Development of motor design technologies using high performance magnets

Yoshinari Asano, Yoshihito Sanga, Shintarou Araki, Michihiro Nakagawa, Akio Yamagiwa (Daikin Industries, Ltd.) Shigeo Morimoto, Masayuki Sanada, Yukinori Inoue (Osaka Prefecture University)

The Technology Research Association of Magnetic Materials for High-Efficiency Motors (MagHEM) was founded in 2012 to develop the innovative high-performance magnets without/less rare-earth materials which exceed current magnets with rare-earth materials in performance, the high-efficiency soft magnetic materials (Iron core) for internal loss reduction, and compact high-efficiency motors.

Targets of R&D are new magnets exceeding Neodymium magnets with 2 times in (BH)max (180°C), and high efficiency motors with 40% reduction in loss, 40% improvement in power density using new magnets.

We have achieved the above target in simulation⁽¹⁾⁽²⁾⁽³⁾. In this paper, we compare the characteristics of a small-diameter V-shaped magnet arrangement prototype(1V-80) and a small-diameter double-layered arranged prototype(2D-2-80-EN-M) with a conventional single-layered V-shaped arranged prototype(1V) by actual machine measuring.

Then we compared measured data to analysis data. At a result measured loss for the 2D-2-80-EN-M prototype was reduced by more than 40% compared to that for the 1V prototype as well as the analysis data⁽⁴⁾.



Acknowledgments

This article is based on results obtained from the Future Pioneering Program "Development of magnetic material technology for high-efficiency motors" (JPNP14015) commissioned by the New Energy and Industrial Technology Development Organization (NEDO).

Reference

- Y. Shimizu, S. Morimoto, M. Sanada, Y. Inoue: "Influence of Permanent Magnet Properties and Arrangement on Performance of IPMSMs for Automotive Applications", IEEJ Journal of Industry Applications, Vol.6 No.6 pp.1-8(2017)
- R. Imoto, M. Sanada, S. Morimoto, Y. Inoue: "Study on Mechanical Strength Improvement of Rotor in Compact and High Speed 2-layer IPMSM for HEV Applications", 2018 Kansai Joint Convention of Institutes of Electrical Engineering, G4-17 (2018)
- Y. Asano, Y. Sanga, S. Araki, M. Nakagawa, A. Yamagiwa, S. Morimoto, M. Sanada, Y. Inoue: "Development of fundamental technologies for motors in Technology Research Association of Magnetic Materials for High-Efficiency Motors", The 43rd Annual Conference on MAGNETICS in JAPAN, 25aA-1(2019)
- Y. Nishio, M. Sanada, S. Morimoto, Y. Inoue: "Loss Evaluation based on Experiment on Compact and High-speed IPMSM Using Strong Magnet and Low-iron-loss Material" The 23rd International Conference on Electrical Machines and Systems(2020)

Recent advancement of permanent magnet materials developments for vehicle electrification and expectation for future research.

Tetsuya Shoji

Toyota Motor Corporation, Advanced Material Engineering Div. Technology Research Association of Magnetic Materials for High-Efficiency Motors (MagHEM)

1.Background

Recently, vehicle electrification expands rapidly. It is well known that electrified vehicle has additional component compare to conventional gasoline vehicle, i.e. battery, inverter and electric motor. At this moment, supply and demand seems to be acceptable for all additional electric component. However, most of future forecast says that amount of electrified vehicle become two to five times larger than current vehicle sales. This means that we need number of electrified unit, at least, more than two times compare to current demand. For example, IEA scenario described in Energy Technology Perspective 2017 forecasts electrified vehicle increase from 14 million in 2020 to 40 million in 2030 [1]. When we look at even only around vehicle technological shift, it is easy to forecast enormous number of rare-earth magnet will be needed. From this circumstance, we are researching coercivity mechanism of rare-earth magnet and consider what we can do for balancing global supply and demand of rare-earth materials.

Beside vehicle application, future demand of magnet may rise not only from vehicle electrification but from mobility for short commute, logistics, robotics etc. When we include these application for future forecast of rare earth demand, larger amount of rare earth demand is expected. In order to get over this problem, we should look at wider magnet composition range. In this talk, I will present recent progress of magnet R&D in TMC based on data driven approach.

2. Current situation of magnet research in TMC

Regarding RE₂TM₁₄B compound, we adopt informatics technique for accelerating magnet research. For designing performance of magnet, we need not only magnetic properties of compound but microstructural control technique. From research achievement in the past, we already aware that coercivity can be enhanced by surface modification. It is well known that surface modification consists of two parts, one is compositional control of grain shell [2,3,4] and recovering surface distorted region [5]. In order to control these two parts, we can use grain boundary diffusion technique and low temperature annealing. On the other hand, compositional dependence of magnetic properties, many reports were published in the past, but information had not stored systematically. To get over this situation, we are now producing data space for designing magnet [6]. When we look only at room temperature, it seems that there is no room to enhance magnet performance in RE₂TM₁₄B system. Combining experimental data, empirical model and first principle calculation, our group expand data space, about 100 data from experiment and several thousand data from first principle. Mining established data space, we can find better performance potential composition range in elevated temperature. Currently, we are strongly push forward data driven research. To utilize all information contained in all data, e.g. XRD, SAS, micro-scope image etc., we develop data extraction technique utilizing informatics algorithms and integrate these achievements into cloud server system.

3. Future perspective

In near future, many kind of electro-magnetic devices become important for future application not only for vehicle electrification but for various application. In order to Designing magnetic performance suited for each application, magnetic properties data space will take important role, I think. I hope "Data driven material research" will evolve "Data driven material design and development". To achieve this context, culture for storing research data will become more important.

Acknowledgement

I would like to thank to research collaborators of TMC's magnet research activity, Prof. Miyake's group AIST and Prof Fukushima's group ISSP. I deeply thank to Dr. Harashima, Dr. Doi and Dr. Matsumoto for executing first principle calculation and machine learning. This work was partly supported by the future pioneering program Development of Magnetic Material Technology for High-efficiency Motors commissioned by the New Energy and Industrial Technology Development Organization (NEDO).

<u>Reference</u>

- 1) Energy Technology Perspective 2017; IEA
- 2) K. Machida et al; Abstracts of Spring Meeting of Japan Society of Powder and Powder Metallurgy. 2004.;
- 3) H. Sepehri-Amin et al; Journal of Applied Physics **107**, 09A745 (2010); T(K)
- 4) M. Ito et al; AIP Advances **6**, 056029 (2016);
- 5) G. Hrkac et al; Appl. Phys. Lett. 97, 232511 (2010);
- 6) Y. Harashima et al; submitted

Development of high coercivity Nd-Fe-B permanent magnets with improved thermal stability

H. Sepehri-Amin, J. Li, Xin Tang, T. Ohkubo, K. Hono (ESICMM-NIMS)

(Nd,HRE)-Fe-B based permanent magnets (HRE : heavy rare-earth) are utilized in the traction motors of (hybrid) electric vehicles which are resistive against demagnetization at the operating temperatures up to 200°C. However, due to the limited natural resources of HRE elements such as Dy and Tb, the development of HRE-free Nd-Fe-B based magnets with sufficiently large coercivity is needed. To meet this demand, the improvement of the thermal stability of coercivity is desired. It is well known that the temperature dependence of coercivity in commercial Nd-Fe-B sintered magnets deviates from temperature dependence of the anisotropy field of $Nd_2Fe_{14}B$ (Fig. 1a). In this study, we investigated the mechanism of pronounced thermal degradation of coercivity of Nd-Fe-B magnets by combining micromagnetic simulations, magnetic domain observations, and multi-scale microstructure characterizations using scanning transmission electron microscopy and atom probe tomography [1-6].

In this talk, we first discuss the reason for the poor thermal stability of coercivity in Nd-Fe-B based

permanent magnets. In previous micromagnetic simulation studies, the temperature dependent magnetization of intergranular phase has not been considered. In this work, we found that the concavity of H_c -T can be reproduced incorporating the by temperature dependent magnetization of ferromagnetic intergranular phase (Fig. 1b) [6]. Decrease of saturation magnetization and Curie temperature of the grain boundary phase were found to be crucial to improve the thermally stability of the coercivity of Nd-Fe-B magnets. Based on this simulation results, we demonstrated excellent hard magnetic properties of $\mu_0 H_c = 2.5$ T, $\mu_0 M_r$ =1.4 T, and an excellent thermal stability of coercivity of -0.33 %/°C by low-melting-temperature infiltrating Nd-HRE-Cu alloy into hot-deformed Nd-Fe-B magnets (Fig. 2). Based on the microstructure studies and micromagnetic simulations, we will discuss how the formation of non-ferromagnetic boundary grain



Fig. 1 (a) Comparison of the temperature dependence of coercivity of conventional Nd-Fe-B sintered magnet and intrinsic anisotropy field of Nd₂Fe₁₄B [6]. (b) Simulated temperature dependence of coercivity when grain boundary is ferromagnetic with and without consideration of temperature dependence of M_s^{GB} , A^{GB} , and thermal activation [6].



Fig. 2 Coercivity as a function of temperature obtained from as hot-deformed and Nd-HRE-Cu infiltrated magnet. STEM-EDS map of Nd and HRE is shown in inset. (b) Simulated temperature coefficient of coercivity for the hot-deformed model with Nd₂Fe₁₄B grains covered with and without HRE-rich shell and different GB magnetism [5].

phase and HRE-rich shell are beneficial to achieve high coercivity with excellent thermal stability (Fig. 2).

[3] Xin Tang et al. Scripta Mater. 147 (2018) 108.

[5] J. Li et al. Acta Mater. 187 (2020) 66.

[1] H. Sepehri-Amin et al. Acta Mater. 99 (2015) 297. [2] M. Soderžnik et al. Acta Mater. 135 (2017) 68-76. [4] Lihua Liu et al. AIP Advances 8 (2018) 056205. [6] J. Li et al. Acta Mater. 199 (2020) 288.

Computational thermodynamics and microstructure simulations applied to grain boundary engineering in Nd-Fe-B sintered magnet

T. Koyama¹ and T. Abe²

¹ Department of Materials Design Innovation Engineering, Nagoya University, Nagoya 464-8603, Japan ² Research Center for Structural Materials, National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan

To control the coercivity of the Nd hard magnet efficiently, we should understand the thermal stability of constituent phases and the microstructure changes observed in the hard magnets during their thermal processes. Since the CALPHAD method and the phase-field method have been recognized as promising approaches to realize the phase stability and microstructure developments in the engineering materials recently,¹⁾ we applied these methods for understanding the nature of the grain boundary phase and the microstructure developments in Nd-Fe-B hard magnet. Figure 1 demonstrates the two-dimensional simulation result on the microstructure changes of Fe-15.3 at %Nd-5 at %B-0.2 at %Cu alloy with isothermal aging at 873K. Upper and lower figures are the phase field and the composition field, respectively. The white, black and gray parts in the phase-field are the Nd₂Fe₁₄B phase (T₁ phase), the liquid phase, and the Nd solid phase, respectively, and each number indicated by t' is a dimension less aging time. The degree of red color in the composition field means the local Nd concentration in the microstructure. At early stage, the Nd solid phase starts dissolving, and a liquid phase appears at grain boundary region. With aging, the Nd solid phase gradually disappears, and the Nd-rich liquid phase penetrates along grain boundary region, then the characteristic morphology of microstructure that the T_1 grains are uniformly covered with thin film of liquid phase appears. It has been elucidated experimentally that the Cu addition lowers the melting point of the liquid phase, because a eutectic reaction exists in the Cu-Nd binary phase diagram. By increasing the thermodynamic stability of liquid phase by Cu addition, the volume fraction of the liquid phase also increases, and then, it can be understood that the characteristic morphology is stabilized. Furthermore, when we focused on the final composition field carefully, the brightness of red color at the tri-junction region of T_1 grains differs from that at the grain boundary region between T_1 grains. This is because of the phase separation in the liquid phase, i.e., $L \rightarrow L_1 + L_2$. Since a phase separation of liquid phase has been reported in the calculation of the Fe-Cu-Nd phase diagram, the liquid phase separation induced by Cu addition is not an unusual phenomenon. When we imagine the coarsening process of the liquid phases, the L_1 phase should move over the L_2 phase; in other words, the movements of the L_1 and L_2 phases will interfere with one another during coarsening. The phase separation of liquid phase can contribute to stabilize the characteristic morphology (uniform coating of the T_1 grains by the liquid phase) temporally.

Reference



1) T. Koyama, Y. Tsukada, T. Abe and Y. Kobayashi, J. Japan Inst. Met. Mater., 81 (2017) 43-48.

Fig.1 Phase-field simulation of the microstructure changes in Fe-15.3 at %Nd-5 at %B-0.2 at %Cu alloy with isothermal aging at 873K.

Acknowledgement: This work was partly supported by the project in Elements Strategy Initiative Center for Magnetic Materials (ESICMM) founded by Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology, Japan.

Determination of constituent phase changes in Nd-Fe-B-Cu sintered magnets on heating and cooling processes by *in-situ* synchrotron X-ray diffraction

S. Kobayashi^{1,2}, A. Martin-Cid^{1,2}, T. Abe², S. Hirosawa², M Suzuki¹, and T. Nakamura^{1,2,3}

¹Japan Synchrotron Radiation Research Institute, 1-1-1 Kouto, Sayo, 679-5198, Japan.

²Elements Strategy Initiative Center for Magnetic Materials, National Institute for Materials Science, Tsukuba

305-0047, Japan.

³International Center for Synchrotron Radiation Innovation Smart, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan

For the production of Nd-Fe-B sintered magnets with high coercivity, optimized heat treatments to improve the microstructure are essential. Thus, the clarification of the thermodynamic behavior of secondary phases that form microstructure is important to manufacture such magnets effectively. To clarify phase changes in bulk magnets during heating treatments, we have conducted *in-situ* high-temperature synchrotron X-ray diffraction (XRD). The previous measurements for Nd-Fe-B-Cu bulk sintered magnets were successfully conducted only on heating [1,2]; however, it is difficult to distinguish between reversible and irreversible changes with temperature, which is essential for comparing experimental and theoretical results. Therefore, it is desirable to observe phase changes on cooling as well, although it is challenging because of the easy oxidation of rare-earth elements at high temperatures. In this study, we improved the experimental setup in the high-temperature *in-situ* XRD and carried out measurements on both heating and cooling.

A rectangular rod-shaped isotropic as-sintered magnet with the composition of $Nd_{13.74}Fe_{78.35}B_{5.92}Cu_{0.10}O_{1.88}$ in at.% was used. The preparation method has been reported elsewhere [2]. Synchrotron XRD measurements were conducted using a carefully designed sample holder to prevent the oxidization of magnets during heating. Synchrotron XRD profiles were collected using a high-resolution one-dimensional solid-state detector at the BL02B2 beamline of SPring-8. The sample was heated from room temperature to 1100°C using a cylindrical heater. The experimental results were compared to the computational phase diagram of this magnet based on the combined *ab initio*/CALPHAD approach [3].

We have observed similar XRD profiles at the same temperatures on heating and cooling except for slight differences in peak intensities, indicating the successful observation of the almost reversible phase changes. Figure 1 exhibits the temperature dependence of the amounts of secondary phases on cooling. There are two remarkable changes, which are compared to the computational diagram. One is the change in the amount of dhcp-Nd phase between 500°C and 650°C, which is similar to the previous observation except for the slight difference in temperatures [1,2]. This phase change is considered to originate from the eutectic reaction of dhcp-Nd and NdCu phases, as confirmed by the calculation. The NdCu binary phases, which were suggested in previous reports [3,4], were not detected in XRD probably because of the broad XRD peaks resulting from small crystalline sizes on the order of nanometers. The other finding is the change in the amounts of fcc-NdO_x and hcp-Nd₂O₃ above 1000°C. The result is likely explained as follows: fcc-NdO_x \leftrightarrow hcp-Nd₂O₃ + Liquid (the rightward and leftward reactions represent a phase change on heating and cooling,

respectively). Although the phase change temperature we observed is much higher than that in the calculated phase diagram of this magnet composition (650°C), the temperature is close to that in the calculated NdO binary diagram (1100°C) [4]. This means that the fcc-NdO_x phase does not show the phase equilibrium with the other secondary phases in the Nd-Fe-B-Cu sintered magnet but shows the phase change almost independently.

We thank T. Nishiuchi and T. Fukagawa of Hitachi Metals, Ltd. for supplying the samples. Part of this work is supported by ESICMM under the outsourcing project of MEXT (JPMXP0112101004).



Fig. 1 Temperature dependence of amounts of secondary phases in the Nd-Fe-B-Cu isotropic sintered magnet on cooling.

References

[1] N. Tsuji *et al.*, Acta Mater. **154**, 25 (2018).
[2] H. Okazaki *et al.*, Acta Mater. **181**, 530 (2019).
[3] T. Abe *et al.*, Scripta Mater. **154**, 305 (2018).
[4] W. F. Li *et al.*, Acta Mater. **57**, 1337 (2009).

