また FeCoAl 状態図では、B2 規則 相が存在する。本研究では、B2 規則化と格子歪の両立を目的として、Al と C の同時添加を行った。

実験方法

試料作製には超高真空多元マグネトロンスパッタリング装置(到達真空度~10⁻⁷)を用いた。基板には MgO(100)単結晶基板とSTO(100)単結晶基板を用いて、FeCo, FeCoAl, FeCoAlC(膜厚 2~20 nm)を、基板温度 200 ℃で成膜した。その上に、SiO₂キャップ層(膜厚 5 nm)を室温で成膜した。試料の熱処理には、真空急 速加熱炉(RTA)を用い、昇温速度 100 ℃/s、熱処理温度 600 ℃、保持時間 1 h とした。結晶構造解析には X 線回折装置(XRD)、磁気特性評価には振動試料型磁力計(VSM)を用いた。

実験結果

Fig.1 に、FeCo および FeCoAl 膜の B2 規則度(S)の熱 処理温度(T)依存性を示す。全てのTで、AI無添加の 試料と比べて、AI 添加の試料の方が、S が高い傾向があ る。特にT=600 ℃のFeCoAl膜で、規則度は最高のS=0.97 となっている。Fig.2 は、MgO および STO 上に成膜した FeCoAl、FeCoAlC 膜の Kul の軸比 c/a 依存性である。Kul は M-H 曲線から算出した。黒色は熱処理前 (As pre.)、 赤色は熱処理後(RTA)を示しており、熱処理によって Kul が増加していることが分かる。これは Fig.1 で示すよ うに、熱処理によって S が増加したためと考えられる。 次いで熱処理後の試料(赤色)に注目すると、C 無添加 の試料よりも C 添加 (C added) の試料の軸比 c/a が僅か に高くなっている。このことから、C は熱処理後も格子 内に留まっていると考えられる。以上より、AIとCの同 時添加は、規則化とある程度の格子歪を両立できること が分かった。

[1] Y. Kota and A. Sakuma, *Appl. Phys. Express*, 5, 113002
(2012). [2] 石尾俊二,長谷川崇 et al.,まぐね,12,21-25
(2017). 謝辞:この研究は科研費若手A(JP15H05518)、
NEDO 未踏チャレンジ 2050、ASRC、東北大学金属材料研究所との共同研究(18K0062)の支援を受けた。



アモルファス基板上に成膜した FeCoX (X=VC, VN)の正方晶構造の安定性

及川光彬(院生)、坂本真人(院生)、新堀拓哉(院生)、長谷川崇 (秋田大理工) Stability of tetragonal FeCoX (X =VC, VN) deposited on amorphous substrates M. Oikawa, M. Sakamoto, T. Niibori, T. Hasegawa (Akita Univ.)

はじめに

FeCo 合金は、軸比が c/a = 1.25 付近の bct 構造を有する際に、NdFeB 永久磁石を上回る飽和磁化と一軸磁 気異方性を発現することが、理論計算[1]と実験[2]の両面から報告されている。本研究室ではこれまでに、bct 構造を実験的に実現するために、Rh バッファー層と FeCo 薄膜との間のエピタキシャル成長に伴う格子ミス マッチを利用する手法を用いてきたが、膜厚が数 nm 以上になると格子緩和が生じる問題があった[2]。そこ で本研究では、厚膜領域でも bct 構造を安定化することを目的として、FeCo 薄膜に対して第 3、4 元素として V, C, N の同時添加を行った。ここでは bct 構造の安定性を評価するために、エピタキシャル成長が生じない アモルファス SiO₂ 基板を用いた。

実験方法

試料の成膜には、超高真空多元同時マグネトロンスパッタリング装置を用いた。アモルファス SiO₂ 基板上 に、Fe₅₀Co₅₀、(Fe_{0.4}Co_{0.6})₉₀V₁₀、(Fe_{0.4}Co_{0.6})₉₀V₅C₅、(Fe_{0.5}Co_{0.5})₈₉V₉N₂を、基板温度 25~200℃、膜厚 40~100 nm で成膜した。結晶構造解析には Out-of-plane XRD を用いた。

実験結果

Fig.1 は、SiO₂ 基板上に成膜した各試料の Out-of-plane XRD パターンである。 $Fe_{50}Co_{50}$ 、 (Fe_{0.4}Co_{0.6})₉₀V₁₀、(Fe_{0.4}Co_{0.6})₉₀V₅C₅の3試料は、bcc FeCo(110)で同定される 45°付近にのみシングルピー クが観察される。(Fe0.4Co0.6)90V5C5では、bcc FeCo(110) ピーク位置が僅かに低角側にシフトしているため、a 軸と c 軸の両方がバルク値よりも僅かに伸びている ことが分かる。軸比は c/a = 1.00 と算出され、結晶構 造は立方晶の bcc である。一方で(Fe0.5Co0.5)89V9N2 で は、他の3試料とは異なり、bcc FeCo(110)ピークを挟 むようにツインピークが観察される。格子定数はa= 0.272 nm、c = 0.310 nm と算出された。これより軸比 は c/a = 1.14 となり、結晶構造は bct と考えられる。 以上より、VとNを同時添加された FeCo 薄膜では、 下地層との格子ミスフィットの補助がない無配向状 態でも、正方晶構造が安定に存在することがわかった。

参考文献

T. Burket et al., *Phys. Rev. Lett.*, **93**, 027203 (2003).
 石尾俊二,長谷川崇 et al.,まぐね, **12**, 21-25

(2017). この研究は科研費若手 A (JP15H05518)、



Fig.1 XRD patterns of $Fe_{50}Co_{50}$, $(Fe_{0.4}Co_{0.6})_{90}V_{10}$, $(Fe_{0.4}Co_{0.6})_{90}V_5C_5$, $(Fe_{0.5}Co_{0.5})_{89}V_9N_2$ films deposited on SiO₂ substrates.

NEDO 未踏チャレンジ 2050、ASRC、東北大学金属材料研究所との共同研究(18K0062)の支援を受けた。

めっき法により作製した Fe-Pt 厚膜磁石の磁気特性に 与える基板拡散の影響

大曲湧也,本多純也,古谷誠也,森村隆夫,柳井武志,中野正基,福永博俊(長崎大学) Effect of Cu-diffusion on hard magnetic properties of Fe-Pt thick-film magnets prepared by electroplating methods

Y. Omagari, J. Honda, S. Furutani, T. Morimura, T. Yanai, M. Nakano, H. Fukunaga (Nagasaki University)

はじめに

Fe-Pt 磁石は優れた磁気特性に加え,高い耐食性や生体適合性を有するため医療・歯科用デバイスへの応用 が期待される。本研究室ではこれまでに高い成膜速度および簡便な装置を特長とする電解めっき法を用いた Fe-Pt 系厚膜磁石に関して検討を行ってきた。その中で,Ta 基板上に成膜した保磁力 800 kA/m 程度の 20 µm 厚程度の厚膜磁石を実現した[1]。最近では,基板を Ta 板から Cu 板へ変更することで大幅に表面平滑性が改 善できることを示した[2]。Cu 基板への変更は表面平滑性の改善には有効であったものの,Ta 基板時と比較 すると低い保磁力を示す傾向が得られていた。本稿では,保磁力低減要因として熱処理時の Cu の拡散の影響 を想定し,各種実験を行ったのでその結果を報告する。

実験方法

Fe-Pt 膜の成膜には、ジニトロジアミン白金(10 g/L)、硫酸 鉄、アミド硫酸アンモニウム(25 g/L)、クエン酸(30 g/L)を用 い、硫酸鉄量によって膜組成を Fe₅₀Pt₅₀に調整した。陽極に は Pt メッシュを、陰極兼基板には Cu 板を用いた。浴温度 70°C、電流密度 1 A/cm²の条件にて定電流めっきを行った。 成膜後の Fe-Pt 膜を磁気的に硬化させるため 700°C, 60 min の真空中熱処理を施した。

実験結果

Fig.1 に保磁力の膜厚依存性を示す。Fig.1 より, 膜厚の増加に伴い保磁力が増加することが了解される。本実験では熱処理温度と熱処理時間を一定としたため, 膜厚が厚くなると Fe-Pt 相の体積に占める Cu が拡散した部分の体積割合が相対的に減少する。そのため, 膜厚が厚い膜ほど高保磁力を示したと考えられる。本点に関してより詳細な検討を行うため, 膜内の局所的な組成分析を行った。Fig.2 に熱処理後の Fe-Pt 膜の TEM 像を示す。Fig.2 より, 熱処理後の膜は数十 nm の微結晶から成る組織を持つことを確認できた。P 点の部分の組成分析を行ったところ, Fe が 43 at.%, Pt が 38 at.%, Cu が 19 at.%程度であり, 比較的多くの Cu が Fe-Pt 膜内へ拡散していることが確認された。Cu の拡散は硬磁気特性を劣化させるため, その抑制が優れた硬磁気特性の実現に重要であることがわかった。

参考文献

[1] T. Yanai, K. Furutani et al., J. Appl. Phys., 117 (2015) #17A744.

[2] T. Yanai, J. Honda et al., AIP Advances, 8 (2018) #056437.





Fig.2 Fe-Pt 膜の TEM 像

パルスレーザー蒸着法により作製した L1₀-FeNi 薄膜の 異常ネルンスト効果

齊藤真博¹, Himanshu Sharma², 小嗣真人¹, 水口将輝² (¹東京理科大, ²東北大金研)

Anomalous Nernst effect in L1₀-FeNi thin films fabricated by pulsed laser deposition Masahiro Saito¹, Himanshu Sharma², Masato Kotsugi¹, Masaki Mizuguchi² (¹Tokyo Univ. of Sci., ²IMR Tohoku Univ.)

<u>はじめに</u>

低環境負荷のエネルギー源が求められる現代社会において、ゼーベック効果やネルンスト効果といった熱流と電流の変換現象が注目を集めている. ネルンスト効果は、試料の磁化と垂直に熱勾配を印加したとき、両者に垂直な方向に熱起電力が生じる現象であり、近年はL10-FePt などの磁気異方性(*Ku*)の大きな規則合金材料を用いた異常ネルンスト効果の研究が精力的に行われている^[1,2]. その一方で、ユビキタス材料のみで構成される新しい規則合金磁性材料である L10-FeNi が、レアメタルフリーの高 *Ku*磁性材料として注目を集めている^[3]. 本研究では L10-FeNi の熱電変換素子への応用の可能性を調査するため、パルスレーザー蒸着法により L10-FeNi 薄膜を作製し、その異常ネルンスト効果を測定したので報告する.

実験方法

パルスレーザー蒸着法(PLD)を用いて Cu/Au バッファ層上に単原子交互積層により合計 50 ML の L1₀-FeNi 層を様々な基板温度で作製した.すべての試料は SPring-8 BL46XU に 設置されている放射光 XRD を用いて L1₀規則相を含んでいることを確認している.物理 特性測定装置(PPMS)を用いて試料に対して垂直方向に磁場を印加し,熱流を面内方向に 流す配置でゼーベック効果,異常ネルンスト効果を測定した.試料の両端間に印加する温 度差は 3 K とし,測定は室温で行った.試料作製時の基板温度を制御することで K_u の異 なる試料を複数作製し,異常ネルンスト効果と K_u の関係を調査した.