Development of high performance anisotropic magnetic powders for

bonded magnets

Jinbo Yang

Peking University, PR China

The preparation of high-performance anisotropic magnetic powder is the key to obtain highperformance bonded magnets. In this talk, I will report the research results of our group on anisotropic permanent magnetic powders and magnets. By using neutron diffraction, magnetic measurement, electron microscopy, and other techniques combined with the electronic structure calculation, the relationship between the structure and magnetic properties of magnetic materials was investigated. The physical roots of the interstitial atom effect to improve the magnetic properties of the material are clarified, and the preparation of defect-free single-crystal-like particles is proposed to synthesize high-performance magnets powders. Based on the technical route of anisotropic permanent magnetic powder, the key technologies and equipments for the industrialization of high-performance anisotropic Sm₂Fe₁₇N_x and Nd(Fe,M)₁₂N magnetic materials and magnets have been developed. We also investigated the critical mechanism of the formation of textured NdFeB and MnBi permanent magnetic powder and the methods to achieve high coercivity and high maximum energy product. The high-performance magnetic powders with hightemperature stability were obtained. Finally, we explored the synthesized hybrid bonded magnets based on these magnetic powders, which is critical to realizing the mass production of anisotropic bonded magnets.

Sm-Fe-N powders and bulk magnets by ultra-low oxygen processes

K. Takagi, W. Yamaguchi, R. Soda, H. Hosokawa, and Y. Hirayama

Magnetic Powder Metallurgy Research Center (MagMET), National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST)

Many researchers have tried an anisotropic $Sm_2Fe_{17}N_3$ sintered magnet so far in order to obtain a heat-resistant permanent magnet with high coercivity and remanence. However, it had been stagnating for a long time because of two obstacles: one is thermal decomposition which limits the sintering temperature, and the other is significant deterioration of coercivity during sintering. For the latter problem, we have so far clarified the involvement of surface oxide film on the raw powder, and then demonstrated that powders with less surface oxide can suppress the coercivity deterioration ¹). Based on these facts, we built up our own low-oxide powder metallurgy system to produce a sintered magnet without air-exposure from pulverization to sintering. Using this process, the present study examined the possibility of creating a high-performance $Sm_2Fe_{17}N_3$ sintered magnet ²). Our system consists of some glove boxes connected in series, and these glove boxes are equipped with functions such as pulverization, magnetic alignment, sintering, and so on.

First, the Sm₂Fe₁₇N₃ fine powders with less surface oxidation were produced by using a high-pressure jet-mill under the low oxygen environment. By varying milling conditions, fine powders of various mean sizes down to 1 micrometer could be prepared. Among these, the finest powders had the largest coercivity more than 14 kOe but their $(BH)_{max}$ was very low due to kink and powder agglomeration. The powders prepared with appropriate conditions exhibited the large $(BH)_{max}$ of 43 MGOe as well as low oxide less than one third of conventional.

The prepared powders were then subjected to magnetic-aligned compaction and rapid sintering under the low oxygen atmosphere. As expected, the powders with less oxide film showed only slight decrease in coercivity of less than 15% by sintering, whereas the conventional techniques suffered the reduction more than 70% ³). Sintered density was reached to a relatively high value of 91% by even sintering temperature of 500 °C. On the other hand, the achievement of suppression of coercivity deterioration has revealed a new problem of decrease in saturation magnetization. Specifically, the saturation magnetization of powder was reduced by about 5% during sintering. This reduction would be derived from low crystallinity of the jet-milled powder. Due to this reduction in saturation magnetization, $(BH)_{max}$ of sintered magnets was 24 MGOe regardless of the high $(BH)_{max}$ of raw powder. Nevertheless, this value was achieved for the first time by the accessible sintering technique.

We are also conducting the research to improve the coercivity of sintered magnets by direct metal coating on $Sm_2Fe_{17}N_3$ particles without surface oxide film. In the neodymium magnets, it is known that the coercivity is greatly improved by adding a specific other element into the grain boundaries. Hence, there is a possibility that the same effect can be obtained in $Sm_2Fe_{17}N_3$. Currently, we discovered that several elements such as Al, Ce, Ru, Mn, Ti and so on, are effective for improving the coercivity of $Sm_2Fe_{17}N_3$.sintered magnet besides Zn which has been ever known to increase the coercivity ⁴. In addition to the low oxygen powder metallurgy technique, we are trying to prepare $Sm_2Fe_{17}N_3$ nanoparticles by a low-oxygen thermal plasma synthesis. Nanoparticles are expected to improve not only coercivity but also sinterability. We have so far confirmed that this synthesis method is able to synthesize Sm-Co nanoparticles.

Reference

- 1) K. Takagi et al., J. Magn. Magn. Mater., 324 (2012) 2336.
- 2) R. Soda *et al.*, AIP Adv. **6** (2016) 115108.
- 3) K. Takagi et al., J. Magn. Magn. Mater., 506 (2020) 166811
- 4) W. Yamaguchi et al., J. Magn. Magn. Mater., 516 (2020) 167327

Synthesis of R-TM hard magnetic powder by thermal plasma

Yusuke Hirayama

(National Institute of Advanced Industrial Science and Technology)

[Background]

Not so many compounds with higher potentials than those of $Nd_2F_{14}B$ as a permanent magnet material have been reported^{1, 2)}. Among them, only compounds that have been successfully synthesized in bulk are Ti-less compounds with a Th Mn_{12} structure³⁾ or nitrides with a TbCu₇ structure⁴⁾. However, there are some difficulties to obtain an anisotropic fine powder of these compounds. It is well known that single-crystalline for an anisotropic magnet with higher remanence and fine particles for higher coercivity are necessary to exploit the potential of the compound as a permanent magnet. Here, the induction thermal plasma (ITP) process as a new process for further particle size refinement was focused on. For nanopowder fabrication, this process has the advantages of a high production rate, control over particle size, and an inherently contamination-free process. Moreover, it could be possible to obtain fine particles with stable and metastable phases by tuning the cooling rate. Attention should be paid to the handling of ultrafine metal particles which is highly reactive with oxygen and humidity in the air. Recently, we developed a low-oxygen ITP system (LO-ITP)⁵), which enables us to prepare ultrafine metal powder in the controlled low-oxygen atmosphere. This technique was applied to prepare single-crystal ultrafine R-Fe alloy powders, especially for R = Nd in this research, with stable and metastable phases.

[Experiment]

The mixed powder of Fe (Kojundo Chemical Lab. Co., Ltd., Japan) and Nd with the atomic ratio of Nd : Fe = 2 : 3 was used as a starting powder. A TP-40020NPS (JEOL Co., Ltd.) was used for the ITP process, and a TP-99010FDR (JEOL Co., Ltd.) was used as the powder feeding system. In the thermal plasma process, the conditions of a process pressure of 100 kPa and a feed rate of up to 0.3 g/min were used. Transmission electron microscopy (TEM) sample was prepared by focused ion beam (FEI, Scios), and the microstructure was observed by TEM (JEOL ltd., JEM-ARM200CF equipped with CEOS ASCOR corrector) using an accelerating voltage of 120 kV. The anisotropic powder samples were prepared in the external magnetic field of 9 T at 400 K.

[Result and discussion]

According to the XRD profile, Nd-Fe alloy particles with the stable Th_2Zn_{17} -type phase and the metastable $TbCu_7$ -type phase were selectively prepared by controlling the cooling rate of the ITP process. The single-crystal of particles was confirmed by HAADF-STEM. The fine particle size of less than 100 nm was obtained. From the numerical calculation, it was found that the alloying mechanism revealed that Nd and Fe nucleate and condense simultaneously in the liquid temperature range due to the formation of the alloy droplet during cooling. Both obtained powders could be aligned by the external magnetic field, indicating that obtained ultrafine powders by the LO-ITP process were anisotropic, which was confirmed by the XRD and magnetic measurement. Therefore, this process is a new promising way to achieve a new-generation anisotropic permanent magnet.

Reference

1) Y. Hirayama, Y.K. Takahashi, S. Hirosawa, K. Hono, Scr. Mater., 138, 62 (2017).

2) Y. Hirayama, Y.K. Takahashi, S. Hirosawa, K. Hono, Scr. Mater., 95, 70 (2015).

3) S. Suzuki, T. Kuno, K. Urushibata, K. Kobayashi, N. Sakuma, K. Washio, H. Kishimoto, A. Kato, A. Manabe, AIP Advances, 4, 117131 (2014).

4) S. Sakurada, A. Tsutai, T. Hirai, Y. Yanagida, M. Sahashi, S. Abe, T. Kaneko, J. Appl. Phys., 79, 4611 (1996).

5) Y. Hirayama, K. Suzuki, W. Yamaguchi, K. Takagi, Journal of Alloys and Compounds, 768, 608 (2018).

金属人工格子からスピントロニクスへ、そしてまた金属人工格子へ

高梨弘毅 (東北大学 金属材料研究所・スピントロニクス学術連携研究教育センター) Metallic superlattices revisited for spintronics

Koki Takanashi

(Institute for Materials Research / Center for Spintronics Research Network, Tohoku University)

はじめに

昨年度学会賞を受賞し、フェローにご推挙いただいたことは、大変光栄に思っている。学会賞の受賞題目 は「規則合金を中心としたスピントロニクス材料の先進的研究」であった。しかし、本講演では、自身の研 究を振り返りつつ、まず金属人工格子の研究からスピントロニクスの研究に至る歴史とその後のスピントロ ニクスの発展を俯瞰する。それから、スピントロニクスの新たな展開を支える材料として、筆者はあらため て金属人工格子に注目しており、その最近の成果について紹介したい。

金属人工格子からスピントロニクスへ

金属人工格子の研究は 1970 年代後半から始まった。(ちなみに筆者が金属人工格子の研究を始めたのは大 学院時代の 1982 年である。)その後、垂直磁気異方性の発見(1986 年)や巨大磁気抵抗効果(GMR)の発見 (1988 年)があり、1990 年頃に隆盛を迎えた。GMR の発見がスピントロニクスの起源となっていることは よく知られている。1990 年代は、GMR やトンネル磁気抵抗効果(TMR)に代表されるスピン依存伝導の研 究が盛んになるが、一方で磁性半導体の研究も進み、20世紀から21世紀へ変わる頃、それらの分野は統合 してスピントロニクスと呼ばれるようになった。2000 年代には、スピントロニクスの基礎概念としてスピン 流が注目されるようになり、スピンホール効果やスピンゼーベック効果などの新現象が続々と発見された。 我々のグループでは、大きな磁気異方性を有するL10型合金や高いスピン偏極率を有するホイスラー合金な どの規則合金に着目し、それらを用いたナノ構造素子でスピン注入磁化反転や自励発振、スピンホール効果、 膜面垂直通電型(CPP-)GMR などの研究を行ってきた¹⁾。

スピントロニクスから再び金属人工格子へ

最近10年くらいの傾向を見ると、スピントロニクスは新たな展開期を迎えていると思われる。スピン軌道 相互作用を活用するスピンオービトロニクス、反強磁性体のメリットを生かす反強磁性スピントロニクス、 熱との相関に着目するスピンカロリトロニクスなど、さまざまな分野がスピントロニクスから派生している。 この流れの中で、金属人工格子という材料はあらためて注目される。界面の集合体である金属人工格子は、 スピン軌道相互作用が人工的に増強された系と考えることができる。層間交換相互作用を利用すれば、変調 周期や結合強度を人工的に制御した反強磁性体を作製できる。また、金属人工格子の構造的な異方性に着目 すれば、電気伝導と熱伝導を独立に制御することができ、熱電変換の無次元性能指数 ZT の向上も期待できる。 以上のような観点から、我々は金属人工格子の研究に取り組んでおり、実際に Pd/Co/Pt 構造における垂直磁 気異方性とスピン軌道トルクとの相関性の観測²、Co/Cu-Ir/Co 構造における反強磁性交換結合とスピン軌道 トルクの観測³、Ni/Pt 人工格子における異常ネルンスト効果の増大の観測⁴などの成果を得ている。

謝辞

本講演後半に示す研究成果は、科学研究費基盤研究(S)「金属人工格子ルネサンス」5の援助によるもので、 共同研究者、連携研究者および研究協力者に感謝します。

参考文献

- 1) 総説として, 高梨ら, 機能材料, 38, 48 (2018).
- 2) Y. Lau et al., Intermag 2020 Digest, CB-06.
- 3) H. Masuda *et al.*, Phys. Rev. B **101**, 224413 (2020).
- 0). 4) T. Seki *et al.*, arXiv:2009.11006.
- 5) http://magmatelab.imr.tohoku.ac.jp/Framesetjpn.html
 - -76-

希土類磁石および磁性材料に関する研究: これから何をすべきか

広沢 哲

(国立研究開発法人物質·材料研究機構)

Research on rare earth permanent magnets and magnetic materials: What shall we do from now?

Satoshi Hirosawa

(National Institute for Materials Science)

はじめに

著者はこれまでにいくつかの希土類系磁性材料の研究に携わり、特に希土類磁石については、産学のキャ リアを通して多くの共同研究者に支えられつつ、約40年の長きに亘って研究開発に携わり続けている。本稿 では希土類磁石を中心として、研究の変遷とこれからの展望についての私見を述べる。ネオジム磁石の保磁 力発現機構の理解の変遷と今後の材料開発の方向、および、ナノコンポジット磁石や1-12系に代表される高 鉄濃度組成の希土類化合物を用いた磁石開発の変遷と今後の材料開発の方向について、元素戦略磁性材料研 究拠点(ESICMM)での基礎研究で得られた新しい知見を軸に議論する。

Nd-Fe-B 磁石の研究開発の変遷とこれから

保磁力メカニズム理解と研究開発指針の変遷および展望

Nd-Fe-B 異方性磁石は佐川眞人による発明と住友特殊金属(当時)による製品化の後、著者の本分野での 仕事は、磁気特性の改善の余地がどこにあるかを見出すための、システマティックな研究から始まった¹⁾。 著者らが作製した単結晶試料を用いた困難方向の磁化曲線は Yamada らによる結晶場係数の決定に用いられ、 R₂Fe₁₄B 化合物の磁性のシステマティックスが明快に説明された²⁾。最大の弱点である保磁力(H_{cl})の温度依 存性を理解するため、保磁力と異方性磁界($2\Delta E_A/Js$ を用いた。 ΔE_A は異方性エネルギー)、自発磁化間の関 係を実験的に整理し、当時は非強磁性とみなした粒界部分の厚み数 nm の層に磁壁がトラップされると考え たり³⁾、H_{cl} = c H_A - NMs の形に整理した場合の係数 c と N が温度に依存しないとして、H_{cl} と M_s、H_Aの温 度依存性の測定から、係数 c と N が結晶粒径や添加元素によるどのように変化するかを調べたりしたが⁴⁾、 電子顕微鏡などによる微細組織の解析が決定的に不足していたため、整理までにとどまった。

当初から今世紀始めまでは、著者らは主相粒子が厚さ数 nm の非強磁性の Nd リッチ粒界相によって被覆され、主相間の強磁性結合が遮断されていると考えていたので、保磁力機構は主相粒子表面の欠陥層から逆磁 区核が主相に侵入する過程に支配されると考えて⁵)、高性能化のためにはこの欠陥層の正体を突き止めて欠 陥の無い主相を実現することが重要と考えていた。しかし、NIMS の宝野らがアトムプローブによる Nd-Fe-B 磁石の組織解析技術を開発し、Nd-Fe-B 系微細結晶磁石 (2007 年から共同研究)の粒界組成、さらに、焼結 磁石についても粒界相の組成を明らかにし⁶、その磁性が室温以上 250℃程度までは強磁性であることが 2014 年までに、独立した三つの測定によって明確になった⁷⁻⁹)。また、原子解像度の組織解析により、材料内部の 主相表面には nm サイズの欠陥層は存在しないことも次第に明らかにされた^{10,11})。さらに、文部科学省委託 事業「元素戦略プロジェクト〈研究拠点形成型〉」の永久磁石分野の拠点、「元素戦略磁性材料研究拠点」

(ESICMM)(代表: 広沢)において、東京大学の宮下らが推進している原子スピンモデルを用いた有限温度の磁化反転過程の理論研究で熱揺らぎ効果の計算が進み、表面層では主相表面の希土類元素の磁気異方性が内部よりも大きく減衰することから、保磁力に影響を与えるためには、磁壁幅以上の厚みに亘って結晶表面層の希土類種を制御する必要があることも明らかになった¹²⁾。現在では、Nd-Fe-B 磁石の保磁力は、研削加工などで生じた構造欠陥で発生した逆磁区の磁壁が、磁壁幅程度の厚みを持つ結晶粒界相でピン止めされた状態から熱活性化過程で外れる過程によって支配されていると理解されている。今後の材料開発では、この粒界相の磁性(すなわち組成)と、界面近傍の主相表面の磁性(組成)の制御が中心的課題となろう。

希少希土類元素使用量削減のためのプロセス開発の変遷と展望

重希土類(Tb, Dy)を使って保磁力を高める手法は、当初から元素の希少性、および、それらがもたらす 磁化の低下という観点から、安易な解決策とみなされ、重希土類を使わない保磁力改善方法が模索されてい た。著者らは硼化物生成元素 Mo の添加で組織微細化による保磁力向上効果が得られ、焼結磁石で Dy の添加 量が削減できることを示したが¹²⁾、微細な結晶粒子が得られるストリップキャスト法が開発されて、添加元 素による磁化低下を伴う組織微細化手法の必要性はなくなった。微細な材料組織にしてから粒界組成の制御 により高保磁力化を狙う手法として、HDDR 磁石への低融点 Nd-Cu 合金を用いた浸透処理が、前述の共同研 究(産学連携型の元素戦略プロジェクト、2007-2011 年度)のなかで NIMS の Sepehri-Amin らによって見出 され¹³⁾、その後、熱間塑性加工磁石に低融点希土類合金を拡散浸透させて粒界近傍の組成を制御する手法と して継続的に進化している(例えば 14))。また、焼結磁石でも結晶粒界近傍の数 nm オーダーの局所的な元 素配置の制御が焦点になっている(例えば 15)。速度論も含めた多元系での熱力学的情報の蓄積が組織制御 の新たな指針を導く鍵となろう。

高 Fe 濃度化合物磁石の 研究開発の変遷とこれから

省希土類型の磁石材料はポスト Nd-Fe-B 磁石開発の重要な方向性であり、著者らは Fe₃B/Nd₂Fe₁₄B 系等方性 ナノコンポジット磁石の開発を進めた¹⁶⁾。同時期に、希土類-鉄族遷移金属間化合物で最も希土類量が少ない ThMn₁₂型(1-12型)に着目して Nd 系で開発を試みたが^{17,18)}、魅力的な性能を持つ材料にはできなかった。 ESICMM では、1-12型について理論計算で磁性を予測し、磁化の低下をもたらす Ti 等の安定化元素を抜いた 物質を NIMS のチームが薄膜プロセスで合成して、極めて高い性能限界を明確にした¹⁹⁾。低融点希土類合金 による粒界拡散手法が新しいアプローチであり、薄膜では 0.8T の保磁力が発現した²⁰⁾。薄膜合成時に B を 加えると明瞭な粒子間粒界相が形成され、1.2T の保磁力が発現した²¹⁾。安定化元素を含む合金では、相平衡 が変化して不要な化合物が生成するなどの困難があり、粒界相で主相を均一に囲む組織の生成には熱平衡に 関するより詳細な研究が必要である。多成分希土類磁石合金の熱平衡に関する研究は ESICMM が当初から地 道に続けている活動であり、これまでに状態図計算用データベースを蓄積している²²⁾。これをさらに拡充し、 相平衡に新たな可能性を見出すことが、1-12 型磁石の実現を目指す研究開発のひとつの方向であろう。

参考文献

- 1) S. Hirosawa, Y. Matsuura, H. Yamamoto, S. Fujimura, M. Sagawa, H. Yamauchi, J. Appl. Phys. 59, 873 (1986).
- 2) M. Yamada, H. Kato, H. Yamamoto, Y. Nakagawa, Phys. Rev. B 38, 620 (1988).
- 3) S. Hirosawa, K. Tokuhara, Y. Matsuura, et al., J. Magn. Magn. Mater. 61, 363 (1986).
- 4) M. Sagawa, S. Hirosawa, H. Yamamoto, S. Fujimura, Y. Matsuura, Jpn. J. Appl. Phys. 785 (1987).
- 5) H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo, T. Shima, K. Hono, Acta Mater. 60, 819 (2012).
- 6) D. Givord, M. Rossignol, V.M.T.S. Barthem, J. Magn. Magn. Mater. 258-259, 1 (2003).
- 7) Y. Murakami, T. Tanigaki, T.T. Sasaki et al., Acta Mater. 71, 370 (2014).
- 8) T. Kohashi, K. Motai, T. Nishiuchi, S. Hirosawa, Appl. Phys. Lett. 104, 232408 (2014).
- 9) T. Nakamura, A. Yasui, Y. Kotani et al., Appl. Phys. Lett. 105, 202404 (2014).
- 10) M. Itakura, N. Watanabe, M. Nishida, T. Daido, S. Matsumura, Jpn. J. Appl. Phys. 52, 050201 (2013).
- 11) T.T. Sasaki, T. Ohkubo, K. Hono, Acta Mater. 115, 256 (2016).
- 12) S. Hirosawa, S. Mino, H. Tomizawa, J. Appl. Phys. 69, 5844 (1991).
- 13) H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo, T. Nishiuchi, S. Hirosawa, K. Hono, Scr. Mater. 63, 1124 (2010).
- 14) J. Li, L. Liu, H. Sepehri-Amin et al., Acta Mater. 161, 171 (2018).
- 15) T.-H. Kim, T.T. Sasaki, T. Ohkubo, Y. Takada, A. Kato, Y. Kaneko, K. Hono, Acta Mater. 172 (2019) 139.
- 16) 著者らの研究開発のまとめは例えば、S. Hirosawa, Trans. Magn. Soc. Japan, 4, 101 (2004).
- 17) 例えば、特開平 6-20816
- 18) H. Sum, T. Tomida, S. Hirosawa, J. Appl. Phys. 81, 328 (1997).
- 19) Y. Hirayama, Y.K. Takahashi, S. Hirosawa, K. Hono, Scr. Mater. 95, 70 (2015); *ibid.* 138, 62 (2017).
- 20) D. Ogawa, X.D. Xu, Y.K. Takahashi, T. Ohkubo, S. Hirosawa, K. Hono, Scr. Mater. 164, 140 (2019).
- 21) H. Sepehri-Amin, Y. Tamazawa, M. Kambayashi, et al. Acta Mater. 194, 337 (2020).
- 22) 現在は ESICMM および、NIMS 磁石パートナーシップの参加者に対して状態図計算サービスを実施。

高周波磁気工学に関する研究

山口正洋 (東北大学 大学院工学研究科,未来科学技術共同研究センター) Research on RF Magnetics Masahiro Yamaguchi

(Graduate School of Engineering/ New Industry Creation Hatchery Center, Tohoku University)

1. 概要

著者は軟磁性体の高周波応用を拓く研究を行っている。高周波とは、交流では数百ヘルツ以上、電波で は数メガヘルツから数百メガヘルツの周波数のものをいうと記述した辞書がある¹⁾。法令では 3.5 kHz を超え る電磁波²⁾、あるいは 10 kHz 以上³⁾と定義されたものがある。すなわち学術的な定義はなく、高周波とは技 術分野や時代に拠って異なっている。パワーエレクトロニクス機器やスイッチング電源では 1 MHz は充分高 周波に属し、発熱の程度が指標であろう。通信用薄膜インダクタ・トランスでは 1 GHz 付近から上が高周波 であり、強磁性共鳴の寄与の程度が指標であろう。今後もエネルギー利用および通信技術の社会動向との関 係が深いと思われる。筆者が多くの共同研究者のお陰で推進できた高周波磁気工学のテーマには、磁気増幅 器評価法、RF 集積化薄膜インダクタ、GHz 帯薄膜透磁率計、IC チップレベルのデジタルノイズ低減法、パ ワエレ機器と無線機との電磁干渉抑制法、および関連の IEC 国際規格化活動などがある。本講演では、この うち本格的な 5G 時代に向けた無線機とパワエレ機器との電磁干渉抑制法^{4,6}について最近の取り組みを紹介 する。今後の端的な目標は低ノイズドローンによる空の産業革命への貢献である。

2. 不要電波の広帯域化に対応した IC チップレベルノイズ抑制技術

移動通信システムでは SHF 帯(3~30 GHz)に及ぶ高い周波数帯の電波利用が見込まれる一方で、SiC や GaN 等の高速パワーデバイスとそれを用いたインバータ機器の普及による外来ノイズの増加が懸念されて いる。このため、段階的に 700 MHz から 6 GHz⁴、次に 30GHz までの周波数において、受信部での不要電波 の影響を抑制する技術を開発している。その要素技術としての透磁率測定法は IEC 規格化の見込み^つである。

フリップチップ実装方式の IC チップにおいて、IC ダイとそのインタポーザ(微小なプリント配線板)との間隙に、Ba-Zn 系 Y 型六方晶フェライト(Ba₂Zn₂Fe₁₂O₂₂, µ_r" = 1.9 @ FMR=2.4 GHz, ω・µ_r"=23.8 @ 6 GHz, 以下同様)、Ba-CoZn 系 Z 型六方晶フェライト(Ba₃Co_{1.25}Zn_{0.75}Fe₂₄O₄₁, 0.9, 2.1 GHz, 26.7)を選び、それぞれの 微粒子をエポキシ系樹脂と約 50 vol%で混合し、コンポジットシートを得た。また、Ni-Cu-Zn スピネルフェ ライト(10.0, 1.0 GHz, 60.3)の焼結体も試した。六方晶フェライト微粒子の粒径はボールミル粉砕により 0.7 ~3 µm とした。シート厚はいずれも約 50 µm である。近傍磁界プローブ(Langer XF-R 3-1)を IC チップパ ッケージ上に載せ、IC チップから放射される放射ノイズの平面成分を測定した結果、Y 型六方晶フェライトで 4.8 GHz 帯において 8.7 dB のノイズ低減効果が得られ、これは LTE 通信において 9.7 dB もの受信感度改善効果に対応する。現在、30 GHz までを目標とした高感度の透磁率・誘電率測定法を開発中で、これを通して 5G 端末等を搭載した低ノイズドローンの開発とその無線性能確保のための研究開発に貢献したい。

謝辞 2項で報告した研究は、神戸大学(永田真教授ら)、東北大学(石山和志教授、畠山賢介氏、杉本諭 教授、薮上信教授、鳥光慶一教授ら)、東北学院大学(石上忍教授ら)、昭和飛行機(沖米田也恭之氏ら)、ト ーキン(近藤幸一氏ら)、UTI(中村篤氏ら)およびKDDI(杉田博司氏ら)との共同研究であり、深謝します。 本研究の一部は総務省電波資源拡大のための研究開発(JPJ000254)によって実施した成果を含む。

参考文献

 三省堂 大辞林 第三版, 2006. 2) 有線電気通信設備令 第一条 九(昭和二十八年政令第百三十一号), 1953.
 3) 電波法 第百条 一 二(昭和二十五年法律第百三十一号), 1950. 4) 山口正洋, 他, 電子情報通信学会論文誌 B J101-B(3), 204 – 211, 2018. 5) M. Yamaguchi, et al, Proc. EMC Compo 2019, 231 – 233, 2019. 6) M. Aoi, et al, IEEE EMC SI&PI, W1-WE-PM-B-3, 2020. 7) IEC DTR 63307, 2020.

人工磁気格子の基礎と応用に関する研究

井 上 光 輝 (国立高等専門学校機構、豊橋技術科学大学) Fundamentals and applications of artificial magnetic lattices Mitsuteru INOUE

(National Institute of Technology, Toyohashi University of Technology)

はじめに

サブミクロンからナノスケールの磁気的な周期構造媒体を伝搬する光(電磁 波)やスピン波は、位相干渉によりバンドギャップなどのユニークな性質と、連 続体にはない磁気的機能を併せ持つ。我々は、光(電磁波)の場合は磁性フォト ニック結晶(Magnetophotonic crystal: MPC)⁽¹⁾、スピン波の場合はマグノニッ ク結晶(Magnonic crystal: MC)⁽²⁾と称するこれら磁気的不連続媒体を「人工磁 気格子(Artificial Magnetic Lattice, AML)」として、その基礎的性質とデバ イス・システムへの応用を調べてきた。本稿では、その結果の一部を紹介する。

人工磁気格子

可視域で透光性に優れる希土類鉄ガーネット(例えば Bi 置換 YIG, Bi:YIG)は、 ファラデー回転角 & も大きく、光磁気デバイスなどでよく利用される基盤材料であ る。Fig. 1 (a)に示すように、100 nm 厚程度の Bi:YIG 膜を Si0₂/Ta₂0₅誘電体ミラー でサンドイッチした AML では、Fig. 2 に示すように、バンドギャップ中の 700 nm 付近の波長で光局在化により透過率・ファラデー回転角が増大する。この光局在波 長は、構成材料の厚さを制御することで比較的広い範囲でシフトできるので、利用 する光波長に応じた材料設計ができる。一方、Fig. 1 (b)はSi 基盤に周期的な穴を 形成し、その中央に Bi:YIG ロッドを挿入したものであるが、このような構造の AML は光導波路サーキュレータ機能をもつ⁽³⁾。これらの機能は、磁性体中の固有モード である左右円偏波光の位相干渉により発現するので、構造の工夫や高次元化によっ て、連続体では困難な機能実現を図ることができる。

Fig. 3 は、光位相干渉像であるホログラムをアモルファス TbFe 垂直磁化膜に熱磁気書き込みで記録した例である。この像は、磁化分布に顕著な空間的周期性はないが、位相情報をもつ AML と考えることができる。実際、後述するように、磁気ホログラムの原像に立体を用いると、磁気光学的な光回折により空間に立体像の再生ができる。

上述した光で発現する機能は、磁性体固有の波動であるスピン波についても発現 する。これは1980年代には既に知られていて⁽⁴⁾、周期的な溝をもつYIG媒体を伝搬 する静磁波の伝送フィルタが示されている。微細加工技術の進展に伴って、数 nm スケールの構造が得られるようになり、波長の短いスピン波を制御して後述するス ピン波ロジック回路などを実現しようとする試みがなされてきた。

周期的な溝構造をもつ AML では、端面に発生する磁荷によりローカルな内部磁場 が変調を受ける。磁化方位によって、したがって伝搬するスピン波のモードによっ て効果が異なるので、われわれはこの難点の少ないプレーナ構造をもつ AML を調べ てきた。Fig. 4 はその一例として、YIG 単結晶基盤の上に Cu 膜を周期的に形成した スピン波の 1D AML である⁽⁶⁾。膜面に垂直に磁場を印加することで、前進体積モード のスピン波が伝搬する。Fig. 5 に示すように、Cu 周期構造を有する AML では 1.8 GHz 付近にバンドギャップが発現しており、この構造を用いることでスピン波の流れ制 御ができることを示唆する。

応用

われわれは、上述した AML の機能を利用した磁気デイバス・システムへの応 用を試みてきた。光を制御する AML では、空間光の振幅や位相を高速に変調で きる空間光変調器(MOSLM)の実現を目指したが、単結晶磁性ガーネットを用 いたものでは Fig. 6 に示すような試作品が得られているものの、AML では駆動



Fig. 1 Examples of the (a) 1D and (b) 2D MPCs.



Fig. 2 Wavelength spectra of transmissivity (above) and Faraday rotation angle (below) of the 1D-MPC.



Fig. 3 Magnetic hologram written in an amorphous TbFe thin film with perpendicular magnetization.

の難しさもあり、完全なものは得られていない。

個々のピクセルを駆動する MOSLM とは別に、極めて多くのピクセルを熱磁気書き込みで制御して 立体画像を空間に表示するシステムについては、ラ ボベースのものが得られている。Fig. 7 はアモルフ ァス TbFe 膜を用いた例であるが、これを AML にす ると4 桁近い光効率の向上を確認した⁶。

また、原理的にはよく似ているが、体積磁気ホロ グラムを用いた情報記録システムについても調べ、 ピクセル数は少ないもののエラーゼロの記録再生や、 AML 構造を用いることで情報再生時の回折効率が 7 倍以上向上することが分かっている⁽⁷⁾。

スピン波 AML については、スピン波ロジック回路の実現を目指している。Fig. 8 は単結晶 YIG 導波路を用いた 4 ポートロジックゲートである⁽⁸⁾。この素子では、Port 3 と記した Control ラインの信号によって、Port 1, Port 2 の信号間の AND あるいは OR 計

算ができる。現在、この原理に基づき、2D構造を有する AML でスピン波を導波 するスピン波ロジック回路や、これに非線型位相シフトを組み合わせた位相制御 型の素子形成を試みている。

この他、AMLの機能を用いた高出力Qスイッチ小型レーザ素子⁽⁹⁾や、AML構造体の中でのプラズモンとの相互作用によるセンシング素子への応用などについても進めており、その結果については別の機会に報告する予定である。

謝辞

共同して研究を行ってきた内田裕久氏、林攀梅氏、中村雄一氏、後藤太一 氏(豊橋技科大)、高木宏幸氏(現 Panasonic)、A. Baryshev 氏、豊橋技科 大磁性研究室博士研究員諸氏、卒業生・学生諸氏に深謝する。本研究の一部 は、JSPS 科研費(基盤(S) 17106004, (A) 23246060, (A) 23246061, (S) 26220902, (A) 26249041, (A) 15H0240, (A) 19H00765)、JST PRESTO(形 とはたらき,素材・デバイス・システム融合による革新的ナノエレクトロニ クスの創成)、CREST(高性能情報処理技術)、MEXT キーテク事業(ナノテ ク・材料)などを受け実施したものである。

参考文献

- M. Inoue et al. (eds.), "Magnetophotonic crystals: From Theory to Applications," Springer Series in Mat., 2013.
- (2) 岩場雅司,藤原早希,関口康爾,日本磁気学会論文特集号, Vol. 4, pp.18-22, 2020.
- (3) A. Wang and S. Fan, Opt. Lett., Vol. 30, pp.1989-1991, 2005.
- (4) M. S. Sodha and N. C. Srivastava, "Microwave Propagation in Ferrimagnetics," Plenum Press, 1981.
- (5) N. Kanazawa, T. Goto, M. Inoue, et al., Sci. Rep. 6, 30268, 20116.
- (6) N. Nakamura, H. Takagi, M. Inoue et al., Appl. Phys. Lett., 108, 022404, 2016.
- (7) R. Isogai, Y. Nakamura, M. Inoue et al., Opt. Express, 24, 522, 2016.
- (8) N. Kanazawa, T. Goto, M. Inoue et al., Sci. Rep. 7, 7898, 2017.
- (9) R. Morimoto, T. Goto, M. Inoue et al., Sci. Rep. 7, 15398, 2017.