実験結果

基板温度 300℃で作製した L1₀-FeNi 薄膜について測定したネルンスト効果の測定結果を Fig. 1 に示す. 試料の磁化に対応するネルンスト電圧のヒステリシスが 観測された。当日は磁気異方性との関係や,異常ホール効果との比較結果などについても報告することにしている.

<u>参考文献</u>

- [1] M. Mizuguchi et. al., Appl. Phys. Express 5, 093002, (2012)
- [2] K. Hasegawa et. al., Appl. Phys. Lett. 106, 252405, (2015)
- [3] T. Kojima et. al., Jpn. J. Appl. Phys. 51, 010204, (2012)



Fig. 1 Nernst voltage of L1₀-FeNi film as a function of applied magnetic field.

スキルミオンバブルの電界駆動特性

劉小晰¹,馬闖¹,張渓超¹,山田侑生¹,森迫昭光¹,小野輝男² (¹信州大学,²京都大学) Electrical field induced controllable motion of skyrmion bubbles

Xiaoxi Liu¹, Chuang Ma¹, Xichao Zhang¹, Yusei Yamada¹, Akimitsu Morisako¹, Teruo Ono²

(¹Shinshu University, ²Kyoto University)

はじめに

磁気スキルミオンは磁性体の中の渦巻き状のスピン配向構造である。その小ささから超高密度記録媒体や 論理素子と期待されている。これらの応用を実現するために、より低消費電力な磁気スキルミオンの生成、 駆動方法が必要である。本研究では、ジュール熱を出さずに磁気スキルミオンの電界駆動手法を提案し、楔 先端を有する磁性細線を作製した。ここでは、電界印加時にスキルミオンバブルの生成及び駆動特性を報告 する。

実験方法

マスクレース露光装置、金属ステンシルマスク,スパッタリング装置を用いて Pt (0.5 nm)/CoNi (0.5 nm) /Pt (0.5 nm)/CoNi (0.5 nm)/Pt (1 nm)の多層構造で、楔先端有する細線をグラス基板上に作製した。細線の幅は 6 µ m から 100 µ m までとした。電極は Pt (5 nm)/Al (100 nm)/Ti(3 nm)用いて形成した。更に、細線の上に SiO₂ 絶縁層と ITO 電極層を作製した。Fig. 1 に試料構造の断面図を示す。

約300 nm のスポットに集光できるレーザーマイクロカー測定装置 (自作)を用いて、作製した磁性細線の各所の磁化曲線並びに電界印 加時の磁気特性を測定した。カー顕微鏡を用いて、細線の中の磁区構 造を観察した。

実験結果

Fig. 2(a) にレーザーマイクロカー測定装置を用いた試料の細線方向(以下 x 方向)に沿って、磁界を基板の垂直方向に印加時の磁化曲線を示す。 $x = 1 \ \mu m$ で楔エッジ付近は面内磁気異方性を示すが、 x の増加により垂直異方性が増加に伴う。 $x = 20 \ \mu m$ で完全な垂直磁気 異方性を示す。Fig. 2(b)に $x = 30 \ \mu m$ 位置でゲート電界を $V_G = 0 \ V$ から $V_G = 8 \ V$ の磁化曲線を示す。Fig. 3 に MOKE による各外部磁界 において電界を印加した時の磁区の様子を示す。(a)+2 Oe、(b)O Oe、(c)-2 Oe のそれぞれの外部磁界を印加しながら電界を印加した時に、全ての結果から磁壁の移動を確認できた。(a)、(b)の場合にスキルミオンバブルの生成を確認できた。また、(d)外部磁界のみの場合と電 界印加時の場合の磁壁移動の様子が異なることも確認した。





Fig. 1 Illustration of the sample

Fig.2(a) Kerr hysteresis at different thickness in the absence of the EF, (b) Kerr hysteresis x = 30 μm for different applied gate voltage V_G



Fig.3 MOKE microscopy images of EF-induced and magnetic field-induced motion of domain walls in the region with the thickness gradient.

電界効果磁気スキルミオントランジスタの作製とその特性

馬闖¹,荒井遼真¹,張渓超¹,山田侑生¹,森迫昭光¹,劉小晰¹,小野輝男² (¹信州大学、²京都大学)

Preparation and properties of field-effect magnetic skyrmion transistor

Chuang Ma¹, Ryoma Arai¹, Xichao Zhang¹, Yusei Yamada¹, Akimitsu Morisako¹, Xiaoxi Liu¹, Teruo Ono²,

(¹Shinshu Univrtsity, ²Kyoto University)

はじめに

磁気スキルミオンはトポロジカル準粒子とみなすスピンの特殊な渦巻き構造である。その小ささと不揮発 性、可制御性から次世代不揮発性論理回路への応用を考えられる。本研究では、チャネルに電界を印加可能 な3端子構造を作製し、電界アシスタント磁気スキルミオンの生成、電流駆動磁気スキルミオンの閾値電流 密度とそのゲート電圧の影響、電界効果磁気スキルミオントランジスタとしての動作を報告する。

実験方法

試料作製には、ステンシルリソグラフィー法、フォトリソグラフィー法と スパッタリング装置を用いて、Fig. 1 に示すような 3 端子構造を作製した。 チャネルは幅 4 μ m,長さ約 20 μ m の Pt (0.5 nm)/CoNi (0.4 nm) /Pt (0.5 nm)/CoNi (0.4m)/Pt (1 nm)の多層構造と構成された。

作製した素子はレーザーマイクロカー測定装置を用いて電界印加時の磁 気特性を測定した。更に、高分解能カー顕微鏡による電界電流印加時の磁区 構造と電界印加時の磁壁移動速度を測定した。



Fig.1 Structure of the device.

実験結果

and $V_G = 8 V_c$

Fig. 2 にチャネル部にゲート電圧 V_G=0 V と V_G=8.5 V の磁気特性を示す。V_G=0 V 時は優れた垂直磁気異 方性を示し、保磁力 H_cが約 30 Oe であった。しかし、V_G=8.5 V 印加すると磁気特性に大きな変化が見られ、 試料の垂直磁気異方性が減少し、保磁力も約 2 Oe まで減少した。Fig. 3 にチャネル部のカー顕微鏡によって 観察した磁区構造の一例を示す。電流駆動時に、ゲート電圧アシスタントによって磁気スキルミオンバブル が形成したと考えられる。Fig. 4 に V_G=0 V から V_G=8.5 V まで増加させた時に電流駆動磁気バブル移動の閾 値電流密度 J_cの結果を示す。V_G=0 V の時の Jc が約 5.9 x 10¹¹ (A/m²)であったが、V_Gの増加に伴い Jc が減少 し、V_G=8.5 V の時に J_cが約 5.1 x 10¹¹ (A/m²)まで減少した。ゲート電圧印加によってチャネル部の閾値電流 密度の制御を実現した。電流一定の時、電界による磁気スキルミオンの電流駆動の"ON"と"OFF"の確認もで きた。



as a function of gate voltage V_{G} .

磁気近接効果を用いた Pt/CoFe₂O₄ 超薄膜の磁気特性評価

[°]野土翔登¹、山本匠¹、柳瀬隆²、島田敏宏²、長浜太郎² (北大院総化¹、北大院工²)

Evaluation of magnetic property of Pt/CoFe₂O₄ ultra-thin film using magnetic proximity effect ^OS. Nodo¹, T. Yamamoto¹, T. Yanase², T. Shimada², T. Nagahama² (Hokkaido Univ., Graduate school of Chemical Sciences and Engineering¹ Hokkaido Univ., Graduate school of Engineering²)

はじめに

コバルトフェライト(CoFe₂O₄: CFO)はバルクで 793K と高い Curie 温度を持ち、優れた磁気特性から室 温動作可能なスピンフィルター素子等への応用が期待されている。しかしながら薄膜ではバルクと異なった 磁気特性を示し、特に厚さが数 nm 程度の超薄膜では逆位相境界(APBs)やカチオン欠陥等に起因する様々な 磁気特性が報告されている^{1),2)}。今回は磁気近接効果の存在が報告されている³Pt/CFO 二層膜系を用いて、 Pt の磁気輸送測定によって CFO 超薄膜の磁気特性の評価を行った。

実験方法

薄膜試料は反応性分子線エピタキシー(MBE)法によって作製した。膜構成は MgO(001)基板/MgO(20 nm)/Pt(2,3 nm)/CFO(2-6 nm)である。Pt/CFO 二層膜の結晶構造は反射高速電子回折(RHEED)によるその場観 察、X線回折(XRD)によって評価した。製膜後は微細加工によって Hall バー構造の素子を作製し、磁気輸送 測定(Hall 測定)を行った。

実験結果

Fig.1 に室温における Pt の Hall 測定の結果を示す。今回作製し たサンプルで最も CFO 膜厚が厚い 6 nm においても、バルクの保 磁力 3000 Oe より小さくなっていることがわかる。また膜厚が小 さくなるにつれ、保磁力が低下しており 3.4 nm 以下では保磁力 がほぼ 0 と、(超)常磁性的に振る舞っていることがわかった。こ れは超薄膜化による影響、あるいは既に報告のあるような欠陥密 度の増加^{1),2}によるものと考えられる。

次に最も CFO 膜厚が薄い 2 nm のサンプルについて Pt の Hall 測定の温度依存性を測定した。結果を Fig.2 に示す。保磁力に着 目すると温度の低下に伴って単調に減少する傾向が見られ、220 K 以上ではほぼ 0 となった。このことから、CFO 膜厚 2 nm では 磁気相転移温度が 220 K 付近にあると考えられる。また、この

220 K におけるデータを Brillouin 関数でフ ィッティングしたところ、J ≈ 1500とな ったことから、超常磁性体のように振る 舞っていると考えられる。

<u>参考文献</u>

- C. Jin *et al.*, J. Appl. Phys. **110**, 013917 (2011)
- Y. K. Wakabayashi et al., Phys. Rev. B 96, 104410 (2017)
- W. Amamou et al., Phys. Rev. Mater. 2, 011401 (2018)



Fig.1 Thickness-dependent Hall measurement in Pt (300 K)





Fe-Ga 膜における磁気特性の Ga 組成による変化

川辺 泰之、遠藤 恭、宮崎 孝道(東北大学)

Change in Magnetic Properties of Fe-Ga Films with Ga Composition Yasuyuki Kawabe, Yasushi Endo, Takamichi Miyazaki (Tohoku Univ.)