Fig. 4 1D-AML for spin waves composed of periodic Cu stripes formed on YIG single crystal.



Fig. 5 Transmission spectrum of the volume forward spin wave travelling in the 1D-AML in Fig. 4.



Fig. 6 MOSLM with Fe garnet single crystal film (FDK).



Fig. 7 Holographic 3D image reconstructed with TbFe amorphous thin film.



2 mm

Fig. 8 Four-port spin wave logic gate with YIG single crystal waveguide.

Magnetic techniques for diagnosis and treatment of breast cancer

Masaki Sekino¹, Akihiro Kuwahata¹, Mutsuko Hatano², and Moriaki Kusakabe³

¹ Graduate School of Engineering, the University of Tokyo, Tokyo 113-8656, Japan

² School of Engineering, Tokyo Institute of Technology, Tokyo 152-8552, Japan

³ Graduate School of Agricultural and Life Sciences, the University of Tokyo, Tokyo 113-8657, Japan

In the treatment of cancer, it is important to identify the lymph nodes involved in metastasis. By administering magnetic nanoparticles to the lymphatic system and detecting accumulation in downstream lymph nodes with a magnetic sensor, lymph nodes involved in metastasis can be identified non-invasively and objectively. To realize this new technique, we developed a handheld device consisting of a permanent magnet and a Hall sensor¹). Previous researches on magnetic sensors were mainly based on the approach of detecting small amounts of magnetic nanoparticles using SQUIDs. Those devices were not very suitable for clinical use because the devices reacted to other surrounding magnetic materials due to their high sensitivities. We devised a new mechanism for strongly magnetizing nanoparticles with a permanent magnet and detecting the magnetic field with a small Hall sensor, and developed a prototype handheld device for detecting magnetic nanoparticles. With this mechanism, the influence of external devices was sufficiently reduced and clinical application was realized. Since the power consumption was smaller than that of existing devices, the entire drive circuit can be stored in the grip, making it a compact device. We also reported a technique for quantifying the accumulation of magnetic nanoparticles administered to living organisms by non-invasive imaging using MRI. Animal experiments showed the dose and time dependence of the accumulation. We ensured the safety of the developed magnetic probe by complying with the standards for electrical safety and risk management of medical devices, and proceeded with clinical research. In particular, a multicenter clinical trial was conducted on 200 breast cancer patients, and the new method using magnetic sensors and magnetic nanoparticles is non-inferior in terms of identification rate to the standard RI method². In addition, in order to expand the application, clinical trials were conducted in 20 and 4 cases of oral cancer and uterine cancer, respectively, and successful results were obtained such as the ability to identify sentinel lymph nodes in all cases. Furthermore, we also developed a prototype device equipped with a diamond quantum magnetic sensor³⁾. Due to the high sensitivity, the sensor could be operated with weak magnetic fields generated from a coil.

Reference

- M. Sekino, A. Kuwahata, T. Ookubo, M. Shiozawa, K. Ohashi, M. Kaneko, I. Saito, Y. Inoue, H. Ohsaki, H. Takei, and M. Kusakabe, Sci. Rep., 8 (2018) 1195.
- 2) K. Taruno, T. Kurita, A. Kuwahata, K. Yanagihara, K. Enokido, Y. Katayose, S. Nakamura, H. Takei, M. Sekino, and M. Kusakabe, J. Surg. Oncol., **120** (2019) 1391.
- A. Kuwahata, T. Kitaizumi, K. Saichi, T. Sato, R. Igarashi, T. Ohshima, Y. Masuyama, T. Iwasaki, M. Hatano, F. Jelezko, M. Kusakabe, T. Yatsui, and M. Sekino, Sci. Rep., 10 (2020) 2483.



Fig. 1. (a) Handheld magnetic probe for sentinel lymph node biopsy. (b) Extracted lymph node containing magnetic nanoparticles and blue dye. (c) Magnetic probe equipped with a diamond quantum sensor.

Highly sensitive diamond quantum magnetometer

with large sensor volume

Yuta Masuyama

(National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology)

Nitrogen-vacancy (NV) centers in diamond are promising solid-state quantum magnetometer working at room temperature. The quantum magnetometer is a magnetometer that measures the magnetic field by using the energy change of qubits¹). By constructing an appropriate measurement system, it is possible to achieve highly sensitive sensing with measurement noise reduced to the quantum limit. Thanks to the property of the diamond that is a wide bandgap semiconductor, the quantum coherence of the qubits maintains under a wide range of temperatures and pressures, including under room temperature and atmospheric pressure. This characteristic enables us to use the sensor for various applications including operating in vivo and in extreme environments.

One of the important steps towards the practical use of the diamond quantum magnetometer is to improve the sensitivity. Because the sensitivity of the diamond quantum magnetometer increases as the number of NV centers increases²), a large sensor volume is required to achieve high sensitivity. We have developed a technology of the diamond quantum magnetometer to achieve high sensitivity by improving the control and readout of the qubit with a large sensor volume, such as enhancing a microwave and an effective photoexcitation method³). In parallel to these improvements, we are also improving the quality of the diamond quantum magnetometer such as the density and coherence time of the NV center. Our institute has a technology of electron irradiation with high temperature and ion implantation. We constructed an evaluation system suitable for the material evaluation of the diamond quantum magnetometer, and are researching the relationship between NV center generation efficiency and coherence time by the electron beam irradiation.

Another important point towards the practical use of the diamond quantum magnetometer is noise rejection from the signal. The diamond quantum magnetometer potentially achieves highly sensitive magnetic field sensing without any magnetic shield because the Zeeman shift of the qubit even occurs under a strong magnetic field. To realize this, we constructed a gradiometer system that cancels environmental magnetic field noise for DC magnetic field sensing, and a dynamical decoupling system that works as a noise rejection filter for AC magnetic field sensing.

Reference

- 1) C. L. Degen et al., Rev. Mod. Phys. 89, 035002 (2017)
- 2) J. M. Taylor et al., Nat. Phys. 4, 810 (2008)
- 3) Y. Masuyama et al., Rev. Sci. Instrum. 89, 125007 (2018)

Development of a compact ultra-low field MRI system

Daisuke Oyama¹, Naohiro Tsuyuguchi² ¹Applied Electronics Laboratory, Kanazawa Institute of Technology ² Faculty of Medicine, Kindai University

Magnetic resonance imaging (MRI) around geomagnetic field strength, also referred to as ultra-low field MRI (ULF-MRI), has been expected to be the new application of Biomagnetics. Comparing to conventional MRIs that use a much stronger magnetic field, the benefits of the ULF-MRI include the low cost of the system, more open geometry, decreased susceptibility to artifacts, increased relaxation time contrast, and being combined with biomagnetic "functional" measurements, e.g., magnetoencephalography (MEG).

Existing studies have mainly dealt with developing ULF-MRI systems for human body or head. In contrast, the author's group has conducted extensive studies on measuring biomagnetic signal from small-animals, known as small-animal MEG systems. Therefore, we have been developing a compact ULF-MRI system for small-animals.

Our compact ULF-MRI system consists of a set of five pairs of coils: for a polarizing field, a measurement field, and three dimensional gradient fields¹). These coil sets were designed and fabricated to be the desktop size for installation inside a magnetically shielded box. The coil pairs for measurement and gradient fields were optimized by using a target field method, and sufficient area of homogeneity has been obtained for ultra-low field MRI measurements.

In our research, two types of magnetic sensors have been tested to detect the magnetic resonance signal. The first sensor is a superconducting quantum interference device (SQUID) sensor that has extremely high sensitivity in the ultra-low magnetic fields and is commonly used for ULF-MRI measurements. We demonstrated ULF-MRI measurements of water phantoms and a rat head at 33 μ T using the SQUID sensor²).

However, there are some difficulties with using SQUIDs because of their fragility against larger magnetic fields such as a polarization pulse and necessity of cooling with a cryogen, like liquid nitrogen or helium. We also developed a novel detection unit composed of an induction coil that has been used to detect magnetic resonance signal in a higher magnetic field so far. The induction coil does not need a cryogen and is more robust and easier to handle than SQUIDs. We demonstrated ULF-MRI measurement³⁾ and T₁ relaxation time measurement of water and aqueous solutions at 70 μ T, as shown in Figs. 1 and 2. The results show the potential of using induction coil detection to realize a compact ULF-MRI system.

In the presentation, we would like to discuss these two detection techniques for ULF-MRI applications.

References

- 1) J. Hatta et al., IEEE Tras. Appl. Supercond., 21, 526-529, 2011.
- 2) D. Oyama et al., 15th Inter. Supercond. Electr. Conf., 15721070, 2016.
- 3) D. Oyama et al., IEEE Trans. Magn., 53, 5100504, 2017.



Fig. 1 Magnetic resonance image of water phantoms taken by the detection coil at 70 μ T.



Fig. 2 Measured relaxation curves and calculated relaxation time of $NiCl_2$ aqueous solution phantoms.

Application of EEG/MEG analytical methods to magnetic nanoparticle imaging

Teruyoshi Sasayama, Naoki Okamura, and Takashi Yoshida Department of Electrical Engineering, Kyushu University, Fukuoka 819-0395, Japan

Imagining of magnetic nanoparticles (MNPs) is expected to be a new biomedical technique for imaging of targets, e.g. cancer cells¹). We previously propose an MNP imaging method that uses multiple magnetic sensors; this method is referred to as "magnetic nanoparticle tomography" (MNT)^{2,3}). We used multiple pickup coils, or magnetic sensors, to achieve imaging in accordance with signal processing techniques used in electroencephalography (EEG) and magnetoencephalography (MEG). In this paper, we apply the techniques and compare the imaging performances.

Figure 1 shows the experimental setup. The Resovist MNP sample containing 100 µgFe was arranged in the AC magnetic field generated using an excitation coil. The third harmonic magnetic field from MNPs were detected using 16 pickup coils. To improve the sensitivity, the cancelation circuit for the fundamental magnetic field was employed. Then, the two-dimensional concentration map of the MNP sample was obtained by solving an inverse problem. In this paper, we chosen non-negative least squares (NNLS) method and minimum variance spatial filter (MV-SF). The former one is often used in magnetic particle imaging (MPI) analytical methods¹⁻³, whereas the latter one is often used in EEG/MEG analytical methods⁴.

Figure 2 shows the result of the reconstructed map when the MNP sample was set at (x, y, z) = (0, 0, -25 mm). As shown in Fig. 2(a), a sharp signal peak is observed in the vicinity of the sample position using NNLS method, however, several artifacts also appear. In contrast, as shown in Fig. 2(b), the signal peak is observed in the vicinity of the position and the artifacts do not appear using MV-SF. The result indicates that EEG/MEG analytical methods such as MV-SF is useful for estimating MNP sample position.

Acknowledgments

setup.

This work was supported in part by the Japan Society for the Promotion of Science (JSPS) Grant-in-Aid for Young Scientists under Grant JP19K14996 and in part by a research grant from The Mazda Foundation.

Reference

- 1) T. Knopp and T. M. Buzug, Magnetic Particle Imaging—An Introduction to Imaging Principles and Scanner Instrumentation Heidelberg, Berlin, Germany: Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2012.
- 2) T. Sasayama, T. Yoshida, and K. Enpuku, J. Magn. Magn. Mater. 505 (2020) 166765.
- 3) T. Sasayama, N. Okamura, and T. Yoshida, IEEE Trans. Magn. In press. DOI: 10.1109/TMAG.2020.3014375.
- 4) K. Sekihara and S. S. Nagarajan, Adaptive Spatial Filters for Electromagnetic Brain Imaging. New York, NY, USA: Springer-Verlag, 2008.



(a) NNLS and (b) MV-SF

Development of heating element and techniques for detecting its temperature and position for hyperthermia

Loi Tonthat¹, Kazutaka Mitobe², Shin Yabukami¹ ¹ Graduate School of Engineering, Tohoku University, Sendai 980-8579, Japan ² Graduate School of Engineering Science, Akita University, Akita 010-8502, Japan

Magnetic hyperthermia is a promising cancer therapy gaining great interest in recent years with less invasive than surgical therapy and fewer side effects compared to chemotherapy. This therapy induces cell death within the therapeutic temperature range of 40–45°C utilizing heat generation from magnetic particles injected into tumor subjected to a high frequency magnetic field. To make this therapy feasible in clinical settings, in addition to the magnetic particles, important elements include techniques for detecting the temperature and position of magnetic particles in determining the effectiveness of therapeutic heating. Among heating elements, nanoparticles have been gaining more attention due to their potential as diagnostic and therapeutic agents. Besides, self-controlled heating elements with low Curie point have been studied due to the fact that they are capable of avoiding overheating and damaging of the surrounding healthy tissue. In previous studies¹⁻²⁾, we developed thermosensitive magnetic micro/nanoparticles with high heating efficiency for tumor treatment and considerable permeability change around Curie point for temperature and position monitoring by using the nanoparticles to fill the gaps between microsize ferromagnetic implants with low Curie temperature (FILCT) (Fig. 1). Thereafter, by utilizing the permeability of FILCT that varies around its Curie point resulting in the change in the magnetic field around it, we also developed a wireless temperature measurement method to monitor the temperature of treated areas using pickup coils (Fig. 1).

Currently, noninvasive methods for sensing the magnetic particles in vivo are magnetic resonance imaging, positron emission tomography, and magnetic particle imaging. However, they are either costly, complex, time-consuming, requires expertise or a combination of these disadvantages. Taking the advantage of the fact that the induced voltage in pickup coil depends on the position of magnetic particles, we also developed a simple, rapid, low cost and automated localization system using three pickup coils symmetrically installed inside drive coil³). To localize the implant, the magnetic field supply and detection unit of drive coil and pickup coils is coarsely scanned over the whole existence possibility area of the implant and then moved to a position close to the implant until there is no difference in pickup voltages (Fig. 1). Using the developed system, the implant could be automatically localized with accuracy below 1 mm. Future studies are needed to extend the detectable distance for deeper tumor by investigating the optimal micro/nanoparticles and pickup coil as well as investigate in vivo how distribution of the implant in affected part affects the accuracy of the proposed method.

References

- 1) Loi Tonthat et al., IEEE Trans. Magn., 54 (7), 5400506 (2018).
- 2) Loi Tonthat et al., IEEE Trans. Magn., 54 (6), 5400104 (2018).
- 3) Loi Tonthat et al., IEEE Trans. Magn., doi: 10.1109/TMAG.2020.3008490 (early access).



Fig. 1 Heating elements (microsize ferromagnetic implant with low Curie temperature and magnetite nanoparticles) (left), the concepts of wireless temperature measurement method (middle) and localization method (right) for the implant using the voltages induced in pickup coils around its Curie point.

生体磁場計測に向けた低ノイズ TMR 磁気センサの開発

藤原耕輔¹、大兼幹彦²、熊谷静似¹、有本直³、安藤康夫^{1,2} (¹スピンセンシングファクトリー(株)、²東北大、³コニカミノルタ(株)) Development of low-noise TMR magnetic sensor for bio-magnetic field measurement K. Fujiwara¹, M. Oogane², S. Kumagai¹, T. Arimoto³, Y. Ando^{1,2} (¹Spin Sensing Factory Corp., ²Tohoku univ., ³KONICA MINOLTA INC.)

はじめに

強磁性トンネル接合 (Magnetic Tunnel Junction: MTJ) を用いたトンネル磁気抵抗 (Tunnel Magneto-Resistance: TMR) センサは、室温動作する小型・低消費電力の磁気センサである。近年の TMR センサの高感度化により、人体の電気的活動に起因する生体磁場の室温下での計測に期待が高まっている。我々はこれまでに TMR センサを用いた心臓磁場(心磁図: MCG)や脳磁場(脳磁図: MEG)の計測を報告してきた¹⁾。一方で、TMR センサのもう一つの特徴である、広い磁場ダイナミックレンジを利用したウェアラブル・磁気シールドルームレスの生体磁場計測の実現には、TMR センサ自身のノイズ低減・シグナル向上と、環境ノイズのキャンセリング技術の確立が必要である。本講演では、TMR センサのノイズ・シグナル改善のための要素技術検討と、二つの TMR センサを用いた環境ノイズキャンセリングの検討結果について報告する。

実験方法と実験結果

TMR センサの作製に用いた MTJ 多層膜は超高真空スパッタリング装置を用いて成膜を行った。MTJ 膜は 絶縁層として MgO 層を用い、低ノイズ化のためフリー層に CoFeSiB/ Ru/ CoFeSiB の三層構造を用いた。 また、多数の MTJ を用いてアレイを形成することで、低周波数領域での大幅なノイズの低減を実現している。 加えて、MTJ アレイの近傍にフラックスコンセントレータと呼ばれる磁束の収束構造を配置することで、シ グナルを大幅に向上させた。以上、作製した TMR センサの磁場分解能は約 10 pT/Hz^{1/2}(@1 Hz)であった。

環境ノイズのキャンセリングを検討するため、二台の上記 TMR センサを作製し、50 mm 離して配置した。 環境ノイズは発生源が遠方にあると考えられるため、

それぞれのセンサ信号の差をとることで低減すること ができる。一方、計測の対象である生体磁場の場合、 人体を片方のセンサの近傍に配置しておくことで片方 のセンサのみが強く信号を出力するため、二台のセン サ信号の差には生体磁場の情報のみが残ることとなる (グラジオメータ)。Fig.1 に通常の会議室の環境ノイ ズ低減の検討を行った結果を示す。二台の Ch1・Ch2 の TMR センサ信号には、空調が原因であると考えられ る数 Hz、約1 nT の環境ノイズが観測されたが、それ ぞれのセンサ信号の差をとることでこのノイズ信号を 大幅に低減することができた。この低減後の環境ノイ ズを含んだ磁場分解能は約 40 pT/Hz¹²(@1 Hz)であり、 シールドルームを用いない通常の環境下で、心臓の脈 拍に伴う MCG の R 波信号 (数+ pT)を数十秒の計測 で観測することが十分に可能であると考えられる。

この研究の一部は、科学技術振興機構(JST)の S-イノベプログラムの支援によって行われた。

<u>参考文献</u>

1) K. Fujiwara et al., Appl. Phys. Express 11, 023001 (2018).