はじめに Fe-Ga 合金は磁気ひずみが大きく、飽和磁界が低く、機械特性や加工性が良いといった特長を有 しており¹⁾、アクチュエータなどの電磁気デバイスへの応用が期待されている。一方、Fe-Ga 膜についても、 高速・小型・エネルギー高効率な高周波デバイスへの応用に向けて注目されている²⁾。したがって、これらの デバイス応用の実現を目指して、Fe-Ga 合金や Fe-Ga 薄膜の構造、磁気特性および電気特性に関する検討が 行われている。なかでも、磁気特性に関しては、Fe-Ga 合金や Fe-Ga 単結晶薄膜の研究は多数報告されてい る。しかしながら、Fe-Ga 多結晶薄膜の研究は系統的な報告があまり行われていない。本研究では、Ga 組成 の異なる Fe-Ga 膜を作製し、それらの構造および磁気特性を検討した。得られた知見をもとにして Ga 組成に よる変化について議論する。

実験方法 Fe_{100-x}Ga_x (Fe-Ga) 膜の作製には DC マグネトロンスパッタリングを用いた。作製した膜の構成 は石英ガラス基板上に製膜した 50 nm 厚の Fe-Ga 膜である。また、Fe-Ga 膜の Ga 組成(x) は 18.5~33.4 at.% と幅広く変化させた。作製した膜の構造に関しては、透過型電子顕微鏡(TEM)と原子間力顕微鏡(AFM) を用いて評価した。膜の結晶構造は Ga 組成に関わらず bcc 多結晶であった。膜の表面粗さは Ga 組成に依存 せず Ra~0.9 nm および RMS~1.2 nm であり、また、膜の面内方向の結晶粒径はいずれの Ga 組成でも約 20 nm であった。一方、作製した膜の磁気特性に関しては、振動試料型磁力計(VSM)、光てこ法を用いた高感 度薄膜磁歪装置((株) 東栄科学産業製)およびベクトルネットワークアナライザと伝送線路を組み合わせた ブロードバンド FMR 測定法を用いて評価した。

結果および考察 図 1 は Fe-Ga 膜における飽和磁化(4πM_s) の Ga 組成(x) 依存性である。Ga 組成の増加とともに、 $4\pi M_s$ は 単調に減少した。この挙動は、bcc 構造を有する不規則相の Fe-Ga バルク合金の場合と類似している³⁾。飽和磁気ひずみ(λ_s)は Ga 組成に著しく依存した (図 2)。 すなわち、 Ga 組成が 21.7 at.% 以下では、Ga 組成の増加とともに Asは 33 ppm から 47 ppm まで 増加した。Ga 組成が 21.7 at.%から 27.2 at.%では、λ。は緩やかに 減少し、Ga 組成が 27.2 at.% で極小(44 ppm)となった。Ga 組成 が 27.2 at.%では、Ga 組成の増加とともに んはおよそ 54 ppm ま で増加した。λ_sの Ga 組成による変化は、Fe-Ga バルク合金の挙 動と類似しているものの、それらの値は従来の Fe-Ga 多結晶膜 の結果よりも Ga 組成が 20 at.%時近傍において低くなった⁴⁾。こ の原因は、作製した薄膜の結晶粒の結晶軸が磁気ひずみの値を 低くする [111] 方向に配向していることによるものと考えられ る。また、ダンピング定数(α)も図2に示すように Ga 組成に 依存した。すなわち、Ga 組成が 27.2 at.%以下では Ga 組成の増 加とともに α は緩やかに増加して最大(0.085)となり、Ga 組成 が 27.2 at.%以上では Ga 組成の増加とともに α は減少した。いず れの α の値も、Fe-Ga 単結晶膜の結果 ²⁾と比べると高くなった。 この原因は、物質固有のダンピングに加えて外的要因によるダ ンピングが重なっていることによるものと考えられる。





Fig.1. Dependence of $4\pi M_s$ on the Ga composition (*x*) for 50-nm thick Fe_{100-x}Ga_x films.



Fig. 2. Relationship between λ_s vs. *x* and α vs. *x* for 50-nm thick Fe_{100-x}Ga_x films.

参考文献 1) A. E. Clark et al., IEEE Trans. Magn., 36, 5, 3238 (2000)., 2) B. K. Kuanr et al., J. Appl. Phys., 115, 17C112 (2014)., 3) N. Kawamiya et al., J. Phys. Soc. Jpn., 33, 1318 (1972)., 4) A. Javed et al., J. Appl. Phys., 107, 09A944 (2010).

高温超伝導コイルとインダクタンス変調方式

を用いた磁気センサの開発

円福 敬二*, 吉田 悠次郎, 山下 重弥, 松尾 政明, 笹山 瑛由, 吉田 敬 九州大学システム情報科学研究院

Magnetometer Based on Inductance Modulation in Coils Made of High-T_c Superconductor Keiji Enpuku, Yujiro Yoshida, Shigeya Yamashita, Masaaki Matsuo, Teruyoshi Sasayama, Takashi Yoshida Kyushu Univ.

励起磁場中での動作が可能であり、かつ、1 Hz 程度の低周波磁界を高感度に計測する磁気センサはこれま で充分に開発されていない。このため、高温超伝導コイルとインダクタンス変調方式を用いた磁気センサを 開発している。[1] Fig. 1(a) にその等価回路を示す。検出コイル(L_p)と変調コイル(L_m)は高温超伝導体で作製 し、低抵抗($R_c = 27 \mu\Omega$)で接続することにより、閉ループを形成している。信号磁束 Φ_s が検出コイルに鎖交し た場合には、閉ループに電流 I_s が流れ磁束が変調コイルに伝達される。この閉ループの時定数は $\tau = (L_p + L_m)/R_c$ で与えられるため、 $L_p + L_m = 115 \mu$ H の場合には $\tau = 4.26 s$ となり1Hz 程度の低周波磁束を伝達できる。また、変 調コイルを励起磁界の外に設置すれば励起磁界中での動作が可能となる。

変調コイルに伝達された磁束を電気信号に変換するため、コイルのインダクタンス L_m を時間的に変調する 方式を用いた。この方式の原理は直交型基本波フラックスゲートと同様である。すなわち、変調コイル内に 磁性ワイアを挿入し、磁性ワイアに変調電流 $I_m=I_{DC} + I_{AC}\sin(2\pi f_m t)$ を流すことにより、磁性ワイアの透磁率 を時間的に変化させる。この結果、変調コイルのインダクタンスが $L_m(t)$ と時間的に変調され、センサの端子 (P-Q)には $V_s = I_s \times (dL_m/dt)$ の出力電圧が得られる。

検出コイルと変調コイルは高温超伝導テープ線材 (SuperPower 社 SF2050)を用いて作製した。検出コ イルのパラメータは平均直径 D_p =25 mm、巻数 N_p =50、 L_p =65 μ H である。また、変調コイルのパラメータは D_m =20 mm、 N_m =60、 L_m =50 μ H である。コイルは液体 窒素を用いて冷却して超伝導状態とした。磁性ワイア は幅 500 μ m、厚さ 35 μ m の物(愛知製鋼: 120FC20) を用いた。磁性ワイアには I_{DC} =70 mA, I_{AC} =35 mA, f_m =400 kHz の変調電流 I_m を流してインダクタンス L_m を時間的に変調した。この時の磁気センサの電圧感度 (電圧/磁界変換係数)は K_{VB} =885 V/T となった。

Fig. 1(b)にセンサの磁界雑音スペクトルを示す。センサの電圧雑音スペクトル V_{S_V} の測定値と電圧感度 K_{VB} を用いて計算した結果($\sqrt{S_B} = \sqrt{S_V/K_{VB}}$)であり、磁 界雑音 $\sqrt{S_B}$ は20Hz以上の周波数帯ではほぼ白色雑音 となり、1.3pT/ \sqrt{Hz} となった。20Hz以下の低周波数 帯では磁界雑音は周波数の低下とともに増加する1/f 雑音となり、1Hzでは5.6pT/ \sqrt{Hz} となった。

参考文献

1. K. Enpuku et al, Appl. Phys. Express 10, 113101 (2017).



Fig.1. (a) Equivalent circuit of the magnetometer.(b) Noise spectrum of the magnetometer

Investigation of serial magnetic tunnel junction sensors for high

signal-to-noise ratio in eddy current testing

Zhenhu Jin, Muhamad Arif Ihsan, Mikihiko Oogane, Kosuke Fujiwara and Yasuo Ando Department of Applied Physics, Tohoku University, Sendai, Miyagi, Japan

In recent years, magnetic tunnel junctions (MTJs) based on MgO barrier have been attracted considerable interest due to high tunnel magneto-resistance (TMR). An earlier study reported that TMR sensor based on MTJ can detect small field change, which indicated these devices can be used in eddy current nondestructive testing (ECT) field [1]. However, it is still required to develop a sensor for detection of different defects. Considering that adding serial MTJ number in the sensor can improve sensitivity [2], an optimized serial TMR sensor can provide a high signal-to-noise ratio (SNR) during ECT. Therefore, for achieving high SNR, we fabricated sensor with 4, 16, 28, and 40 serial MTJs in 1, 4, 7, and 10 rows, respectively. Furthermore, we investigated their detectivity and analyzed their output signals to determine the maximum SNR for detection of different defects in ECT.

The magnetic film structure of MTJ was SiO₂-sub./Ta(5)/Ru(10)/Ta(5)/Ni₈₀Fe₂₀(70)/Ru(0.9)/Co₄₀Fe₄₀B₂₀(3) /MgO(2)/Co₄₀Fe₄₀B₂₀(3)/Ru(0.9)/Co₇₅Fe₂₅(5)/Ir₂₂Mn₇₈(10)/Ta(8) (in nm). These series of 4, 16, 28, and 40 MTJs with $10 \times 10 \mu m^2$ top pinned layers and $15 \times 60 \mu m^2$ bottom free layers were fabricated with photolithography and ion milling processes. After fabrication, for achieving excellent R-H curve, the fabricated MTJs were annealed twice in a vacuum

chamber using different directions and temperatures [3]. Furthermore, automatic ECT system was composed of an excitation unit with a function generator which delivers excited signal and sensing probe with the prepared MTJ device. The surface and back-side pits with various regimes in aluminum and copper specimens were inspected by using ECT probe with TMR sensors.

Figure 1 showed the dependence of detectivity of the sensor on serial MTJ number *N*. It is indicated that the TMR sensor with a large MTJ number can offer small detectivity. However, since the inhomogeneous secondary field induced from eddy currents in the specimen, the disturbance of field strongly affected by the distance between individual MTJ and test specimen during defect detection. As shown in Figure 2, the ECT result when different sensors were used to detect a surface crack, the noise amplitude increases with the number of serial MTJs, which indicates the dependence of noise on their number. On the other hand, due to the distribution of secondary field, the crack signal reached a saturation for N =28, and highest SNR can be obtained. Although the inner defects of the copper specimen were inspected, the probe with TMR sensor (N = 28) offered considerable high SNR. This study suggested that the optimized TMR sensors can play an important role in achieving high SNRs during ECT.

Reference

- 1) J. Lenz and A. S. Edelstein, IEEE Sens. J. 6, 631 (2006).
- R. Guerrero, M. Pannetier-Lecoeur, C. Fermon, S. Cardoso, R. Ferreira, and P. P. Freitas, J. Appl. Phys. 105, 113922 (2009).
- K. Fujiwara, M. Oogane, F. Kou, D. Watanabe, H. Naganuma, and Y. Ando, Jpn. J. Appl. Phys. 50, 013001 (2011).



Fig.1 Detectivity for different sensors at different frequencies. Inset: dependence of detectivities on serial MTJ numbser N at excitation freuqueyc of 100 Hz.