Fig.1 Output waveform of each channel of the TMR sensor.

シールドルーム不要の TMR センサアレイ心磁計測システム

中村威信,加藤静一,片岡誠,市村翔,益田征典,湯澤雅樹,森安嘉貴,岡武茂樹*,安藤康夫** (旭化成エレクトロニクス株式会社,*旭化成株式会社,**東北大学)

An MCG measurement system using TMR sensor array without an MSR

T.Nakamura, S.Kato, M.Kataoka, K.Ichimura, M.Masuda, M.Yuzawa, Y.Moriyasu, S.Okatake*, Y.Ando** (Asahi Kasei Microdevices Corp., *Asahi Kasei Corp., ** Tohoku University, Japan)

心臓の電気的活動として生じる磁場(心磁)の計測は、環境ノイズを低減するためにシールドルーム(MSR) 内で高感度な磁気センサを利用して行うのが一般的である。しかしながら、シールドルームは、大きい、重 い、価格が高いという課題があった。

我々は、一昨年提案した、高感度・高分解能かつ線形性が極めて優れているクローズドループ型のTMR センサデバイス¹⁾を多数採用することで、高精度な信号空間分離法(Signal Space Separation method)²⁾を適用 可能であり、信号処理のみによる環境磁場キャンセルにより、シールドルーム不要の心磁計測実現の可能性 を見出した。

そこで、上述の TMR センサデバイスを 96 個用意し、環境磁場を含めて 3 軸方向の磁場を計測でき、かつ、 人の胸部を覆うように配置したセンサアレイと専用の計測システムを作製した。

このセンサアレイ計測システムを用いて、オフィスビル内のシールドルームのない実験室において、環境 磁場を観測し、信号空間分離処理による環境磁場キャンセル性能を確認したものが Fig.1 である。実験室にお ける環境磁場は、20Hz、50Hz などに 1nT 以上の雑音が存在した (Fig.1(a))。この環境磁場計測結果に対して、 信号空間分離処理を行うと、それらの雑音は三重シールドルーム相当の低減ができた (Fig.1(b))。

我々はさらに同環境磁場下において、40代男性の心磁計測を実施した※。信号空間分離処理を適用後、50Hz ノッチフィルタ、ローパスフィルタ(Fc:100Hz)、及び、心電波形と同期した 60 拍分のデータを積算処理し たところ、左胸部近傍に置かれたセンサデバイスでの計測結果は Fig.2 のようであった。このセンサデバイス における R 波のピーク値は約 30pT、ノイズは 3pTrms であった。これにより、シールドルームが不要となり、 SQUID のように液体 He を必要としない室温動作の TMR センサデバイスで、安価な心磁計測装置の実現可能 性を実証した。

(※本研究における人の心磁計測実験は、旭化成内研究倫理審査会承認済み。)

<u>謝辞</u>

このシステム開発におきましては、スピンセンシングファクトリー株式会社より TMR センサをご供給頂いたことに深く感謝いたします。

参考文献

1) M.Masuda et al., 第 42 回日本磁気学会学術講演会概要集 13pA-2(2018)







Fig.1 Shield effect of environmental magnetic field noise.

Fig.2 MCG measurement result.

低 SNR 時における心磁図を用いたノイズ除去法の前処理の検討

岩井守生,三浦克哉,安倍正人,藤岡豊太,小林宏一郎 (岩手大学理工学部システム創成工学科)

Consideration of preprocessing of noise reduction method using ICA at low SNR.

M. Iwai, K. Miura, M. Abe, T. Fujioka, K. Kobayashi

(1) Department of System Innovation Engineering, Iwate University

<u>はじめに</u>

心磁図は、心疾患の診断に有効であり、近年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、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.その ため現在多くの場合、独立成分分析(Independent Component Analysis:ICA)¹⁾を用いたノイズ除去が行われてい るが、心磁界成分に比べて磁気ノイズが非常に大きい場合、信号分離の妨げとなりノイズ除去が困難になる. そこで本研究では、適応フィルタ³⁾を用いて定常ノイズを除去したデータに対し ICA を行うことで、低 SNR 下における心磁図のノイズ除去精度の向上を目指しシミュレーションによる検討を行った.

提案方法

任意の周波数成分 f_n (環境磁気データに多く含まれる 50Hz 成分,およびその高調波)の正弦波信号を参照 信号としてフィルタ入力に用い,出力信号に存在する fn の正弦波信号のみを推定する.適応フィルタにより 推定された fn の正弦波信号を計測データから減算することによって,特定の周波数成分のみを除去する方法 である.

<u>シミュレーション結果</u>

本研究では3つのノイズ除去法[ICA,従来法(帯域通過フィルタ³⁾+帯域除去フィルタ³⁾+ICA),提案法 (適応フィルタ+ICA)]をシミュレーションにて比較・検討した.Fig.1に3つのノイズ除去法のSN比0,-10, -20,-30,-40[dB]のシミュレーションデータにおけるノイズ除去結果の比較を示す.ノイズが付加される前 のデータとの相関で評価しており,他の2つの方法と比較して提案法はほぼすべてのSN比帯で従来法より も高いノイズ除去精度を示した.特に低SNRになるほどその差は顕著となった(ICA:0.18,従来法:0.24, 提案法0.66).Fig.2にSN比-40dBのシミュレーションデータを用いた場合のノイズ除去結果を示す.Fig.2(a) に-40dBのシミュレーションデータ,(b)に提案方法によるノイズ除去後の波形を示す.図示している波形は 最もノイズ除去精度が高かった結果であり,相関係数は0.96である.図からもわかる通りSN比を大幅に改 善していることが分かる.これらのことより,提案方法が低SNR時のICAを用いたノイズ除去の前処理とし て有効であり,磁気シールドルー外での心磁図の計測の可能性が示唆されたので報告する.



Fig.1 Noise reduction results comparison.



参考文献

- 1) [詳解]独立成分分析 信号処理の新しい世界(著者: Aapo Hyva rinen, Juha Karhunen, Erikki Oja)
- 2) 藤岡豊太, 永田仁史, 安倍正人, 電子情報通信学会論文誌 A, Vol. J92-A No.2 pp.71-83, 2009
- 3) はじめて学ぶディジタル・フィルタと高速フーリエ変換(著者:三上直樹)

空間フィルタ法による心磁図の信号源推定における

センサ領域と解析空間に関する研究

成田青峰⁽¹⁾,岩井守生⁽¹⁾,孫文旭⁽²⁾,小林宏一郎⁽¹⁾ (1) 岩手大学,(2) 国立循環器病研究センター研究所 Study on senser plane and analysis space in signal source estimation with spatial filter method for MCG Seihou Narita(1), Morio Iwai(1), Wenxu Sun(2), Koichiro Kobayashi(1) (1) Iwate University (2) Research Institute, National Cerebral and Cardiovascular Center, Osaka Japan

はじめに

心疾患の早期発見を目指し,病変個所の特定を可能とする技術として心磁図を用いて心筋活動を3次元的 に可視化する技術が期待されている.心筋の活動(信号源)は広がりを持っているため,その広がりを持つ 信号源の推定に適した手法として空間フィルタ法がある.本研究では,空間フィルタ法の心磁図への応用を 目指し,計測されるセンサ領域と解析点による解析空間の関係性に着目した手法を提案する.実際に計測さ れた心磁図データを用いて解析空間の大きさを変更した信号源推定を行い検討した.

実験方法

Fig.1 に解析条件の模式図を示す. センサは 175mm 四方に 64 個, 等間隔に配置されている 64chSQUID 磁 束計を使用した.本研究では,心磁図データの R 波ピークにおける信号源推定結果に関して検討した. 解析 空間は 1 辺 8mm の立方体の解析点で以下に示す 2 パターンを用いて構成する. 心臓の大きさに合わせた解析 空間(x:15 個, y:15 個, z:10 個, xy 平面 120mm 四方)以下(a),およびセンサ平面と同等の大きさの解析空 間(x:22 個, y:22 個, z:10 個, xy 平面 176mm 四方)以下(b)とする. また本研究では,空間フィルタ法の 1 つである eLORETA を用いた.

実験結果

Fig.2 に解析空間(a),(b)の推定結果を示す.ひし形の枠がセンサ領域を表し,その下の直方体が解析空間を表す.塗りつぶされている部分が推定解(推定解最高強度の80%以上)を表す.解析空間(b)の内側の 直方体は解析空間(a)を表す.R波は心室の活動信号であり1つのまとまった領域の活動と考えられる.Fig.2 より解析空間(a)では推定解が2つに分離しており正しく推定できていない.一方,解析空間(b)は推定 解が1つのまとまった領域に推定されている.したがって,解析空間の領域を広くすることで推定精度を向 上させることが可能である.これは,空間フィルタの各ボクセルの値が,センサ領域と解析空間の関係に影響しているためと考えられる.今後さらなる検討を行う.



(a) $15 \times 15 \times 10$ analysis space (b) $22 \times 22 \times 10$ analysis space Fig2. MCG current source estimated at two types analysis space

Fig1. Analysis condition

Co₂ScAs/Mn₂ScAs 多層膜の電子状態に対する第一原理計算

福ヶ迫和輝、本多周太、伊藤博介

(関西大学)

First principles calculations for magnetic multilayers based on Co2ScAs/Mn2ScAs

K. Fukugasako, S. Honda, and H. Itoh

(Kansai Univ.)

<u>はじめに</u>

ハーフメタル材料はスピン分極率が 100%であるため、次世代 MRAM の MTJ 材料への応用が期待されている。一方、反強磁性体は内部で磁気モーメントを打ち消しあい外部に磁場を漏洩させないため、 高密度に集積しても隣接 MTJ 間の相互作用を生じない。この 2 つの性質を併せ持つ"反強磁性ハーフメ タル"の候補として、ホイスラー合金多層膜 Co₂ScAs[2 ML]/Mn₂ScAs[2 ML]を提案した。しかし、薄膜と しての応用を考えた場合、膜厚の薄さ、安定した磁性が不明瞭な点が課題となった。

本研究では Co₂ScAs/Mn₂ScAs 多層膜の膜厚と磁性を変化させ、それぞれの電子状態やエネルギーについて計算し、応用上の有用性を調査する。

<u>模型と計算方法</u>

Fig. 1 に示すように、2 種類のホイスラー合金からなる
 多層膜 Co₂ScAs[2n ML]/Mn₂ScAs[2n ML]の(001)積層につい
 て磁性、電子状態密度、スピン分極率および磁気モーメン
 トを、PAW と GGA を用いた第一原理計算で求める



Fig. 1 Magnetic multilayer based on half-metallic Heusler alloys

計算結果

Co₂ScAs 層と Mn₂ScAs 層の磁化が反平行な状態(反強磁性)のエネルギー E_{ap} および平行な状態(強磁性)のエネルギー E_p について、計算で得られたエネルギー差を Fig.2 に示す。 $n=1\sim5$ 全ての膜厚において $E_{ap} < E_p$ となり、反強磁性が安定な状態であることが分かった。また、このエネルギー差は膜厚の増加とともに一定値に収束していくと予想される。TABLE 1 は磁気モーメント M とスピン分極率 Pの結果を膜厚ごとに示している。全ての膜厚で、Mが小さくPが大きな状態(反強磁性ハーフメタル)となっていることがわかる。



Layer Thickness[ML]	<i>M</i> [µB]	<i>P</i> [%]
1	0.0334	88.1
2	0.0082	99.7
3	0.0570	95.4
4	0.0572	97.6
5	0.0738	95.6

TABLE 1 Magnetic moment and spin polarization

極薄 Co₂FeSi/MgO 積層構造の微細構造と元素分布の解析

松下瑛介,高村陽太,中川茂樹 (東京工業大学 工学院 電気電子系) Microstructure and elemental distribution of ultrathin Co₂FeSi/MgO structure E. Matsushita, Y. Takamura, S. Nakagawa

(Dept. of Electrical and Electronic Eng., Sch. of Eng., Tokyo Inst. of Tech.)

はじめに

スピン分極率が 100%のハーフメタル強磁性体(HMF)を用いた垂直磁気トンネル接合(p-MTJ)は,非常に高 いトンネル磁気抵抗比が期待されるため,次世代の不揮発性メモリ素子として注目されている.これまで我々 は、HMF と予測されているフルホイスラー合金 Co₂FeSi(CFS)と,Fe 系合金を接合すると垂直方向の界面磁気 異方性が発現する可能性がある MgO^{1,2}との二層膜を作製し,極薄膜 CFS に垂直磁気異方性(PMA)を付与でき ることを示してきた^{3,4)}. さらに、この CFS/MgO 二層膜における磁気異方性の詳細な解析から、CFS の膜厚 が 0.4 nm から 1.4 nm においてはバルクの成分も垂直方向に異方性を持っていること、およびこの PMA が 0.7 nm 以下で急増することを明らかにした⁵⁾.本研究では、このバルクの PMA の起源を調査するために、極 薄膜 CFS の微細構造解析と積層構造の局所的な組成分析を行った.

実験方法

試料は対向ターゲット式スパッタリング法で作製した. MgO(001)単結晶基板上に, バッファ層として Cr 40 nm と Pd 50 nm を室温で堆積させた後, CFS 層を基板温度 300℃で成膜した. その後, CFS 層の上部を酸素で 暴露し, MgO 2.7 nm を成膜した. 最後に 10 nm の Cr 層でキャップをした.

極薄膜 CFS の微細構造解析と組成分析には、走査透過型電子顕微鏡(STEM)を用いた.評価試料として、 バルクの PMA が急増した CFS 膜厚が 0.6 nm の試料と、急増する前の 1.4 nm の試料を選択した.

実験結果

MgO 基板[100]方向に沿った断面の STEM 観察を行った. CFS 層の配向面を評価するために, CFS 層の STEM 像を高速フーリエ 変換(FFT)したものを Fig. 1 に示す. 厚さ 1.4 nm の CFS は, 原点 から最も近い4 つの格子点までの距離が全て等しいパターンを示 し(Fig. 1 (a)), この結果は CFS が(110)配向であると解釈できる. CFS の膜厚が厚い領域では CFS は(001)配向することがわかって いるので, 極薄膜領域では配向面が変化していることがわかった. また, 0.6 nm の試料の FFT パターンは不明瞭で,配向面を評価で きなかった(Fig. 1 (b)).

次に積層構造における原子の相互拡散を STEM-電子エネルギ ー損失分光法(EELS)による組成分析により評価した. Fig. 2 に積 層構造中の Fe と Co, Pd の元素マッピングの結果を示す. 図中の 白い点線の内側が CFS 層と考えている部分である. どちらのサン プルにおいても Pdが CFS 層内に拡散していることが確認された.

極薄膜領域での特異な配向や Pd の拡散は, 極薄膜 CFS において, バルクの成分が PMA を持つ要因となった可能性がある.

謝辞

本研究は、文部科学省委託事業ナノテクノロジープラットフォーム課題として物質・材料研究機構微細構造解析プラットフォームの支援(課題番号 JPMXP09A19NM0111)を受けて実施した.

参考文献

- 1) S. Ikeda *et al.*: Nat. Mater., **9**, 721 (2010).
- 2) Z. Wen *et al.*: Appl. Phys. Lett., **98**, 242507 (2011).
- 3) Y. Takamura et al.: J. Appl. Phys., 115, 17C732 (2014).
- 4) K. Shinohara *et al.*: AIP Advances, **8**, 055923 (2018).
- 5) Y. Takamura et al.: J. Magn. Soc. Jpn., 43, 120 (2019).



Fig. 1. FFT pattern for STEM images for the CFS layer of
MgO-sub./Cr/Pd/CFS/MgO/Cr stacks.
(a) 1.4 nm - CFS, (b) 0.6 nm - CFS



Fig. 2. Composition analysis with STEM - EELS. (a) 1.4 nm - CFS, (b) 0.6 nm - CFS

$L2_1$ -atomic order and spin-polarization in Co₂MnZ (Z = Ge, Sn) Heusler thin films

Varun Kumar Kushwaha, Yuya Sakuraba, Tomoya Nakatani, and Kazuhiro Hono National Institute for Material Science, 1-2-1 Sengen, Tsukuba, Ibaraki, 305-0047, Japan

Half-metallic Co₂-based Heusler alloys have attracted much interest for spintronic applications because of their predicted 100% spin-polarization (*P*) and high Curie temperature (*T*_C), which are expected to enhance the performance of spintronic devices. In fact, several experimental studies have already demonstrated their effectiveness in enhancing the giant-magnetoresistance, tunnel-magnetoresistance and spin-accumulation effects. Despite large magnetoresistance (MR) ratio observed in Heusler-based devices, structural disorder is still one of the remaining issues which lowers the spin-polarization. Therefore, a high degree of structural ordering is necessary to realize the half-metallicity. An enhanced MR has been reported in various devices using Co₂-based Heusler alloys such as Co₂MnSi and Co₂FeGe_{0.5}Ga_{0.5} by promoting the structural order ($B2 \rightarrow L2_1$ -ordering) by annealing at high temperature (> 500 °C). For various applications, however, applicable maximum annealing temperature is limited, e.g., less than 300 °C is required for a magnetic read head for HDD because of the temperature tolerance of the NiFe shield. Therefore, it is desirable to search for other Heusler alloys which crystallize in $L2_1$ -order below 300 °C. The present work is motivated by the Okubo *et al.* [1]'s report, where the $L2_1$ to *B2*-order transition temperature of Co₂MnZ (*Z* = Ge, Sn) alloys is found to be above 1500 K; and hence $L2_1$ -ordering is expected to appear even by annealing at relatively low temperature.