Fig.2 The relationship between amplitude of the crack-free signal and noise during surface inspection with different sensors.

CPW 伝送線路型磁気センサモジュール

早坂淳一, 菅原和幸, 植竹宏明, 薮上 信*, 荒井賢一 (電磁材料研究所, *東北大学) CPW transmission line type magnetic sensor module J. Hayasaka, K. Sugawara, H. Uetake, S. Yabukami^{**}, K. I. Arai, (Research Institute for Electromagnetic Materials, **Tohoku University)

1. はじめに

リチウムイオン 2 次電池等の高品位な品質検査を 目的として, 高感度, 且つ低ノイズな CPW (Coplanar Waveguide) 伝送線路型磁気センサモジュールを開発 した.

2. 実験方法

磁界センサ素子には、心磁図等の生体情報検出素 子として期待されている CPW 伝送線路型磁気セン サ¹⁾を使用した.線路長,信号線幅,信号線-グラン ド間隔は、各々2,000 μ m、300 μ m、50 μ m である. 材質は、Cr/Cu/Cr/Au (厚み 0.1/3.0/0.1/0.3 μ m) であ る.下層部には、感磁膜としての CoNbZr アモルフ アス膜(厚さ 5 μ m)を配した.CoNbZr 膜と CPW 線路の絶縁膜には、SrTiO3 (STO, 3 μ m)を用いた. 素子単体の共振周波数は、1,600MHz であったが、 実装時の寄生容量により 500 MHz 帯に低下した.

信号処理基板としては、4層 FR-4多層 PCB板(外 形寸法 150mm×100mm)上に、RF 増幅回路、周波 数変換回路、PSD 回路、74秒回路等を搭載した信号 処理ボード(周波数帯 500±50MHz)を製作した. キャリアの発生源には、Agilent N9310A を使用した.

最後に、ヘルムホルツコイルを利用し、製作した センサモジュールの基本性能を評価した.また、磁 気感度が最大になるように、同コイルにより 0.5 mT の直流磁気バイアスを付与した.

3. 実験結果

外的要因によるものである.

Fig.1は,製作した CPW 伝送線路型磁気センサモ ジュールの磁気感度特性(交流励磁 100Hz,キャリ ア周波数 500 MHz)である.磁界強度 100 nT 付近 の線形領域において,磁気感度は,0.3 mV/nT (Ich_0deg.)であった.また,磁気シールドが施さ れていない一般実験室における検出限界は,約5 nT であった.ノイズは,主として,都市雑音のような

Fig. 2 は、出力信号、および位相の高周波キャリ

ア周波数依存性である.キャリア周波数 500MHz 付 近で最大値を示し、出力値は 0.20 V (Ich)、0.38 V (Q ch)(磁場強度 1 μ T)であった.また、位相は、 I ch、Q ch ともに約-20°であった.素子と信号処理 ボード間の接続ケーブルによる影響と考えられる.

今後は、センサ素子、および信号処理回路の最適 化による更なる高感度化、および外乱の影響低減と 多チャンネル化が課題として挙げられる.

<u>参考文献</u>

1) 薮上,他 第41回日本磁気学会学術講演概要 集 21aD-2 (2017)







Fig. 2 Carrier freqency dependence of V and phase.

Faraday効果利用型光プローブ電流センサ用磁気ヨーク形状の検討

山崎 健太, 藤城 佑太, 塩田 健太, 岩見 晃希, 曽根原 誠, 佐藤 敏郎 (信州大学)

Study on shape of magnetic-yoke for Faraday-effect optical prove current sensor K. Yamazaki, Y. Fujishiro, K. Shiota, K, Iwami, M. Sonehara, T. Sato

(Shinshu University)

はじめに

電流センサは、パワーエレクトロニクスにおいて「制御」「監視」「管理」の役割を果たしており、高性能 化が求められている.筆者らは、既に小型で電磁ノイズに強く高周波数帯域でも測定可能な電流センサの実 現を目指し, 強磁性薄膜の Faraday 効果を利用した光プローブ電流センサの研究・開発を進めている¹⁾. また 本電流センサの感度増大のためセンサヘッドに磁性微粒子複合材料(透磁率u;=20)²⁾を用いた磁気ヨークを 提案した.本稿では、その磁気ヨークの形状を検討し、結果について述べる.

解析方法

Fig.1に示すように、磁気ヨークに光ファイバを通過させるための溝を作り、磁性膜をサンドイッチするよ うに、二つの磁気ヨークを対向して配置し、磁性膜に印加される磁界をエンハンスする構成とした、電磁界 解析ソフトJMAGを用いて磁気ヨークの下底aおよび磁気ヨーク間のギャップ長Lgを変化させた場合での磁 性膜に印加される磁界 H を解析した.なお,解析では磁気ヨークに光の進行方向と同方向に 8.0 kA/m の磁界 を印加させた.

解析結果

Fig.2に磁気ヨークの下底 a を変化させた場合の磁性膜に印加される磁界 Hの関係を示す.同図より, a が 長くなるに伴い磁気ヨークによりエンハンスされる H は約6倍まで高められるが、やがて飽和する傾向が示 された.これは、aを長くすることでヨークの面積が増加し、磁極も増加するため、Hが大きくなるがヨー クによって集磁できる磁束には上限があるためΗが飽和すると考えられる.したがって、磁気ヨークを台形 形状にすることにより、磁性膜に加わる H を高められるが、a > 5.0 [mm]は大きな効果が無いことが分かり、 また小型化の観点からもa = 5.0 [mm]が妥当である.

Fig. 3 (a)に台形磁気ヨークにおけるギャップ長 Lg対する磁性膜に印加される磁界 Hの関係を示す. 同図よ り, Lg ≈ 0.225 [mm]で H が極大値を取ることが分かった. Fig. 3 (b)に磁性膜を装荷する磁気ヨーク間付近の 磁束密度ベクトルをプロットしたものを示すが,センサ感度の増大に寄与するのは同図で赤丸の箇所で,L_e ≃ 0.225 [mm]の場合に磁束密度が最も高く、本解析条件では最適であることが分かった.

発表当日は,詳細な解析結果と,試作したヨークの測定結果も述べる.



Model of sensor head

with yoke.







(a) H vs. L_g (b) Magnetic flux density Fig.3 Analysis results of trapezoidal shape yoke.

参考文献

Fig.1

- M. Miyamoto, et al.: INTERMAG 2018, CW-14 (2018). 1)
- N. Yabu, et al.: The Papers of Tech. Meeting on "Magn.", IEEJ, MAG-17-156 (2017). 2)

FeCo-MgF ナノグラニュラー薄膜を用いた光磁界センサ

大場裕行、小林伸聖、池田賢司、荒井賢一 (電磁研) Optical magnetic field sensors using FeCo-MgF nanogranular films H.Ohba,N.Kobayashi,K.Ikeda,K.I.Arai (Research Institute for Electromagnetic Materials,DENJIKEN)

<u>はじめに</u>

ナノメートルサイズの強磁性金属粒子が、フッ化物などの絶縁体マトリックスに分散した構造を持つナノ グラニュラー薄膜は、光透過性を有すると共に、大きな磁気光学効果(ファラデー効果)を示す¹⁾。またこ れらナノグラニュラー薄膜は、超常磁性を有するので、ヒステリシスを持たない磁化特性を示す。本稿では、

上述の特徴を有するナノグラニュラー薄膜を、光磁界 センサに応用する際に最適な FeCo 組成を求めるため、 光吸収係数当たりのベルデ定数を性能指数として評価 し、ナノグラニュラー薄膜の FeCo 組成との関係につい て調べた結果を報告する。

<u>実験方法</u>

ナノグラニュラー薄膜は、厚さ 0.5mm のガラス基板 上に、RF スパッタ装置を用いたタンデム法で作製した。 Fig.1 に、光磁界センサの構成を示す。光源には波長 1.55 µmの LD (レーザダイオード)を用いた。光源からの レーザ光は、偏光子によって偏光方向を規定し、ビー ムスプリッタを経由してナノグラニュラー薄膜に入射 する、その後全反射ミラーにて反射され、偏光ビーム スプリッタにて互いに直交する 2 つの偏光成分に分離 され、それぞれ PD (フォトダイオード)で電気信号に 変換される。ファラデー回転角の測定は、試料をヘル ムホルツコイル中に置き、直流磁界を加えて行った。

実験結果

Fig.2 は、FeCo 組成が 20mol%試料のファラデー回転 角の外部磁界依存性を示す。外部磁界に対して直線的 なファラデー回転角の変化が得られている。ベルデ定 数は 1.6×10^{-4} deg/ μ mOe、光吸収係数 β は 0.53μ m⁻¹ で ある。

Fig.3 に FeCo 組成が 14mol%から 54mol%までの試料 の性能指数を示す。性能指数は FeCo 組成が 20mol%で 最大値 3.1×10⁻⁴deg/Oe が得られた。FeCo 組成が 20mol% 以下の試料では、超常磁性を有するので、ファラデー 回転角の外部磁界依存性にヒステリシスは見られない。

<u>参考文献</u>

 N.Kobayashi,K.Ikeda,BoGu,S.Takahashi,H.Masumoto, S.Maekawa,Scientific Reports,8,4978(2018)



Fig.1 Shematic of the optical magnetic field sensors



Fig.2 Measured Faraday rotation angle of the $Fe_{11}Co_9$ Mg₂₉F₅₁ nanogranular film under the static magnetic field perpendicular to the film surface



Fig3.Figure of merit vs. FeCo concentration of the FeCo-MgF nanogranular films

基本波型FGへの適用性から見たアモルファス磁性リボンの評価

笹田一郎

(笹田磁気計測研究所)

Evaluation method of amorphous magnetic ribbons for the FM-OFG magnetometer Ichiro Sasada

(Sasada Magnetic Instruments Laboratory)

はじめに 基本波型直交フラックスゲート(FM-OFG)は, 筆者が2001年の本学会学術講演会で初めて報告したが⁽¹⁾, その後大きく進歩し, 36チャンネルで心磁界計測ができるようになった⁽²⁾. ところで, センサのコアに新たな磁性体を用いようとする場合, FM-OFGに適しているかどうか事前に評価できる方法が望ましい. 本稿ではセンサヘッドを試作しそのオフセット対直流バイアス電流の関係から適否のみならず動作条件の決定も可能となる1つの方法を示す. また, 新たに探索したアモルファス磁性薄帯によって製作したセンサの雑音特性を報告する.

方法 細長いアモルファス磁性リボンを1本,あるいは中央で折り曲げてVの字型にしたものをコアとし,数 百ターン~1千ターンの中空ソレノイドコイル型ピックアップコイルを用いてセンサヘッドを試作する.この センサヘッドを磁気シールド内に置き,コアには交流電流*iac*に直流バイアス電流*idc*を重畳した励磁電流を通 電する.このとき発生する誘起電圧の大きさから,コア内に存在する磁気異性のリボン幅方向からの傾きの 程度を知ることができる.また,*idc*に対する誘起電圧振幅の変化から,磁気異方性の大きさに関する情報を 得ることができる.

結果 広幅Metglas2714Aリボンから幅1 mmにスリットしたもの(熱処理無し)と、これと異なるアモルファ スリボンの幅1 mmスリット材に熱処理を施したサンプルについて計測した例をそれぞれFig. 1 (a) および(b) に示す. Fig. 1(a)では*i*_{ac}=19.4 mAとし、同(b)では同17.7 mAとしている. 周波数は前者で20 kHz、後者で100 kHzである. 両者間で条件が同じでないので、電圧の比較はあまり意味が無いが形に着目する. 中央左右2つ の縦の破線は*i*_{ac}=|*i*_{dc}|の点を示す. Fig. 1(a)の±0.1 Aの内側では跳躍的磁化変化のためにノコギリのようになっ ており、実際この範囲の*i*_{dc}ではセンサの雑音が大きい. 一方(b)では跳躍的磁化回転は*i*_{dc}の小さい範囲でのみ 生じている. また、オフセットは速やかに小さくなることから磁気異方性は小さい.



Fig. 1 Offset vs. dc bias current. (a) as slit Metglass 2714A, (b) annealed Co-based amorphous sample.

紙面の都合でセンサの雑音スペクトル密度の結果の図は省くが, Fig. 1(a)のサンプルでは*i*_d≈0.2 Aとすることで、1 Hzで5 pT/√Hz 以下、10 Hzで2 pT/√Hz 以下となる結果が得られている⁽³⁾. (b)については、*i*_d=35 mAで、1 Hzで5 pT/√Hz, 10 Hzで2 pT/√Hzと大幅に小さな励磁電流で優れた結果を得た.

参考文献

- 1) 笹田一郎, 基本波型直交フラックスゲート, 日本応用磁気学会学術講演会, 26pD-3, 2001
- 2) 加呂 光他, 36チャンネルフラックスゲートセンサを用いた心磁界計測, 電気学会論文誌 E Vol. 136 No. 6 pp. 224-228 (2016)
- 3) Ichiro Sasada, Low noise fundamental mode orthogonal fluxgate (FM-OFG) magnetometer built with an amorphous ribbon core, IEEE Trans Magn, 揭載予定, DOI 10.1109/TMAG.2018.2840500

アモルファス磁性合金薄帯用磁気ひずみ計測法の開発

遠藤 恭¹, 島田 寛², 川邉 泰之¹, 方 冰川¹, 森 修², 佐藤 茂行², 内海 良一² (¹ 東北大、²(株)東栄科学産業)

Development of New Measurement Method for Magnetostriction of Magnetic Amorphous Alloy Ribbon

Y. Endo¹, Y. Shimada², Y. Kawabe¹, B. Fang¹, O. Mori², S. Sato², R. Utsumi²

(¹ Tohoku Univ., ² Toei Scientific Industrial Co.,Ltd)

はじめに

近年,アモルファス磁性合金薄帯は低損失電力用変圧器の実用化により環境負荷軽減型デバイスを構成する 材料の一つとして注目されている.この薄帯は低保磁力,高透磁率,低高周波損失,低磁気ひずみなどの優 れた磁気特性を有している.薄帯の磁気ひずみ評価に関しては,従来の容量変化法,ひずみゲージ等の計測 法では、薄帯に電磁気的な変化を印加して機械的な変化を引き起こして,物理的な変化を検出することによ り磁気ひずみ定数を算出する¹⁾.これらの計測法では,薄帯を何枚も重ねた試料の作製や試料サイズが大き いといった欠点がある.したがって,従来の計測法とは異なるより簡便な磁気ひずみ計測法の開発が急務と なっている.本研究では,アモルファス磁性合金薄帯として市販の薄帯を選択して,その薄帯に異なる応力 を付与してインダクタンスの磁界変化を検出し,応力の違いによる磁界変化量から薄帯の磁気ひずみを評価 できる計測法を開発した.

実験方法

磁気ひずみ計測に用いたアモルファス磁性合金薄帯は Fe 系アモルファス薄帯である.薄帯の新規磁気ひずみ 計測は次の通りである.信号検出にはコイルを用いた.薄帯の一端を固定して、その中央部分をコイル内部 に挿入する.もう一方の端部に荷重(応力)を付与すると、薄帯内部の異方性が変化する.したがって、異 なる応力($\sigma_{//1}, \sigma_{//2}$)を薄帯に付与した状態で薄帯の幅方向に直流磁界(H_{dc})を印加する.このときの応力負 荷された薄帯が挿入されたコイルのインダクタンス(L)を検出し、応力の違いによるインダクタンスの逆数 ($1/(L-L_0)$)と H_{dc} の関係を得る(なお、 L_0 は空心コイルのインダクタンスである).得られた結果をもとに

して、同じの 1/(L-L₀)値に対する直流磁界の応力の違いによる変化量(ΔH=H_{dc1}-H_{dc2})を求めて、

$$\Delta H = \frac{3\lambda_s}{M_s} \left(\sigma_{\parallel 1} - \sigma_{\parallel 2} \right) \tag{1}$$

にあてはめて薄帯の磁気ひずみ(*As*)を評価する.ここで,*M*。は薄帯の飽和磁化である.

結果および考察

図1は、異なる応力を付与したときのFe 系アモルファス薄帯における $1/(L-L_0)$ と H_{dc} の関係である.応力の 大きさに関係なく、1000 Oe 以上の H_{dc} では、いずれの $1/(L-L_0)$ も直線的に増加している.また、応力の増加 にともない、同じ $1/(L-L_0)$ 値に対して直流磁界が増加している.したがって、この直流磁界の変化分(増加 分)とそのときの応力の変化量を、(1)式にあてはめて Fe 系アモルファス薄帯の λ s を算出した.300 g 以下の

荷重領域では, As の値は 27~32 ppm となった. これらの 値はほぼ薄帯の公称値と一致している. 一方, 300 g 以上 の応力領域では, As の値はおよそ 63 ppm となり, 公称値 に比べて大きくなった.この原因は,応力を強くした場合, 材料の機械特性に何らかの変化が生じる, あるいは, 測定 システムに残る誤差の可能性を考えている. 当日, 今回開 発した測定法の原理等の詳細を報告する.

謝辞 本研究の一部は,東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センターの支援のものと行われた.

<u>参考文献</u>

1) 荒井賢一, 津屋昇, 日本応用磁気学会 2,5 (1978).



Fig.1 Relationship between inverse inductance and DC magnetic field for an Fe-system amorphous ribbon.

回転磁場を用いたバルクハウゼンノイズ計測による応力評価

小野 拓也、中島 悠也 (富士電機)

Stress evaluation by Barkhausen noise measurement under rotating magnetic field Takuya Ono and Yuya Nakashima

(Fuji Electric Co., Ltd.)

<u>はじめに</u>

近年、インフラ関連製品の劣化診断技術のニーズが高まっている。なかでも、鋼材への表面処理などで発生する残留応力は、応力腐食割れ(SCC)などの損傷の要因となるので、製作時・出荷前に検査する必要がある。磁気バルクハウゼンノイズ(MBN)による応力評価法は、非破壊かつ短時間の残留応力測定が可能な方法として開発が進められ、一部、製品適用も行われている。しかし、MBN に影響する因子としては、応力のほかに、結晶粒径・析出物等があり、応力を精度よく評価する手法の開発が求められる。本研究では、回転磁場下での MBN 計測を行い、MBN 強度の磁場角度依存性に基づいて応力評価精度の向上を図った。

<u>方法</u>

マルテンサイト系 13Cr ステンレス鋼に、一軸引張試験機を用いて引張応力を印加した。MBN 測定は、励磁コイルを巻いた軟磁性ヨークとセンサコイルを評価鋼材に接近させ、評価鋼材表面に長手方向の磁場を印加しながら、センサコイルによって評価鋼材からの漏れ磁束を計測して行った。鋼材表面内で磁場方向を回転させ、MBN の磁場角度依存性を取得した。MBN は出力電圧の二乗平均平方根(RMS)として算出し、さらに励磁電流依存性の移動平均処理による平滑化を経て、MBN プロファイルを得た。MBN 積分強度は、MBN プロファイルからバックグラウンドを差し引いたうえで算出した。

<u>結果</u>

Fig. 1 に引張応力(413 MPa)の下で測定した MBN プロファイルの磁場角度依存性を示す。磁場角度増加に伴い MBN 強度の単調減少が見られ、両者の強い相関性を示唆する。一軸の磁気異方性を持つ磁性材料では、 MBN 強度は $\alpha \cos^2 \theta_m + \beta$ のような角度依存性を有する(θ_m : 磁化容易軸を基準とする磁場角度)¹⁾。逆磁歪エネルギーは-(3/2) $\lambda \sigma (\cos^2 \varphi - 1/3)$ で表され(φ : 応力方向を表す角度)、磁気異方性エネルギーと同形式の角度依存性 を有するので、一軸応力下の MBN の角度依存性は、一軸磁気異方性下のそれと同様と推定される。Fig. 2 に MBN 積分強度(I_{MBN})の $\cos^2 \theta$ 依存性を示す(θ : 応力方向を基準とする磁場角度)。 I_{MBN} は $\cos^2 \theta$ に対し線形変化 しており、上記の推察が正しいことを示唆する。さらに、Fig. 3 に示すように、応力と、関係式 $I_{MBN} = \alpha \cos^2 \theta + \beta$ から求めた傾き(α)に強い相関が見られ、MBN の磁場角度依存性から応力が評価できることが示された。

参考文献 1) T. W. Krause, L. Clapham, and D. L. Atherton, J. Appl. Phys. 75, 7983 (1994).



Fig. 1 MBN profiles under the various magnetic field angles and tensile stress of 413 MPa.





Fig. 2 $\cos^2\theta$ dependences of the integrated MBN, *I*_{MBN}, under the various stresses.

Fig. 3 stress dependence of the slopes, α , of the *I*_{MBN}-cos² θ relations.