Epitaxial Co₂Mn*Z* (*Z* = Ge, Sn) (30 nm) and Co₂FeGe_{0.5}Ga_{0.5} (50 nm) films were grown on MgO (001) single crystal substrate using ultra high vacuum magnetron sputtering at room temperature and subsequently annealed *in-situ* at $T_{ann} = 200-700$ °C to promote the Heusler ordering. Here, Co₂Mn*Z* (*Z* = Ge, Sn) films were grown on Co₅₀Fe₅₀ (3 nm) buffer layer. The degree of *L*₂₁-ordering (*S*_{L21}) as a function of T_{ann} of Co₂Mn*Z* (*Z* = Ge, Sn), Co₂FeGe_{0.5}Ga_{0.5} and Co₂MnSi (Ref. [2]) films is displayed in Fig. 1(a). In case of Co₂FeGe_{0.5}Ga_{0.5} and Co₂MnSi, *L*₂₁-ordering was observed above 500 °C; whereas that of Co₂Mn*Z* (*Z* = Ge, Sn) films appeared even in as-deposited and varies systematically with increasing T_{ann} . Non-local spin-valve (NLSV) devices were micro-fabricated to estimate the spin-polarization *P* of Co₂Mn*Z* (*Z* = Ge, Sn) and Co₂FeGe_{0.5}Ga_{0.5} films by measuring the spin-accumulation signal in Cu channel. A systematic variation in *P* with increasing T_{ann} was observed in these alloys [Fig. 1(b)]. At $T_{ann} = 300$ °C, the spin-polarization *P* of Co₂MnSn and Co₂FeGe_{0.5}Ga_{0.5}Ga_{0.5} were found to be very close (~0.56) whereas that of Co₂MnGe film was higher (~0.67) which would be due to higher degree of *L*₂₁-ordering. These results suggest that Co₂MnGe alloy might be a better ferromagnetic electrode for practical applications.



Figure 1. Annealing temperature dependence of (a). degree of $L2_1$ -ordereing $(S_{L21}),$ and (b). bulk spin-polarization (P)measured in NLSV devices. S_{L21} exceeding 1 is expected to be caused by off-stoichiometry in films.

A. Okubo, R. Y. Umetsu, K. Kobayashi, R. Kainuma, and K. Ishida, Appl. Phys. Lett. 96, 222507 (2010).
 Y. Sakuraba, K. Izumi, T. Iwase, S. Bosu, K. Saito, K. Takanashi, Y. Miura, K. Futatsukawa, K. Abe, and M. Shirai, Phys. Rev. B 82, 094444 (2010).

ナノ結晶体から形成された Co₂FeGa 合金薄膜の配向制御と磁性

Textured growth and magnetic properties of Co₂FeGa alloy thin films formed by nanocrystals [°]大野悠太, 山田啓介, 嶋睦宏(岐阜大院自)

°Yuta Ohno, Keisuke Yamada, and Mutsuhiro Shima (Gifu Univ.)

【緒言】

前駆体結晶の基本骨格を保ちながら新たな結晶相が生成するトポタクティック法は、高い結 晶配向性を有する薄膜を簡便に作製できる化学合成法であり^[1]、結晶配向により磁気異方性など の物性制御が可能であることから、機能性薄膜材料分野への更なる展開が期待されている^[2]。本 研究では、高いスピン分極率とキュリー温度、磁気モーメントを有することからスピントロニク ス分野で注目される Co₂FeGa 合金^[3,4]について、トポタクティック法により薄膜を作製し、反応 過程で生成するゲルと前駆体および薄膜の結晶構造と配向度、磁気特性の相関について調べた。

【実験方法】

Co₂FeGa 合金薄膜試料の作製では、はじめに Co²⁺, Fe³⁺, Ga³⁺の各硝酸水溶液を目的組成とな るように比率調整し混合後、NaOH を用いて pH 9.0 に調整し共沈反応により沈殿させた。沈殿 生成物を 333 K で 3 日間低温熱処理を行った後、沈殿したゲルを遠心分離法で分離し、エタノ ール中に分散させて前駆体を生成し、Si 基板上にスピンコーティングした。次に大気雰囲気 下、973 K で 30 分間アニールしたのち、N₂/H₂の混合ガス(N₂/H₂ = 4/1)フロー中、973 K で 3 時 間アニールを行い、薄膜試料を作製した。薄膜試料の結晶構造及び室温の磁気特性を XRD 及 び VSM を用いて測定した。

【結果と考察】

はじめに XRD を用いて試料の結晶構造を調 べた。まず、前駆体である沈殿生成物を 333 K で熱処理し生成したゲル薄膜では、α-Co(OH)2 相の(001)ピークのみ、大気雰囲気下 973 K で熱 処理した試料ではスピネル相の(111)ピークのみ が観測された。次に、N2/H2 混合ガス雰囲気下 973 K で熱処理した試料では、BCC 相の(110)ピ ークのみが観測され、前駆体に 333 K で熱処理 を行っていない試料と比較し、高い配向性を確 認した(Fig.1)。高配向性の要因として、熱処理 により Ga³⁺置換およびゲルの結晶化が促進され



Fig.1. Co₂FeGa 合金薄膜の X 線回折スペクトル

たこと等が考えられる。VSM を用いて室温で磁化測定を行ったところ、強磁性的な磁化曲線が 得られた。角形比は高配向膜で $M_r/M_s = 0.59$ であり、無配向膜の $M_r/M_s = 0.30$ の約 2 倍近い値が 得られた。これは高配向化が薄膜の磁気異方性に影響を及ぼした結果と考えられる。

[参考文献]

[1] T. Mairoser et al., *Nat. Commun.* 6, 7716 (2015). [2] D. H. Kim, et al., *Adv. Mater.* 29, 1606831 (2017). [3] N. Patra, et al., *J. Alloys Compd.* 748, 653-670 (2018). [4] R.Y. Umetsu, et al., *J.Appl. Phys.* 111, 073909-073915 (2012).

高品質トポロジカル Bit-xSbx エピタキシャル薄膜の作製と特性評価

羽立 康浩, 鈴木 健太, 浅野 秀文, 植田 研二 (名大院工)

Fabrication and characterization of high-quality topological Bi_{1-x}Sb_x thin films Yasuhiro Hadate, Kenta Suzuki, Hidefumi Asano, Kenji Ueda

(Nagoya Univ.)

はじめに

トポロジカル物質はヘリカルスピン偏極した超高移動度表面伝導性を有するため、スピントロニクスデバ イス材料として注目されている。中でも Bi1-xSbx は非常に高い移動度(~85000 cm²/Vs)に加えて大きなスピン ホール効果が表れる等優れた物理特性を有することから盛んに研究が行われている。Bi1-xSbx(BiSb)はSb組成 により特性が変化し、x >~0.04 でトポロジカル相転移が生じトポロジカル半金属化し、x=0.07~0.22 でトポロ ジカル絶縁体となる。本研究ではトポロジカル絶縁体となる x=~0.1 を中心に高品質 BiSb トポロジカル薄膜 の作製と特性評価を行ったので報告する。

実験方法

Bi_{1-x}Sb_x (x=0~0.45)薄膜は、BaF₂(111)基板(ミスマッチ:~3.2%)上に分子線エピタキシ(MBE)法を用いて作 製した。BiSb の固液境界線直下の~300℃ を目安に基板温度を設定し、高品質 BiSb 薄膜の作製を試みた。 結果と考察

BaF₂ (111)基板上に製膜温度(T_s) = 200-250℃で BiSb 薄膜を作製した所、不均一に付着した多結晶膜とな った。150 ℃以下の成長温度ではアモルファス膜、280 ℃以上の温度では膜付着が殆ど起こらなかった。これ らは、Biの融点が低く(271 ℃)、高揮発性であることが主要因と考えられる。そこで、BaF2 (111)基板上に低 温で Bi の揮発を抑えながら BiSb を成長させた後に高温成長させる 2 段階成長法 (T_s = ~150 ℃→ ~250 ℃ の2段階で成長)により BiSb 薄膜を作製した所、X 線回折測定で、基板ピーク以外で BiSb の(00/)ピークの みが観測され、BaF2(111)基板上で BiSb の c 軸配向成長が確認された[Fig.1(a)]。BiSb (003)ピークの半値幅は 0.75°と小さな値になり、結晶性の良好な薄膜が作製できている事が示唆された。面内 XRD 測定(φ スキャン) 結果から[Fig.1(b)]、BiSb (012)とBaF2(-111)の双方で3回対称の鋭いピークが観測され、双方のピーク位置が 一致した。これら XRD 測定結果から、BiSb が BaF2 (111)基板上で BiSb (001)[2-10]//BaF2 (111)[1-10]の配向関 係でエピタキシャル成長する事が分かった。薄膜の面内、面直 XRD と逆格子マッピングより算出した BiSb 薄膜の格子定数は a = 0.449 nm、c = 1.186 nm となり、バルク値(a = 0.454 nm、c = 1.184 nm)とほぼ一致し、格 子緩和した成長をしていることが分かった。これらの結果から、BaF2等の格子整合性の良い基板を用いて 2

段階成長で製膜する事で、エピタキシャル BiSb 薄膜を 作製できる事が分かった。次に BaF2 (111)基板上 BiSb 薄 膜(300 nm)のホール抵抗測定(ρ_{xy})を行った所、複数伝導 層の存在を示唆する非線形挙動が観測された[Fig.1(c)挿 入図]。これは、作製した BiSb がトポロジカル表面伝導 とバルク伝導の2種類の異なる伝導層を有する事に対応 していると考えられる。ホール伝導度 σ_{xv}の 2 バンドモ デル解析から、2つの伝導層に対応したキャリア濃度、 移動度がそれぞれ、伝導層 1:1.8×10¹⁸ cm⁻³、7450 cm²/Vs、 伝導層 2:4.6×10²¹ cm⁻³、5.5 cm²/Vs(@2 K)と算出された [Fig.1(c)]。これらの結果から、高移動度の伝導層1がトラ ポロジカル表面伝導層、伝導層2がバルク伝導層に対応 G していると考えられる。膜厚の薄い BiSb 薄膜(50 nm)に 👸 おいて磁気伝導効果測定(*△ Gxx*)を行った所、弱反局在 効果が現れ Hikami-Larkin-Nagaoka の式の解析では、 トポロジカル表面伝導に対応する事を示す a = -0.54 と 位相コヒーレンス長 $L_{a}=109 \text{ nm}$ が得られた[Fig.1(d)]。



Fig.1 (a) Out of plane and (b) in-plane XRD patterns of the BiSb films, (c) Field dependence of the Hall conductivity, $\sigma_{xy \text{ and }} \rho_{xy}$ (inset). (d) Magnetoconductance curve ΔG_{xx} of the thinner (~50 nm) BiSb films.

Topological Weyl semimetal CoSi thin films with spin Hall effect enhanced by *d-p* orbital hybridization

K. Tang^{1,2}, Y.-C. Lau^{3,4}, K. Nawa¹, Z.C. Wen¹, Q.Y. Xiang¹, H. Sukegawa¹, T. Seki^{3,4}, Y. Miura¹, K. Takanashi^{3,4,5}, and S. Mitani^{1,2}

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

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

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

⁴Center for Spintronics Research Network, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan

⁵Center for Science and Innovation in Spintronics, Core Research Cluster, Tohoku University, Sendai

980-8577, Japan

Spin current generated by the spin Hall effect (SHE) provides a bright way to manipulate the magnetization orientation by spin-orbit torque (SOT) for energy-efficient spintronic devices. Recently, topological Weyl semimetals (WSMs) emerge as promising materials for efficient spin-current generation in SOT devices, due to their topological nature of the bulk band structures. A large intrinsic SHE has been predicted in the TaAs family of WSMs, arising from the interplay of the large spin Berry curvature near the Weyl nodes¹). The cobalt monosilicide CoSi is a newly discovered WSM with two types of chiral topological fermions at the band-crossing points near the Fermi level²⁾⁻⁴), while the spin transport properties in the CoSi films have not been investigated. In this work, a comprehensive study on the nanometer-scale CoSi thin films and their spin-transport properties is presented by combining experiments and first-principles calculations.

CoSi-based thin films and heterostructures were fabricated by the magnetron sputtering in a high-vacuum sputter chamber. The out-of-plane XRD measurement with Cu K_{α} radiation was used to characterize the crystalline structure. The morphology and surface structures were checked by atomic force microscopy and reflection high-energy electron diffraction, respectively. Then, the samples were microfabricated into Hall bar structures by conventional UV lithography and Ar ion milling. Electrical and magnetic transport properties were measured in a physical properties measurement system at room temperature. Regarding the first-principles calculations, the generalized gradient approximation using the full-potential linearized augmented plane-wave method was employed.

Polycrystalline CoSi films with the *B*20 crystal structure and the flat surface morphology were deposited on sapphire *c*-plane substrates. The SHE and SOT signals in the CoSi films were studied by spin Hall magnetoresistance and harmonic Hall measurements in multilayer stacks with the core structure of CoSi/CoFeB/MgO. The anti-damping like and field like spin Hall conductivities (SHCs) of the CoSi films are evaluated to be 60 (\hbar/e) Ω^{-1} cm⁻¹ and 95 (\hbar/e) Ω^{-1} cm⁻¹, respectively. The spin Hall efficiency of ~3.4% was obtained, which is appreciable in material systems without any heavy elements. From the first-principles calculations, it is found that the hybridization between *d-p* orbitals leads to a large enhancement of spin Berry curvature near the band crossings at the vicinity of the Fermi energy, making the dominating contribution to the SHC in the CoSi. The maximum SHC amplitudes of ~147 and ~119 (\hbar/e) Ω^{-1} cm⁻¹ can be achieved when the Fermi energy shifts down to -0.16 and up to 0.24 eV, where correspond to dope of 0.51 holes and 0.28 electrons, respectively. Therefore, we suggest that the SHC of CoSi could be further improved by doping with other elements, such as Fe or Ni. This work indicates that the *d-p* orbital hybridization plays a significant role for spin-current generation in Weyl semimetals and will be beneficial for developing new topological materials with large SHE.

Reference

- 1) Y. Sun et al., Phys. Rev. Lett., 117 (2016) 146403.
- 2) D. Takane et al., Phys. Rev. Lett., 112 (2019) 076402.
- 3) D.S. Sanchez et al., Nature, 567 (2019) 500–505.
- 4) Z. Rao et al., Nature, 567 (2019) 496–499.

磁性細線メモリー素子における磁区記録電流の低電流化に向けた検討

小倉 渓, 中谷 真規, 石井 紀彦, 宮本 泰敬 (NHK 放送技術研究所)

Micromagnetic analysis for reduction of write current in magnetic nanowire memory element

K. Ogura, N. Nakatani, N. Ishii and Y. Miyamoto

(NHK Science & Technology Research Labs.)

はじめに

我々は将来の立体テレビの時代に向け、大容量・超高速転送が可能な磁性細線メモリーを提案している¹⁾. その基礎実験として、1本の磁性細線媒体に直交配置した2本の金属線A、Bを記録素子としたFig.1に示す ような素子構造において、各記録素子に逆方向のパルス電流を印加することによりそのギャップに合成電流 磁界を形成し、磁性細線に磁区を形成する手法について解析を進めた.今回、記録素子に印加するパルス電 流に適切な時間遅延を設けることで、従来よりも低い電流値で磁化反転が可能であることを見出した.

シミュレーション条件

Fig.1の磁性細線モデルにおける磁区形成過程を,LLG (Landau–Lifshitz–Gilbert) 方程式により計算した²⁾. 磁性細線の計算メッシュサイズは 4nm とし,磁性細線と記録素子が導通しないよう両者間に 10 nm の絶縁層 を設けた構造とした. さらに記録素子間のギャップに磁束を集中させて磁区形成しやすくするため,記録素子間に軟磁性材料(ソフトフェライト)を挿入した.記録素子Aに幅 1ns のパルス電流を印加した後,遅延時間 *T*=0~300ps の範囲で遅れて記録素子Bに同様のパルス電流を逆方向に印加し,磁区形成過程を解析した.

シミュレーション結果

上記の記録素子構造と記録電流印加法を用いることで、特定範囲の*T*に対して、従来よりも低い電流値で 磁区形成できることを確認した.その際、Fig.2のα点(50nm、-58nm、6nm)付近に核となる磁化反転がまず誘起 され、その後磁壁が伝搬することで記録素子ギャップに反転磁区が形成された.*T*=150psとしたときのα点、 及び原点付近のβ点(2nm、2nm、6nm)における磁気モーメントの軌跡をFig.3に示す.α点ではダンピングの影 響を受けて複数回円を描く複雑な経路を経た後に磁気モーメントが反転した.一方、β点では近接メッシュ の磁気モーメントとの相互作用により一気に反転した.またα点の磁気モーメントの歳差運動は、記録素子 Bへの記録電流の印加タイミング(磁気モーメントの歳差運動に対するインパクト開始位置)に応じて変化 し、磁区形成が可能となる遅延時間*T*が周期的に存在することが判明した.遅延時間*T*を変化させたときの、 各観測点における磁気モーメントの歳差運動の変化と磁化反転について、当日詳細を報告する.



Fig.1 解析した磁性細線メモリーモデル

Fig.2 モデル中の解析点

Fig.3 磁気モーメントの軌跡

参考文献

- 1) 宮本ほか: "磁性細線メモリーにおける磁区形成・駆動と磁気光学検出," NHK 技研 R&D, No.181, pp. 20-31 (2020)
- 2) 遠藤ほか: "磁性細線デバイスにおける記録用金属線に流す記録電流の低電流化と発生磁界による磁気 モーメントの解析,"映像情報メディア学会年次大会, 34D-2 (2019)

Low Current Driven Vertical Domain Wall Motion Memory

with Artificial Ferromagnet

Y. M. Hung¹, T. Li¹, R. Hisatomi¹, Y. Shiota¹, T. Moriyama¹, and T. Ono^{1,2} ¹Institute for Chemical Research, Kyoto University, Gokasho, Uji, Kyoto 611-0011, Japan. ²Center for Spintronics Research Network (CSRN), Graduate School of Engineering Science, Osaka University, Toyonaka, Osaka 560-8531, Japan.

Domain wall (DW) motion in ferromagnetic nanowires is potential candidates of future memory technologies such as racetrack memory¹). However, there are still some problems that hampers the commercialization of DW motion memories. First, the DW width, which determined by the intrinsic properties of materials, is large (> 5 nm for Co²) as far as the commercialization is concerned. Second, to precisely control DW position is a difficult task. Currently, the approach used to control DW position is to fabricate well-designed pinning sites in nanowire¹). This approach needs complicated nanofabrication process. Besides, lowering consumption power is also important for practical application. To attain low current driven, precisely controllable, and applicable DW motion memory with high storage density, there is still a lot of room for improvement. In this study, we propose a new type of vertical DW motion memory with artificial ferromagnetic and study the feasibility with micromagnetic simulation. Based on the proposed structure, narrow DW width, DW controllability, as well as low J_c down to 2×10^{10} A/m² can be achieved.

A schematic illustration of vertical DW motion memory proposed in this study is shown in Fig. 1. A 20-nm-diametercylindrical magnetic wire, referred to as one memory cell, is an artificial ferromagnet. The main body of wire is composed of periodically stacked bilayers of strong coupling layers (green layers) and weak coupling layers (yellow layers). The purpose of the strong coupling layers is to carry storage bits, while the weak coupling layers carry DWs. We use micromagnetic analysis to study the feasibility of device. In this study, the magnetic exchange stiffness (A_{ex}) and uniaxial magnetic anisotropy constant (K_u) are 10 pJ/m, 10⁶ J/m³, for the strong coupling layers, while 1-10 pJ/m, 0 J/m³, for the weak coupling layers. We study dependences of DW width and J_c on different A_{ex} of weak coupling layers. The thickness of each layer is set to be 3 nm and the cell size for calculation is 1 nm cube.

Figure 2 shows the DW width as a function of A_{ex} of weak coupling layers. It can be observed that, as the A_{ex} decreases to smaller than 3 pJ/m, the DW width can be narrowed to only 1 layer (3 nm). In addition, if the A_{ex} of weak coupling layer increased to sufficiently large, J_c for DW motion can be decreased down to 2×10^{10} A/m², as shown in Fig. 3. The results suggest that, as we optimize the A_{ex} of weak coupling layers, it is possible to simultaneously achieve narrow DW and low J_c in artificial ferromagnet based magnetic nanowire. This study provides a promising way to speed up the commercialization of DW motion memory.

Reference

- 1) S. Parkin, M. Hayashi, and L. Thomas, Science, 320, 190 (2008).
- 2) L. Thomas, M. G. Samant, and S. S. P. Parkin, Phys. Rev. Lett., 84, 1816 (2000).



Fig. 1. Artificial ferromagnet based vertical DW motion memory cell proposed in this study.





Fig. 2. DW width (counted with layers) as a function of weak coupling layers A_{ex} .

Fig. 3. Critical current J_c for DW motion as a function of weak coupling layers A_{ex} .

エンゼルフィッシュレーストラックにおける

反強磁性スキルミオンの電界駆動

濱田 海、仲谷 栄伸 電気通信大学 情報理工学研究科

Controlling antiferromagnetic skyrmion motion in an angelfish-type racetrack memory by electric field

K. Hamada and Y. Nakatani

(Univ. of Electro-Communications)

はじめに

スキルミオンは微小電流での移動が可能であるため、現在スキルミオンを利用したレーストラックメモリ の研究が盛んに行われている[1,2]。レーストラックメモリでは、スキルミオンの存在しやすいポジションを作 り、位置制御を行うことが必要である。先行研究ではレーストラックの垂直磁気異方性を三角形鎖状に低下さ せたエンゼルフィッシュレーストラック及び交流磁界を利用し、強磁性スキルミオンの位置制御が行われた [3]。しかし、強磁性スキルミオンはレーストラック上を直進しないため、論理回路のような複雑な構造を持つ デバイスを構築できない可能性がある。対して、反強磁性スキルミオンはレーストラック上を直進することが 報告されている[4]。本研究では、エンジェルフィッシュレーストラックにおいて反強磁性スキルミオンを用 い、電界効果による移動方式を提案し、マイクロマグネティックシミュレーションを用いて有効性を調査した。 計算条件

材料定数は PtCo の値を用いた。 飽和磁化 Ms=580 emu/cm³、交換スティフネス定数 A=1.5 μerg/cm、 DMI 定数 D=3.4 erg/cm²、損失定数 α=0.3、異方性定数 Ku=0.8 Merg/cm³ とした[2]。細線トラックのサイズは

400(x)×200(y)×0.4(z) nm³とした。磁性細線の中央にスキルミオンを1つ配置し、パルス電界により細線全体の 磁気異方性定数が変調するとして(ΔK_u)スキルミオンを移動させるシミュレーションを行った。さらに、 α 及 び三角形鎖状領域の異方性定数 Kud を変化させ、スキルミオンの移動可能な条件を調査した。

計算結果

図1に $\alpha=0.3$ 、 $Ku^d=6.5$ Merg/cm³、最大変調率 $\Delta Ku=31$ %における反強磁性スキルミオンの移動の様子を示 す。図より、1周期分の電界パルスで、スキルミオンが直径を変化させながら隣の三角形領域に直進すること がわかった。この結果より、提案手法により複雑な構造を持つデバイスを構築できる可能性を示した。図2に $Ku^{d} \ge \alpha$ における最適な電圧パルス長 tp^{opt} の変化を示す。 Ku^{d} 及び α を小さくすると tp^{opt} が小さくなることが 分かった。図3に to^{opt} における Ku^d 及びaに対するスキルミオンが正確に移動可能な ΔKu の範囲を示す。 Ku^d 及びαを小さくすると移動可能なΔKuの範囲が広くなることが分かった。これらの結果より、Ku^d及びαを小 さくすることにより、広い動作マージンでスキルミオンをより高速に移動出来ることが分かった。







Fig.1 Time resolved AFM Skyrmion motion by electric field 参考文献

optimal pulse length t_p^{opt}

Fig.2 Effect of α and Ku^d on the Fig.3 Conditions of Skyrmion motion by α and Ku^d

[1]T. H R. Skyrme, Proc. Roy. Soc. Lond. A. 31, 556 (1962). [2]J. Sampaio, et, al., Nat. Nano. 8, 839 (2013).

[3]K. Migita, et. al., Appl. Phys. Express 13, 073003 (2020). [4]L. Shen, et. al., Phys. Rev. Lett. 121, 167202 (2018).

DMI を有する AFC 構造の磁化反転シミュレーション

浅川 宏輝、仲谷 栄伸 電気通信大学、情報理工学研究科 Micromagnetic simulation of AFC structure with DMI Hiroki Asakawa, Yoshinobu Nakatani

Graduate School of Informatics and Engineering, The University of Electro-Communications

はじめに

スピン注入磁化反転により情報を書き換える STT-MRAM[1]は、高密度化のために反転電流の低減が必要と されている。その問題に対し、以前本研究室では、スピン注入磁化反転において、DMI[2]により反転電流密 度が減少することを示した。[3]また、強磁性体同士を反強磁性結合させた構造(AFC構造)において、単 層構造に対して反転電流密度が減少することを示した。[4]そこで、AFC構造において DMI を加えた場合、 更に反転電流密度が減少する可能性を考えた。本研究では、DMI を有する AFC 構造での磁化反転シミュレ ーションを行い、反転電流密度の変化を調査した。

計算条件

材料定数は、飽和磁化 $M_s = 600 \text{ emu/cm}^3$ 、交換スティッフネス定数 $A = 1.0 \mu \text{erg/cm}$ 、層間交換定数 $A_{inter} = -1.0 \mu erg/cm、損失定数 \alpha = 0.01、スピン分極率 P = 1.0 とした。異方性定数 K_nは DMI 値毎に \Delta = 60$ となる値を求めて用いた。また、自由層の直径d = 30 nm、厚さ $h_1 = 2 \text{ nm}$ 、 $h_2 = 0 \sim 1.5 \text{ nm}$ とした。DMI は h_2 へ加え、 $D = 0.0 \sim 3.0 \text{ erg/cm}^2$ とし、磁化反転シミュレーションを行い、反転電流密度を求めた。

実験結果

まず、パルス幅 $t_p = 1.0 \text{ ns}$ 、 $\alpha = 0.0001$ における、 h_2 と DMI による最小反転電流密度の変化を図1に示 す。図1より、単層(SL)とAFCの両方でD>0において、反転電流密度が減少することがわかった。また、 SL と AFC で反転電流密度が最小となる DMI の値が異なることがわかる。ここで、最も反転電流密度が減 少する DMI の値を D_{opt} とする。次に、 $D = D_{opt}$ において、SL と AFC の α による最小反転電流密度の変化 を図2に示す。各線は h_2 の厚さ毎の最小反転電流密度を表し、細線が $D = 0.0 \text{ erg/cm}^2$ 、太線が $D = D_{opt}$ の 場合を表す。図2より、αが小さい時、DMIを有する AFC で最小反転電流密度が減少し、SL の場合と比較 して最大で48%減少することがわかった。







参考文献

- [1] L. Thomas, *et al.*, IEEE International Electron Device Meeting pp. 27.3.1-4 (2018).
- [2] S.Rohart, A.Thiaville, APS Physics 88, 184422 (2013).
- [3] S. Takamatsu, et al., "Reducing the switching current with a Dzyaloshinskii-Moriya interactionin nanomagnets with perpendicular anisotropy", 2018 Digests of the INTERMAG CONFERENCE, Apr., 2018, AR-06.
- [4] K. Yamada, K. Kubota, Y. Nakatani., J. Appl. Phys., 127 .133906 (2020).

Static structures and dynamics of frustrated bimerons

Xichao Zhang¹, Jing Xia², Motohiko Ezawa³, Oleg A. Tretiakov⁴, Guoping Zhao⁵, Yan Zhou², Xiaoxi Liu¹

¹ Department of Electrical and Computer Engineering, Shinshu University, Nagano 380-8553, Japan

² School of Science and Engineering, The Chinese University of Hong Kong, Shenzhen, China

³ Department of Applied Physics, The University of Tokyo, Tokyo 113-8656, Japan

⁴ School of Physics, The University of New South Wales, Sydney 2052, Australia

⁵ College of Physics and Electronic Engineering, Sichuan Normal University, Chengdu 610068, China

The magnetic spin textures with non-trivial topology has been an important topic in the fields of magnetism and spintronics for the last few years [1]. For example, the magnetic skyrmion is a promising topological spin texture, which exists in perpendicularly magnetized systems and can be used as a spintronic information carrier. Magnetic bimeron is a topological counterpart of skyrmions in in-plane magnets, which can also be used to carry information. In this work [2], we report the static properties of bimerons with different topological structures in a frustrated ferromagnetic monolayer, where the bimeron structure is characterized by the vorticity Q_v and helicity η . It is found that the bimeron energy increases with Q_v , and the energy of an isolated bimeron with $Q_v = \pm 1$ depends on η . We also report the dynamics of frustrated bimerons driven by the spin-orbit torques, which depend on the strength of the damping-like and field-like torques. We find that the isolated bimeron with $Q_v = \pm 1$ can be driven into linear or elliptical motion when the spin polarization is perpendicular to the easy axis. We numerically reveal the damping dependence of the bimeron Hall angle driven by the damping-like torque. Besides, the isolated bimeron with $Q_v = \pm 1$ can be driven into rotation by the damping-like torque when the spin polarization is parallel to the easy axis. The rotation frequency is proportional to the driving current density. In addition, we numerically demonstrate the possibility of creating a bimeron state with a higher or lower topological charge by the current-driven collision and merging of bimeron states with different Q_v . Our results could be useful for understanding the bimeron physics in frustrated magnetic systems.

References

- Nat. Rev. Phys. 2, 492 (2020); J. Phys. D: Appl. Phys. 53, 363001 (2020); J. Phys.: Condens. Matter 32, 143001 (2020); J. Appl. Phys. 124, 240901 (2018); Nat. Rev. Mats. 2, 17031 (2017); Adv. Mater. 29, 1603227 (2017); Phys. Rep. 704, 1 (2017); J. Phys. D: Appl. Phys. 49, 423001 (2016); Proc. IEEE 104, 2040 (2016); Nat. Rev. Mats. 1, 16044 (2016); J. Phys.: Condens. Matter 27, 503001 (2015); Nat. Nanotech. 8, 899 (2013).
- 2) Phys. Rev. B 101, 144435 (2020).



Figure 1. (a) Illustration of a skyrmion with $Q_v = 1$. (b) Illustration of a bimermon with $Q_v = 1$. (c) Top view of simulated static bimeron solutions with different Q_v and η . (d) Current-induced collision and merging of an isolated bimeron and a cluster-like bimeron state. More details can be found in [Phys. Rev. B **101**, 144435 (2020)].

磁性細線に形成された楕円形状磁気スキルミオンの 電流駆動の磁気シミュレーション

海谷 侑希¹、本多 周太¹、伊藤 博介¹、大澤 友克² (¹関西大学,²沼津高専)

Micromagnetic approach to current-induced domain motion of an elliptical skyrmion produced in perpendicularly magnetized nanowires Yuki Kaiya¹, Syuta Honda¹, Hiroyoshi Itoh¹, and Tomokatsu Ohsawa² (¹Kansai University, ²National Institute of Technology, Numazu College)

はじめに

強磁性細線中に形成された磁区を電流によって駆動させることは磁壁移動型メモリや演算素子への応用に期 待されている。Pt、Rhなどの重金属上に積層された強磁性細線においては、ジャロシンスキー守谷相互作用 (DMI)により安定化された磁気スキルミオンの電流駆動がバイナリビットとして利用される。最近、強磁性薄 膜に形成された楕円形状のスキルミオン格子が観測された¹⁾。細線において楕円形状スキルミオンを利用で きれば、集積度の減少なしに磁区の領域を増加でき、円形状よりも磁区の読み出しで有利になると考えられ る。DMI下の細線においては、終端磁化の傾斜による細線内部の磁区の束縛²⁾の影響で楕円形状スキルミオ ンが形成される。しかし、細線に束縛された楕円形状スキルミオンの電流駆動特性は明らかではない。本研 究では、磁気シミュレーションによって楕円形状スキルミオンを再現し、細線幅やDMI 相互作用の強さとス キルミオン形状との関係やスキルミオンの電流駆動特性を明らかにする。またシミュレーションで得られた 結果と、バブル磁区の電流駆動解析式であるシールの方程式から得られた解析結果と比較検討する。

シミュレーション方法

垂直磁気異方性を持つ厚さを 2.5 nm、長さを 375 nm とし、幅(W)を 50 nm ~80 nm の TbFeCo 細線に形成され たスキルミオンの電流駆動をランダウ-リフシッツ-ギルバート方程式に基づいたマイクロマグネティックス シミュレーションによりシミュレーションする。シミュレーションでは、有効磁場としてダイポール-ダイポ

ール長距離相互作用、交換エネルギーや DMI による短距離 相互作用、垂直磁気異方性による作用を考慮する。

シミュレーション結果

Fig. 1 (a)に W=80 nm の磁性細線に DMI と終端磁化による束 縛によって安定化した磁気スキルミオンの構造を示す。形成 されたスキルミオンの形状は楕円形状であった。初期の磁化 状態として安定化させたスキルミオンの形状は楕円形状を とる。このスキルミオンを電流値 1.0×10¹¹ A/m²で駆動させる と、細線長手方向(x 方向)におよそ 16 nm、細線幅方向(y 方 向)におよそ 4 nm 移動し、その後、停止した(Fig. 1(b))。また、 駆動中、スキルミオンサイズが縮小した。シミュレーション で得られたスキルミオン形状の変化と速度の関係をシール の方程式と比較する。y 方向への移動はスキルミオンホール 効果として知られている動きであり、シールの方程式から得 られる速度と定性的に一致した。その大きさはシミュレーシ ョン結果の方が少なかった。この結果について終端の形状の 影響を考慮して検討する。



Fig. 1 (a) Initial magnetic states (t = 0) of elliptical skyrmion. (b) Center position of the elliptical skyrmion when spin polarized current flows in wire.