マイケルソン光干渉法による磁歪測定装置の作製

佐藤睦規、吉田悠人、鈴木貴彦、高橋豊、小池邦博、稲葉信幸 (山形大学大学院理工学研究科)

Magnetostriction measurement system of magnetic thin films with Michelson interference M.Sato, Y.Yoshida, T.Suzuki, Y.Takahashi, K.Koike, N.Inaba (Yamagata Univ. Graduate School of Science and Engineering)

はじめに Ni-Fe 系合金では、ダンピング定数 α と磁歪との間に相関があることが報告¹⁾されており、薄膜での磁歪を知ることは HDD や MRAM 応用の観点から重要である。また、磁歪により磁気異方性が誘起される ことから、ナノコンポジット磁性材料の特性向上においても薄膜での磁歪を知ることは有用である。MgO 単 結晶基板上に成長させた磁性単結晶薄膜の磁歪を測定しようとすると、MgO 基板のヤング率がガラス基板に 比べ3倍以上大きく、磁歪による試料のたわみ量が 100 nm 程度で、従来の光てこ法では測定が困難である。 このため、本研究では光学系を用いた高分解能な変位測定法として知られているマイケルソン干渉計を応用し た磁歪測定装置を製作したので報告する。

<u>装置構成</u>装置の概略図を Fig.1 に、作製した装置の写真を Fig2.に示す。光源から出た光は、ハーフミラーにより固定ミラー側と可動ミラーの2光路に分けられ、両者からの反射光を再度合成することで検出器に干渉縞が結像される。図のように片持ち固定した短冊状の試料に磁界を印加すると、磁歪により試料がたわみ、反射光の光路長が変化する。このとき、反射光の位相が変化し、干渉縞が移動する。例えば、たわみ量が光源の光の波長/2 に相当する場合は干渉縞の位相が1周期変化することとなる。本測定装置では、光源に He-Ne レーザー(波長 *λ* = 633 nm)を用いた。また、デジタルカメラの撮像素子(CCD)上に直接結像し、干渉縞を検出している。得られた干渉縞画像は画像解析ソフト ImageJ²で解析を行い、干渉縞の移動量からたわみ量を算出した。

<u>実験結果</u> 0.2 mm 厚の MgO(100)単結晶基板上にスパッタリング法を用いてエピタキシャル成長させた膜厚 300 nm の Fe(001)単結晶薄膜試料を準備した。短冊状試料の長辺方向が Fe[110]であり、この方向に磁界を印加 して試料のたわみ量の磁界依存性の測定を行った。Fig.3 にたわみ量の磁界依存性を示す。 $H = \pm 2$ kOe 以上で -定(平均値 d = 54 nm)となり、式(1)を用いて Fe[110]方向の磁歪定数を算出 ³⁾すると、 $\lambda = -21 \times 10^{-6}$ となった。 これは bulk の磁歪定数と比べ、2 倍ほど大きい値である。

$$\lambda = \frac{t_s^2}{3t_f l^2} \frac{E_s(1+\nu_f)}{E_f(1-\nu_s)} d$$
 (1)

ここで、 t_s は基板厚、 E_s は基板のヤング率、 v_s は基板のポアソン比、 t_f は膜厚、 E_f は薄膜のヤング率、 v_f は薄膜のポアソン比、lはレーザースポット位置、dはたわみ量である。

1) Y.Endo et al. J.Appl. Phys., 109, pp.07D336 (2011).

2) W.S.Rasband, ImageJ, U.S. National Institutes of Health, Bethesda, Maryland, USA, http://rsb.info.nih.gov/ij/, 1997 -2012.

3) A.C.Tam et al. IEEE Trans. Magn., 25 NO.3 (1989).

謝辞 本研究の一部は科研費 B(No.16H0448)の補助を受けています。



Fig.1 Schematic picture of measurement system with Michelson interferometer



Fig.2 Picture of the magnetostriction measurement system



Applied field H(kOe)Fig.3 Variation of deflection for the Fe single crystal in magnetic field

巻線応力が環状試料の直流磁気特性に及ぼす影響

馬場康壽 (神奈川県立産業技術総合研究所) Effect of Winding Stress on DC Magnetic Properties of Ring Sample Y.Baba (Kanagawa Institute of Industrial Science and Technology)

<u>はじめに</u>

磁性材料は発電機や電磁弁の鉄心など磁気回路の構成に広く使用されており、高性能化するためには用途 に適した材料を選択する必要がある。磁性材料の特性を測定する方法の一つとして、環状試料を用いた積分 方式直流 B-H 測定方法があるが、この方法は試料に一次コイルと二次コイルを巻きつけるので、試料に締め 付ける力が加わる。そのため、多くの磁性材料には磁歪現象があることから、手巻き程度の応力でも逆磁歪 効果によって、測定した磁化特性が本来の磁化特性とは異なることが懸念される。そこで、本研究では積分 方式直流 B-H 測定方法において、手巻き程度の強さの巻線応力が磁化特性に与える影響について調べた。

実験方法

環状試料には正磁歪の大きいパーメンジュール(FeCoV)を用いて、樹脂ケースに入れてから巻線をした 試料に応力が加わらない場合と試料にコイルと絶縁用テープを直接巻いて応力を加えた場合について磁化特 性を比較した。環状試料は外径 45mm,内径 37.5mm,高さ 3mm とし、巻線は一次コイルに 50 ターン、二次 コイルに 161 ターンを手巻きした。また、理研電子(株)製の B-H カーブトレーサ BHU-60 を用いて、最大磁 界強度 Hm=10~1000A/m の範囲で直流 B-H 特性を測定した。測定には同一の環状試料を用いて、先に応力を 加えない場合を測定して、この後に応力を加えた場合を測定した。ただし、試料をケースに入れたときの測 定結果については二次コイルと試料間の空隙の磁束を補正した。

<u>測定結果</u>

Hm=150A/mの時の B-H 曲線を Fig.1 に示す。コイルを直接巻いて環状試料に巻線応力を与えたときは B-H 曲線が磁化容易に変化した。環状試料の磁化方向は円周方向であり、コイルや絶縁テープが締め付ける力は 環状試料の円周を伸ばすように作用することから、この結果は逆磁歪現象と合致している。また、各 B-H 曲 線において磁束密度から磁気分極 J を算出してそれぞれの J-H ループを求めた。これから最大磁気分極 J_m を 変化させた時の残留磁気分極 J_r と J-H ループの面積 S_hの特性を求めた(Fig.2)。試料に巻線応力が加わると J_r は大きくなったが、S_hには大きな差異が見られなかった。したがって、手巻き程度の巻線応力の有無にお いて J-H ループのヒステリシス損失はあまり変わらない。





Fig.1 B-H loops (\square) with and (\triangle) without polymer case.

Fig.2 Characteristics of residual magnetic polarization and J-H hysteresis loop area with varied maximum magnetic polarization.
ローラー型永久磁石式磁場源の設計

佐久間洋志,菊地敏明* (宇都宮大,*ハヤマ)

Design of mangle type magnetic field source using permanent magnets H. Sakuma, T. Kikuchi* (Utsunomiya Univ., *Hayama)

はじめに

Halbach シリンダー[1,2]はその内部に強力で均一な磁場を発生させることが可能であり、2 つのシリンダー を組み合わせると、磁場強度を変化させることも可能である.しかしながら Halbach シリンダーは特殊なく さび型の永久磁石を必要とし、また強力な磁力に逆らって組み立てる必要があり、これらのことがコストを 増大させる要因となっている.本研究では、円柱型の小型ネオジム磁石を用いて、低コスト、小型・軽量、 省エネ・冷却不要の永久磁石式磁場源を開発することを目的とする.本講演では、磁石の大きさや位置が磁 場強度や均一性、磁石自体に働くトルクに及ぼす影響について検討する.

構造と計算方法

Fig. 1 に示すように,径方向に着磁した 6 本の円柱型ネオジム磁石を正六角形に配置したローラー型磁場 源を考える.各磁石の角度を Fig. 1(a)のように設定すると,磁石で囲まれた空間に最大の磁場が生じる.一方,磁石の角度が Fig. 1(b)のとき,内部の磁場はゼロとなる[3].様々な磁石の大きさと距離,角度において 磁石周辺の磁場と永久磁石に働くトルクを 2 次元有限要素法 (Field Precision, TriComp) により計算した.磁石の磁束密度は 1.1 T とした.また,減磁特性は理想的な傾き-1 の直線と仮定した.

計算結果

Fig. 2 に示すように,磁石の直径を 20 mm に固定して,磁石(の中心)間距離を近づけていくと,最大磁場は強くなるが,磁場の均一性は低くなる.また,当然ながら試料や測定器具を設置する空間は狭くなる. さらに,磁石を回転させるためのトルクも大きくなるため,用途に応じて最適な設計をする必要がある.一

般的なホール効果測定や磁気光学効果測 定において,最大磁束密度 0.5 T が一つの 目安となるだろう.計算結果から,直径 20 mmのネオジム磁石を用いて,0.5 T の磁束 密度を得る場合,直径 30 mm 程度の空間を 確保できることがわかる.また,最大トル クは 30 Nm/m 程度であり,小型のモーター とギアを用いて回転させることが可能で ある.講演では,試作機を製作し,計算と 比較した結果も紹介する予定である.

参考文献

- K. Halbach, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* NS-26, 3882 (1979)
- M. Kumada *et al.*, *CERN Courier* **41**, 9 (2001)
- R. Bjørk *et al.*, J. Magn. Magn. Mater.
 322, 3664 (2010)



Fig. 1 Magnetic field produced by mangle type magnetic field source.

Fig. 2 Maximum flux density, standard deviation of flux density, and maximum torque as functions of magnet separation.

高周波磁化過程測定の高精度化と材料特性評価

小野寺礼尚¹、黒岩拓也^{2*}、柳原英人³、金甫根⁴、藏裕彰⁴、喜多英治¹ (¹茨城高専、²筑波大学大学院(現シャープ)、³筑波大学、⁴(株)デンソー)

Improvement of accuracy in a high frequency magnetization process measurement and characterization of

magnetic materials

R. Onodera¹, T. Kuroiwa², H. Yanagihara², M. Kin³, H. Kura³ and E. Kita¹ (¹NIT Ibaraki College, ²Univ. of Tsukuba, ³DENSO CORPORATION)

はじめに

近年、磁性材料の高周波応用に関する研究開発が盛んになされている。例えば、電源などパワーデバイス の小型化に伴い、駆動周波数の高周波化が求められており、搭載されるリアクトル用コア材として用いられ る軟磁性材料は磁性材料由来の損失(鉄損)の抑制が強く求められている。一方、磁性材料を高周波磁界下 で保持することで発生する熱をがん治療に用いるハイパーサーミア技術では効率の良い発熱のため鉄損の大 きな磁性材料が必要となる。どちらの技術も磁性材料の高周波磁界下での磁気応答を正確に把握することが デバイス設計のために重要である。

本研究では、コア材料および発熱体としての磁性粒子の開発に資する、高周波における高精度な磁化曲線 計測と周波数特性評価から材料特性の正確な見積もりが可能な装置を構築すること目的とする。

実験方法

本装置の磁場発生部は磁場発生用空芯コイルとコンデンサからなる直列LC共振回路と高周波電源(1 kW)で構成されており、20 k~1 MHzの範囲で高周波磁場を発生させることができる¹⁾。

磁化検出には、磁化・磁場検出コイルとデジタルオシロスコー プを使用し、磁化測定の精度と周波数依存性を評価するために、 標準試料として常磁性 Dy₂O₃粉末、YIG 3 mm 球などを使用して 周波数 60 k-200 kHz、磁場振幅 600 Oe の範囲で測定を行なった。

結果

Figure 1 は YIG 球を周波数 58 kHz、磁場振幅を約 600 Oe で測 定した結果である。反磁場係数に依存する飽和磁場が観測され、 その値により磁場と磁化の較正が可能である。挿図には原点付近 の拡大図を示している。Fig.2は Dy₂O₃粉末を 82 kHz、約 100 Oe で測定した結果である。磁化は磁場変化に対して非常に良い線形 性を示している。挿図には原点付近の拡大図を示した。Fig. 1, 2 における見かけの保磁力はそれぞれ、2、0.2 Oe ほどである。ど ちらの測定においても磁化曲線は原点付近を通過するべきであ るが、このような誤差が生じてしまう。この誤差は、主に信号検 出の分解能や、磁化検出コイルにおけるキャンセルのアンバラン スから生じるバックグラウンド信号などが原因で生じると考え られる。誤差は測定条件に依存するが、磁場振幅の小さな領域で は約0.2 Oe であり、低損失材料の特性評価に応用可能なレベルま で抑制できつつある。誤差の低減は今後の課題でもあるが、信号 測定装置の高分解能化や、検出コイルの空間配置の検討により、 高精度化を達成できると考えている。

当日は、典型的なコア材料や磁性流体の高周波測定結果についても報告する。

参考文献

1) A. Seki, et al., J. Phys.: Conf. Ser., 521 (2014) 012014.



Fig. 1 Magnetization curve of YIG sphere (ϕ 3 mm) at 58 kHz. Inset shows enlarged view around the origin.



Fig. 2 Magnetization curve of Dy_2O_3 powder at 82 kHz. Inset shows enlarged view around the origin.

ウェハレベルの磁性薄膜高周波磁歪定数・分布評価法の開発

森 修, 遠藤 恭^{*}, 島田 寛, 薮上 信^{*}, 内海 良一 (東栄科学産業, ^{*}東北大学)

Measurement of local magnetostriction for a thin film deposited on Si wafer

O. Mori, Y. Endo^{*}, Y. Shimada, S. Yabukami^{*}, R. Utsumi

(Toei Scientific Industrial co., ltd, *Tohoku University)

<u>1 はじめに</u> インピーダンス整合を考慮したマイク ロストリップ型プローブを磁性膜に近接させて計測 する透磁率評価法と同時に、応力負荷による磁気弾 性効果を利用して局所的な磁歪も評価できる高周波 特性計測法を開発した。この計測法を用いてウェハ 上薄膜の局所的磁歪の測定評価を行った。

<u>2 計測方法</u> 50 nm 厚の Co-Zr-Nb 膜の作製には RF スパッタを用いた。ウェハは 0.2 mm 厚の 4 インチ Si 基板を用いた。また、応力負荷した磁歪の計測方 法は下記の通りである。高周波伝送線路型プローブ にはインピーダンス整合を考慮した2ポートのマイ クロストリップ線路 (Microstripe Line: MSL) 型プ ローブ¹⁾を用いた。Fig. 1 のように、作製した Co-Zr-Nb 膜を円弧状のアルミ治具に沿わせて固定 し、引っ張り応力を付与すると、膜内部の異方性が 変化する。この応力負荷された Ni-Fe 膜上部に, MSL プローブを、ポリスチレンフィルムを介して近接配 置して、Co-Zr-Nb 膜における強磁性共鳴周波数 f.の 変化を評価する。計測はFig. 1のウェハ中心位置O および中心から前後左右 30mm 位置 A~D の 5 点で 行う。なお、本計測の際には、Co-Zr-Nb 膜の磁化困 難軸方向を MSL の幅方向と平行にする。

<u>3 計測結果</u> Fig. 2 はウェハ位置 O の応力負荷の有 無による 50 nm 厚の Co-Zr-Nb 膜の磁化困難軸方向へ RF 磁界を印加した際の S₂₁ から等価的な抵抗成分で ある(1-S21)/S21 実部を評価した結果である。破線は 無負荷時の状態、実線は応力負荷時の状態を示して いる。応力負荷時のウェハの曲率は 289 nm であっ た。応力負荷による f_rの変化は,外部磁界強度の増 加にともない約 30 MHz 低周波数帯域へシフトした。 これらの値と(1) 式を用いて磁歪 λs を算出した。

$$\left(f_{r+}^{2} - f_{r0}^{2}\right) / f_{r0}^{2} = \left(\frac{3\lambda_{s}h_{s}E_{f}}{2rM_{s}}\right) / \left(H_{kf} + H_{ex}\right)$$
(1)

ただし、*f*_{r0} は無負荷時の強磁性共鳴周波数、*f*_{r+} は応 力負荷時の強磁性共鳴周波数、*r* は曲率半径、*M*_s は 飽和磁化、*H*_{ex} は印加した外部磁界、*H*_{kf} は薄膜の内 部磁界、*h*_s はウェハ厚さ、*E*_f は薄膜のヤング率であ る。(1)式の($f_{r+}^2 - f_{r0}^2$)/ f_{r0}^2 と 1/(H_{kf} + H_{ex})は線形関係となっていて、各 H_{ex} におけるフィッテイングが可能である。フィッティングにより得られた傾きが($3\lambda_sh_sE_f$ / $2rM_s$)にあたるので、各パラメータを用いて磁歪 λ sを算出したところ、 -3.46×10^6 であった。また、A~O それぞれの位置で測定した結果を Table.1に示す。この結果から、ウェハ上のいずれの位置でも磁性膜の磁歪はほぼ均一となっている事が解った。

<u>謝辞</u> Co-Zr-Nb 膜に関しては,東北大学電気通信研究所 の石山和志教授、枦修一郎准教授にご提供いただきました。 ここに深謝します。本研究の一部は宮城・仙台富県チャレ ンジ応援基金事業の成果である。

参考文献 1) S. Yabukami, K. Kusunoki, H. Uetake, H. Yamada, T. Ozawa, R. Utsumi, T. Mori izumi, Y. Shimada, "Permeability Measurements of Thin Film Using a Flexible Microstrip Line-Type Probe Up To 40 GHz", *Journal of the Magnetics Society of Japan*, Vol. **41**, No. 2, pp. 25-28 (2017).



Fig. 1 Schematic of measurement system.



Fig. 2 FMR of CoZrNb film (4inch Wafer, 50nm thick).

table. 1 The magnetostriction distribution in each position.

Position	λs
0	-3.46×10 ⁻⁶
Α	-4.03×10 ⁻⁶
В	-3.60×10 ⁻⁶
С	-3.63×10 ⁻⁶
D	-3.75×10 ⁻⁶

短絡同軸線路による磁性薄膜の 30GHz までの複素透磁率測定

武田 茂、青木 英恵*、山崎真之介**、増本 博*、鈴木洋介** (Magnontech, *東北大学, **キーコム㈱)

Complex permeability measurement of magnetic thin film up to 30 GHz by short-circuited coaxial line

S. Takeda, H. Aoki*, S. Yamasaki**, H. Masumoto*, H. Suzuki**

(Magnontech, Ltd., *Tohoku University, **KEYCOM Corp.)

はじめに 遮蔽型短絡マイクロストリップ線路(MSL)を用いて磁性薄膜の複素透磁率¹⁾及び短絡同軸線路 (SCL)を用いて磁性シートの複素透磁率の測定方法も報告した²⁾。今回、短絡同軸線路を用いてトロイダル 形状の面内等方性磁性薄膜の複素透磁率を 30GHz まで測定したので報告する。

実験方法と解析方法 短絡同軸線路としては APC-7 を用いた。磁性薄膜(Co·SiO₂³)は、トロイダル形状の 7 mmφ x 3 mmφ x 0.5 mmt のガラス基板の上にスパッタ法で作製し、その厚みは 1.5 µm である。磁性薄膜は垂 直異方性を有し、面内の異方性はほとんどない。複素透磁率測定の際のゼロ点補正は強い静磁界(5240 Oe)を 印加する field 法を用いた。Fig.1 に短絡同軸線路に薄膜試料を挿入した場合の概略断面図を示す。試料面は短 絡部に接触するようにする。このとき、電源側の基板面を標準面として短絡部側を集中定数近似し、等価回 路を LC 並列回路として解析した。結合係数は h= t/(d+t)= 0.03 と比較的正確に求められるので、絶対測定が 可能である。d= 0.5 mm は基板の厚み、t= 1.5 µm は薄膜の厚みである。ただし、MSL と異なり、Fig.2 に示し ように、field 法を採用し外部から静磁界 H_{ext}を加えた場合、A 部、C 部は H_{ext} と h_{rf} は平行で、この部分はµ=1 と考えられるが、D 部と B 部は垂直であり H_{ext}による強磁性共鳴の信号(FMR2)が残る。この信号を LLG 方 程式より算出したものと同じと仮定して差し引き、磁性薄膜材料自体の透磁率(FMR1)を導出した。Fig.3 が検 出された信号であり、Fig.4 が外部磁界 H_{ext}による強磁性共鳴の信号を差し引いた材料自体の値(FMR1)である。

参考文献

- 1) S. Takeda, M. Naoe, J. Magn. Mang. Mater., 449 (2018) 530-537,
- 2) 武田、Ranajit Sai, 青木、山口、発知、本村、鈴木、「短絡同軸線路を用いた高周波透磁率の測定—30GHz への挑戦」、電気学会マグネティックス研究会資料 MAG-15-170 (2016), 於富山高専,
- 3) H. K. Aoki, S. Takeda, S. Ohnuma, H. Masumoto, IEEE Magn. Lett. (2018), in press.



Fig.1 Cross-sectional view of short-circuited coaxial line loading a toroidal thin film.



Fig.3 Measured μ -*f* curve of magnetic thin film on 0.50 mm substrate with 1.5 μ m thickness by field method (5.3kOe)



Fig.2 Schematic configuration of static magnetic field and RF magnetic field in the toroidal sample.



Fig.4 Corrected μ -*f* curve of Fig.3 by LLG equation.

高周波複素透磁率測定における反磁界効果

武田 茂、田口 実*、山崎真之介*、本村貞美*、発知富夫*、鈴木洋介* (Magnontech, *キーコム)

Demagnetization effect in high frequency complex permeability measurement S. Takeda, M. Taguchi*, S. Yamasaki*, S. Motomura*, T. Hotchi*, H. Suzuki* (Magnontech, Ltd., *KEYCOM Corp.)

はじめに 高周波複素透磁率μ'----μ'・変測定する場合、遮蔽型短絡マイクロストリップ線路(MSL)を用いて短 冊状試料を測定した結果と、短絡同軸線路(SCL)を用いてトロイダル試料の複素透磁率を測定した結果は異な る。前者の低域の透磁率µ'は減少し、高域おけるµ"のピーク周波数fr(自然共鳴周波数)は高周波側にシフト する。MSLとSOLの関係は、マクロ反磁界係数Nで1対1に対応させることができる¹⁾²⁾³⁾。一方、高周波 磁気工学ではLLG 方程式で導入されるミクロな反磁界係数 Nx, Nv, Nz がある。今回、LLG 方程式の計算結果 でも N_xが大きくなると自然共鳴周波数が高域に移動するという現象を確認した。

実験結果 まずに、同じ132 µm の NSS (Noise Suppression Sheet) から5 mm x16 mm の短冊試料及び7 mm f x 3 mmφのトロイダル試料を切り出す。Fig.1 は、それぞれのμ-f 特性を MSL、SCL で測定した結果を示す。 SCL は APC-7、MSL の諸元は、ストリップ線路幅 w=7.5 mm, 線路高さ h₁=2 mm, h₂=6.7 mm, 冶具長 l=8 mm である。トロイダル試料の場合、1 MHz でμ'= 90 であるが、10 MHz から漸減しはじめ 1 GHz では 5 程度と なる。また、μ"は約 200 MHz でピークを取る。この周波数が自然共鳴周波数 fr である。一方、短冊試料で は、1 MHz でµ'=40 と低下し、自然共鳴周波数 f. は 750 MHz まで上昇する。次に、MSL のデータを補正し、 SCLの結果に一致させた。そのとき得られたマクロ反磁界係数は N=0.0149 であった。

計算結果と考察 ミクロ反磁界との関係を調べるために LLG 方程式を計算した。その結果を Fig.2 に示す。 トロイダル試料を5mmx2000mmの短冊試料と仮定した。このときの反磁界係数をチャージモデルで計算 し、Nx=0, Ny=0.983, Nz=0.0168 を得た。トロイダルの円周方向に相当する高周波磁界の方向が x 方向である。半径方向 が z 方向、厚み方向が y 方向である。ここでは、磁性材料の飽和磁化 4πMs=5000 G、z 方向の異方性磁界 Hz= 140 Oe、緩 和係数α=1 とした。このときの自然共鳴周波数 fr は約 170MHz であった。実験の 200 MHz より少し低い。また、10 MHz 以上で漸減する現象は計算では再現できない。一方、短冊試料の実際の寸法は5mm x 16mm であるが、x 方向の反磁界 係数 Nx= N= 0.0149 となるように、5 mm x 4.28 mm の短冊試料とした。このときの反磁界係数は Nx=0.0149、Ny=0.974、 Nz=0.0109 である。Fig.2 に示すように、1MHz でのµ'は 30 程度と低下し、自然共鳴周波数 fr は 500 MHz にシフトした。 定量的な一致は見られなかったが、ミクロ反磁界が増加すると自然共鳴周波数が上昇する現象を確認できた。

; µ'







参考文献

- S. Takeda, T. Hotch, S. Motomura, and H. Suzuki, Journal of the Japan Society of Powder & Powder 1) Metallurgy, vol.61, (2014), No.S1, S303-307,
- S. Takeda, et al., J. Magn. Soc. Jpn., 39, 227-231 (2015), 2)
- 3) S. Takeda, et al., J. Magn. Soc. Jpn., 39, 116-120 (2015),

正/負透磁率材料の積層伝送線路の表皮効果抑制に関する理論的検討

鮎澤 祥史, 森山竜太, 久保村航大, 中山英俊 (長野工業高等専門学校)

Theoretical Study on Skin Effect Loss Reduction of Cylinder Multi-layer Transmission Line with Positive/Negative Permeability Materials

Yasufumi AIZAWA, Ryuta MORIYAMA, Kodai KUBOMURA and Hidetoshi NAKAYAMA (National Institute of Technology, Nagano College)

<u>はじめに</u>

高周波線路では表皮効果による損失の増大が,低損失化の大きな課 題である.同課題を解決する革新的手法として,負の透磁率材料を用 いた表皮効果抑制に関する研究¹⁾が進められ,山口らの先行研究により, その抑制効果が実証された¹⁾.同研究では,薄膜積層構造による矩形 断面線路の表皮効果抑制の設計指針を示したが,矩形線路は複雑な電 磁界メカニズムであるため,最適設計を見出す詳細な検討は有限要素 法解析等に頼らざるを得ない.本研究では,負の透磁率材料の適用効 果の理論検証のため,まずは円形断面線路を対象として検討しており, 以前に多層モデルについて報告した結果²⁾を踏まえて,複素透磁率の 虚部による磁性損失を考慮して検証した結果を報告する.

正/負透磁率材料の積層構造による高周波伝送線路理論

本研究では理論的検証のため、単純な円形積層断面構造の線路を対象に、Fig.1に示す電磁界モデルで検討した.同心円状の多層線路の電流密度と銅損は既報²⁾で示され、式(1)第1項に相当する.第1項は、 各層の材料の導電率σnと電流密度 in(r)により求められる銅損である. 第2項は、従来研究で未対応であった磁性材料の複素透磁率の虚部による磁性損失である.磁性損失は、局所的な磁界 H(r)と複素透磁率の虚部μ"から求められる.銅損と磁性損失を合わせた n 層目の損失 L_nを式(1)で評価でき、低損失な積層構造の設計を得ることができる.

 $L_n = \int_{r_{n-1}}^{r_n} \frac{|i_{2n}(r)|^2}{\sigma_n} \cdot 2\pi r \cdot dr + \int_{r_n-1}^{r_n} \frac{1}{2} \cdot \omega \cdot \mu_n'' \cdot H(r)^2 \cdot 2\pi r \cdot dr \quad (1)$



Fig. 1 Structure of cylinder transmission line.



Fig. 2 Loss per unit length vs. Q factor of negative permeabillity material.

計算結果及び今後の展望

正/負透磁率材料の2層構造において,2つの材料の導電率 σ_1 および σ_2 をCuと同等(5.81×10⁷ S/m)とし, 比透磁率の大きさがともに1である正/負透磁率材料($|\mu_{rl}| = |\mu_{r2}| = 1$)を想定し,負の透磁率材料は,複素透磁 率の実部が負($\mu = \mu' - j\mu'', \mu' < 0$)で,そのQ値(= $|\mu'/\mu''|$)の大きさを変化させた場合の損失を比較検討した. 設定条件は,周波数f = 1 GHz,最外層の半径 $r_{max} = 8 \mu m$ とし,内側の負の透磁率材料の積層半径 $r_1 = 5.67 \mu m$ として,Q値に対する伝送線路全体の損失と,そのうち銅損の大きさを計算した結果をFig.2に示す.Fig.2 における伝送線路全体の損失と銅損との差が,今回新たに考慮した磁性損失を示している.結果として,Q 値が小さいほど磁性損失も大きくなり,全体損失に占める磁性損失の割合を計算することができた.

今後は,複素透磁率の虚部による磁性損失を含めて,適用周波数や想定する材料値等の条件を変化させ, 積層伝送線路の表皮効果抑制および損失低減を目的とした構造設計の検討を進める予定である. 謝辞

的时

本研究の一部は、JSPS 科研費 17K14674 の助成を受けており、ここに感謝申し上げます.

参考文献

1) Yamaguchi et al.: MWE 2008 Microwave Workshop Digest, 207-210 (2008).

2) Moriyama et al.: Digest of the 41th Annual Conf. Magn. Jpn., 41, 184 (2017).

スプレーコート法によるコンポジット磁性膜の磁気特性の測定

原 健、山口 正洋*、小西 淳一** (リコー電子デバイス株式会社、*東北大学、**株式会社リコー)

Measurement of magnetic properties of a thin soft ferrite film by spray-coat method T. Hara, M. Yamaguchi*, J. Konishi** (RICOH Electronic Devices Co., Ltd., *Tohoku University, **RICOH Co., Ltd.)

はじめに

IoT ワイヤレスセンサノードと呼ばれる端末機器には、小型で高効率な電源制御回路が必要とされている。 これを実現するべく、DCDC コンバータ用 IC とインダクタを一体型にする技術が広く検討されている⁽¹⁾。 そのような中で、簡便かつ低コストに製造可能な薄膜インダクタの実現が期待されている。

本稿では、薄膜インダクタ向け磁性層の製膜工程にスプレーコート法を提案し、本工法によるコンポジット磁性膜の基本的な磁気特性を測定した内容を報告する。

実験方法

スプレーコート法とは、塗布材の噴霧することにより凹凸な 表面への塗布に適した工法である。Si 基板上にスプレーコート 法で Ni-Zn-Cu 系ソフトフェライト粉末(平均粒径 = 0.61 µm、 初透磁率 = 544 @ 1 MHz)と、エポキシ系樹脂とのコンポジッ ト材を形成した。フェライト粉末の充填率は19.5 wt%、膜厚は 62.6 µm とした。スプレーコートを行う際には希釈液として樹 脂用溶剤と PGMEA 溶剤を用い、大気下・室温で塗布を行い、 直後に 80 ℃にて2 分間の乾燥を行った。M-H 曲線は VSM で、 複素透磁率はシールディドループコイル型高周波透磁率測定装 置を用いて測定した。

実験結果

Fig.1 に本研究で作成した磁性膜の M-H 曲線を示す。コンポ ジット材としての飽和磁化 Ms は 80 emu/cc と Ni-Zn-Cu 系ソフ トフェライト粉末の Ms に比べて低く、フェライト粉末の充填 率を 19.5 wt%としたことが理由として挙げられる。

次に、Fig.2 に複素透磁率を示す。バイアス DC 磁界を増加させることで、低周波帯では実部が減少し、周波数に対して一定となり、また、高周波帯では共鳴周波数が高周波側にシフトしており、一般的な磁性膜の傾向と一致した。

あとがき

本稿では、スプレーコート法を適用したコンポジット磁性膜の磁気特性を測定し、混合攪拌やスプレープ ロセスによる応力の影響は無視でき、所期の磁気特性が得られることが確認できた。インダクタへ適用する ため今後の課題として、磁性体粉末の体積濃度の向上化が挙げられる。

<u>参考文献</u>

 A. W. Lotfi, et al, "Integrated, High-Frequency DC-DC Converter Technologies Leading to Monolithic Power Conversion, CIPS 2012, Paper 07.5 (2012).



Fig.1 Static magnetization curve



Fig.2 Complex Permeability

Study on the Magnetic Nonlinear Mixing Frequency Technique and Its Application in Mechanical Properties Assessment

Yu Chang^{1,2}, Jingpin Jiao¹, Satoru Kobayashi², Cunfu He¹, Bin Wu¹ ¹College of Mechanical Engineering and Applied Electronics Technology, Beijing University of Technology, Beijing, China ²Department of Physical Science and Materials Engineering, Faculty of Science and Engineering, Iwate University, Iwate, Japan

Assessment of the mechanical properties is of high importance, both for safety and economical in the modern industrial. The majority of conventional non-destructive evaluation techniques are insensitive to the degradation in the microstructure of the metal. However, it is well known that the nonlinearity of magnetic hysteresis in ferromagnetic materials is completely depended on the material microstructure [1] and the mixing frequency method can precisely measure the nonlinear effect [2]. We investigate a new micromagnetic method that exploits the magnetic mixing frequency technique to induce the magnetic nonlinearity. Figure 1 shows a typical example of mixed B-H loop with a set of minor loops superposing on the saturation loop. Then, the minor loss coefficient and the magnetic nonlinear factor are used to characterize the mechanical properties of materials. An experiment result of case harden which assessed by the magnetic nonlinear factor is shown in Figure 2. Also, the magnetic nonlinear mixing frequency methods, the studied method has an advantage in assessing the subtle changes in microstructural mechanical properties. It has the potential to be used as a non-destructive technique.



Fig1. Hysteresis loop of mixing frequency excitation Fig 2. Hardness dependencies of the magnetic nonlinear factors

Reference

- Jiles, David C, and Y. Melikhov. "Modelling of Nonlinear Behaviour and Hysteresis in Magnetic Materials," Handbook of Magnetism and Advanced Magnetic Materials. John Wiley & Sons, Ltd, pp.71-81. 2007.
- 2) Ficko, B. W., P. Giacometti, and S. G. Diamond. "Nonlinear Susceptibility Magnitude Imaging of Magnetic Nanoparticles," Journal of Magnetism & Magnetic Materials, vol. 378, pp. 267-277. 2015.