参考文献

1) J. Jena, B. Göbel, T. Ma, V. Kumar, et. al.: nature commun., **11** 1115 (2020).

2) Y. Kaiya, S. Honda, H. Itoh, and T. Ohsawa: T. Magn. Soc. Jpn. (Special Issue), 4 23 (2020).

Rashba 超伝導体の非相反臨界電流

宮坂優太 ^A, 河原崎諒 ^A, 安藤冬希 ^A, 李恬 ^A, 石塚淳 ^B, 久富隆佑 ^A, 塩田陽一 ^A,森山貴広 ^A, 柳瀬陽一 ^B, 小野輝男 ^A (京大化研 ^A, 京大院理 ^B)

Nonreciprocal critical current in a Rashba superconductor Y. Miyasaka^A, R.Kawarazaki^A, F. Ando^A, T. Li^A, J. Ishizuka^B, R. Hisatomi^A, Y. Shiota^A, T. Moriyama^A, Y. Yanase^B, T. Ono^A ^AICR, Kyoto Univ., ^BDept. Phys., Kyoto Univ.

<u>はじめに</u>

物質中に空間反転対称性の破れが存在する時、非相反的な電荷輸送現象が生じる。近年、対称性の 低い層状物質において現れる非相反抵抗が、超伝導の揺らぎ領域では常伝導状態に比べて桁外れに増 大することが明らかとなり注目を集めている[1]。今回我々は、積層方向に対して反転対称性の破れた Nb/V/Ta 超伝導人工格子を作製し、その超伝導-常伝導転移付近において輸送測定を行った。その結 果、薄膜面内方向に磁場を印加することで Nb/V/Ta 人工格子が非相反的な臨界電流を示すことが明ら かとなった。[2]

<u>実験方法</u>

DC スパッタ法によって MgO(100) sub./[Nb(1.0)/V(1.0)/Ta(1.0)]₄₀/SiO₂(5.0)(単位は nm)の試料を成膜 し[3]、細線上に加工した。薄膜面内方向に磁場を印加しながら 4 端子測定を行い、Nb/V/Ta 人工格子 の臨界電流を測定した。

<u>実験結果</u>

Fig.1 に 4 端子測定法による、抵抗の直流電流依存 性を示す。この結果より、Nb/V/Ta 人工格子の臨界電 流が印加電流の方向によって異なることが分かっ た。また、順方向(実線)と逆方向(点線)の臨界 電流の大小関係は、外部磁場の符号によって決まる ことも明らかとなった。

次に、この非相反的な臨界電流を利用し、電流方 向および磁場方向に応じて超伝導一常伝導スイッチ ングできることを実証した(Fig.2)。超伝導状態の順 方向と常伝導状態の逆方向で抵抗比は 2,000 倍を超え ており、200 Oe という比較的小さな磁場でダイオー ドの方向を切り替えられることが分かった。今回観 測された一連の非相反現象は、薄膜積層方向の空間 反転対称性の破れによる効果であると考えられる。 [1] R. Wakatsuki *et al., Sci. Adv.* **3**, e1602390 (2017).

- [2] F. Ando et al., Nature **584**, 373(2020)
- [2] 1.7 mao et ut., Nuture 304, 375(2020)

[3] F. Ando et al., J. Magn. Soc. Jpn. 43, 2 (2019).



Fig.1 Current dependences of the sheet resistance under various magnetic fields at 4.2 K.



Fig.2 Temperature dependence of the sheet resistance of the $[Nb/V/Ta]_{40}$ film and alternating switching between the superconducting and normal conducting states.

電圧誘起巨大トンネル磁気キャパシタンス効果の観測と理論的解明

緒方健太郎*、中山雄介*、Gang Xiao**、海住英生****、 (*慶大理工、**ブラウン大理、***慶大スピンセンター)

Observation and theoretical calculation of voltage-induced large tunnel magnetocapacitance effect

K. Ogata*, Y. Nakayama*, G. Xiao** and H. Kaiju*.***

(*Keio Univ., **Brown Univ., ***Keio Univ. CSRN)

<u>はじめに</u>

近年、磁気トンネル接合(MTJ)におけるトンネル磁気キャパシタンス(TMC)効果は、トンネル磁気抵抗 (TMR)効果には見られないいくつかの新現象を示す他、高感度磁気センサや磁気メモリへの応用も期待され ていることから、国内外で注目を集めている[1,2]。TMC 効果の興味深い特徴の一つとして、電圧に対するロ バスト性が挙げられる。例えば、TMC の V_{1/2}(=ゼロバイアス付近の TMC 比が半分になるときの電圧)は TMR と比較して 2 倍程度大きいことが報告されている[3]。このようなロバスト性に関連して、本研究では、室温 にて 300%を超える巨大な電圧誘起 TMC 効果の観測、及びその理論計算フィッティングに成功したので、詳 細について報告する。

<u>実験方法</u>

超高真空マグネトロンスパッタ装置を用いて、熱酸化 Si 基板上 に Ta/Co₅₀Fe₅₀/IrMn/Co₅₀Fe₅₀/Ru/Co₄₀Fe₄₀B₂₀/MgO/Co₄₀Fe₄₀B₂₀/Ta/Ru から構成される MTJ を作製した。強磁性層 Co₄₀Fe₄₀B₂₀の膜厚は 3 nm、絶縁層 MgO の膜厚は 2 nm とした。微細加工にはフォトリソ グラフィーとイオンミリング法を用いた。接合面積は 1800 µm² と した。TMC および TMR 効果の測定には、室温磁場中交流 4 端子 法を用いた。

実験結果

図1に電圧印加時のTMC 効果を示す。周波数160 Hz、印加電 E 92 mV の条件下で300%を超えるTMC 比が観測された。図2に 周波数30、160、400 Hz におけるTMC 比のバイアス電圧依存性 を示す。TMC 比はある特定の電圧範囲内で増加し、最大値を示し た。また、TMC 比の電圧依存性は周波数160Hz で最も大きな挙動 を示すこともわかる。これらの実験結果は、放物線バリア近似、 スピン依存ドリフト拡散モデル、Debye-Fröhlich モデル[4]に加え て、シグモイド関数を取り入れた Zhang モデル[5]による計算結果 と良い一致を示した。これは Zhang モデルにおけるスピンフリッ プが巨大な電圧誘起 TMC 効果に大きな影響を及ぼすことを意味 する。講演ではより詳細な実験・計算結果について報告する。

60 $V_{\rm DC} = 92 \text{ mV}$ 50 Capacitance (nF) = 160 Hz 40 30 20 332 10 0 0 Magnetic field (kOe) 図 1: 電圧印加時の TMC 効果 500 30 Hz 160 Hz 400 Hz Exp 400 Exp. Exp. Cal. TMC (%) 300 200 100

0

 $V_{\rm DC}~({\rm mV})$

100

200

参考文献

- [1] H. Kaiju et al.: Appl. Phys. Lett. 107, 132405 (2015).
- [2] T.-H. Lee *et al.*: *Sci. Rep.* **5**, 13704 (2015).
- [4] H. Kaiju et al.: Sci. Rep. 7, 2682 (2017).

[3] A. M. Sahadevan *et al.*: *Appl. Phys. Lett.* **101**, 162404 (2012).
[5] S. Zhang *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **79**, 3744 (1997).

-200

-100

図 2: 各周波数における TMC 比の バイアス電圧依存性

Ni₇₈Fe₂₂/Mq₃(M = Al, Er)/Ni₇₈Fe₂₂ナノ接合素子における

室温磁気抵抗効果

千秋賀英子*、佐々木悠馬**、中山雄介*、三澤貴浩**、小峰啓史***、星野哲久****、 芥川智行****、藤岡正弥**、西井準治**、海住英生*·****

(*慶大理工、**北大電子研、***茨大工、****東北大多元研、*****慶大スピンセンター)

 $Room\ temperature\ magnetoresistance\ effect\ in\ Ni_{78}Fe_{22}/Mq_3 (M=Al,\ Er)/Ni_{78}Fe_{22}\ nanoscale\ junctions$

K. Senshu*, Y. Sasaki**, Y. Nakayama*, T. Misawa**, T. Komine***, N. Hoshino****,

T. Akutagawa****, M. Fujioka**, J. Nishii** and H. Kaiju******

(*Keio Univ., **Hokkaido Univ. RIES, ***Ibaraki Univ.,

****Tohoku Univ. IMRAM, *****Keio Univ. CSRN)

<u>はじめに</u>

分子スピントロニクスデバイスでは、スピン軌道相互作用(SOI)、及び超微細相互作用(HFI)が弱い分子材料 を選択することにより、長いスピンコヒーレンス長、及び大きな磁気抵抗(MR)効果の実現が期待できる[1,2]。 本研究では、磁性薄膜エッジを利用した分子ナノ接合作製手法[3]を用いることでNi₇₈Fe₂₂/Mq₃(M = Al, Er, q = 8-hydroxyquinolinato)/Ni₇₈Fe₂₂ナノ接合素子を作製し、電気伝導特性、及び磁気抵抗効果を調べた。

<u>実験方法</u>

Ni₇₈Fe₂₂薄膜電極の作製にはイオンビームスパッタ法、熱圧 着法、及び化学機械研磨法を用いた。分子の成膜にはスピンコ ーティング法を用いた。これにより図1の挿入図に示すナノ接 合素子を作製した。素子の電気磁気特性評価には磁場中直流四 端子法、及び集光型磁気光学カー効果法を用いた。

<u>実験結果</u>

図1にNi₇₈Fe₂₂/Alq₃/Ni₇₈Fe₂₂素子における抵抗の接合面積依 存性を示す。計算結果との比較により、電気伝導特性には接合 面積に対応して量子状態、古典状態、及びそれらの遷移状態が 存在することが明らかになった。図2(a)に低抵抗を示したナノ 接合(接合面積 $S = 33 \times 33$ nm²)の MR 効果を示す。室温にて MR 効果の観測(MR 比=0.3%)に成功した。図2(b)に Ni₇₈Fe₂₂/Erq₃/Ni₇₈Fe₂₂素子の MR 効果を示す。MR 比は 0.7%を 示し、Ni₇₈Fe₂₂/Alq₃/Ni₇₈Fe₂₂素子の MR 比よりも2倍程度大き くなることがわかった。実験結果はJulliere モデルによる計算 結果と良い一致を示した。Al の核スピンが 5/2 であることに対 し、Er の核スピンは0 であることから、HFI が小さい Erq₃を 用いることが大きな MR 比の観測に至ったと考えられる。

<u>参考文献</u>

- [1] C. Barraud et al., Nat. Phys. 6, 615 (2010).
- [2] X. Zhang et al., Nat. Commun. 4, 1392 (2013).
- [3] T. Misawa et al., Appl. Surf. Sci. 390, 666 (2016).



図1Ni₇₈Fe₂₂/Alq₃/Ni₇₈Fe₂₂接合素子における 抵抗の接合面積依存性



図2 室温でのNi₇₈Fe₂₂/Mq₃/Ni₇₈Fe₂₂接合素子 (S = 33×33 nm²)の磁化曲線と MR 効果 ((a)M = Al、(b)M = Er)

Investigation of negative spin-polarization in Fe_xCr_{1-x} thin films for spin-torque oscillator

Nagarjuna Asam¹, Tomoya Nakatani¹, Hossein Sepehri-Amin¹, Yohei Kota², Yuya Sakuraba¹, Kazuhiro Hono¹

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

²National Institute of Technology, Fukushima Collage, Iwaki, Fukushima 970-8034, Japan

Magnetic materials having negative spin polarization have recently attracted attention because of potential application¹⁾ in the spin torque oscillator (STO) for Microwave assisted magnetic recording (MAMR). FeCr is one of the candidate materials showing negative spin polarization. Experimentally, Vouille *et al.* reported the spin polarization of Fe₇₀Cr₃₀ at low temperature (4.2 K) to be -0.28⁴⁾. Shimizu et al. have already demonstrated¹⁾ the reduction of threshold current density for the spin transfer torque (STT) induced magnetization precession using FeCr as a spin injection layer (SIL) of STO. However, for practical application, fundamental study of this material is necessary to answer the following several questions. ; What is the optimal composition of Fe_xCr_{1-x} for maximum MR ratio? How much is the theoretical bulk spin polarization (β) and the experimental β at room temperature? To answer these questions, we performed systematic study on the Fe_xCr_{1-x} film and those-based CPP-GMR devices.

The electronic conductivity of majority and minority spin electrons in Fe_xCr_{1-x} was calculated based on Kubo-Greenwood formula employing a method similar to the one previously reported for CoFe³). Our result shows very large negative spin-polarization ($\beta < -0.8$) for Fe_{1-x}Cr_x for x > 0.1, with progressively increasing β as x increases. Experimentally, we made a series of several current perpendicular-to-plane giant magnetoresistance (CPP-GMR) devices as shown in figure 1(a) using Fe_xCr_{1-x}(t_{FeCr}) as the spin injection layer where x is chosen among {x=0.2, 0.3 and 0.4}, t_{FeCr} (thickness of Fe_xCr_{1-x} layer) is varied from 2 nm to 15 nm. For each thin film structure, we microfabricated pillar shaped CPP-GMR devices using as-deposited films and performed electrical characterization. Figure 1(b) shows an example of negative sign of GMR arising from the negative spin polarization of Fe_xCr_{1-x}. Our study showed that the best composition of Fe_xCr₁.

x is x=0.4 for maximum negative MR ratio. We also estimated the bulk spin-polarization (β) of Fe₇₀Cr₃₀ to be -0.13, which is much lower than the theoretical value. The possible reason for large deviation of experimental ß from theoretical value examined was by microstructure and element-resolved analysis for the Fe_xCr_{1-x} films.

References:

- Shimizu M et al. The 39th Annual conf. on Magnetics in Japan, Nagoya, 2015, 10pE-3.
- 2. Barnaś, J., et al. Phys. Rev. B Condens. Matter Mater. Phys. 72, 024426 (2005).



Figure 1. Negative sign of magnetoresistance (MR) in $Fe_{1-x}Cr_x(t_{FeCr})/Cu(3 \text{ nm})/Fe_{68}Co_{32}(5 \text{ nm})$ (a) Film structure (b) MR curves showing negative MR ratio for Cr buffer layer and t_{FeCr} =5nm

- 3. Kota, Y., et. al., J. Appl. Phys. 105, 07B716 (2009).
- 4. Vouille, C., et al. Phys. Rev. B Condens. Matter Mater. Phys. 60, 6710–6722 (1999).

微細素子における AFC 構造効果のシミュレーション

木村大貴、仲谷栄伸 電気通信大学、情報理工学研究科 Computer simulation of AFC effect for small MTJ Hiroki Kimura, Yoshinobu Nakatani

Graduate School of Infomatics and Engineering, The University of Electro-Communications

はじめに

スピントルクにより磁化反転 [1] を行う STT-MRAM[2] は、高密度化のために記録素子の微細化、及び反転電流密 度の低減などが必要とされている。近年、自由層の膜厚を厚くすることで体積の増加、及び形状異方性を利用して、 熱安定性を確保しながらも素子を微細化可能であることが示された [3]。しかし、この手法では高速動作に向けて反転 電流密度の低減が課題となっている。以前我々は、直径 d = 30 nm、膜厚 h = 2 nm の自由層に対し、反強磁性交換 結合 (AFC) 構造を用いることにより、反転電流密度を低減可能であることを示した [4]。本研究では、以前の研究で 用いた形状よりも自由層の直径を小さくし、膜厚を様々に変化させた形状を考え、AFC 構造による反転電流密度の低 減効果の有無を調査した。

計算条件

材料定数は CoFeB の値を用い、飽和磁化 $M_{\rm s} = 600 \,{\rm emu/cm^3}$ 、交換スティッフネス定数 $A = 1.0 \times 10^{-6} \,{\rm erg/cm}$ 、 スピン分極率 P = 1.0、磁気回転比 $\gamma = 1.76 \times 10^7 \,{\rm rad/(Oe \cdot s)}$ とした。また、スピン電流のパルス幅 $t_{\rm p} = 1.0 \,{\rm ns}$ 、 直径 $d = 10 \,{\rm nm}$ 、上層の膜厚 h_1 は 2 ~ 16nm と変化させ、下層の膜厚 h_2 は上層との比率より定めた。今回は $h_2/h_1 = 0$ (単層構造: SL), 1/4 となる形状を考えた。またこのとき、異方性定数 $K_{\rm u}$ は熱安定性指数 $\Delta = 60$ となる ように定めた。以上の条件より、磁化反転シミュレーションを行い、反転電流密度 $j_{\rm sw}$ を調べた。

結果

まず、直径 d = 10 nm における各膜厚による熱安定性指数 $\Delta = 60$ となる異方性定数 K_u を図 1 に示す。以前の計算で用いた形状における熱安定性指数 $\Delta = 60$ となる異方性定数は 3.48 Merg/cm³ であった。そのため、 d = 10 nm, $h_1 \ge 10$ nm においては、以前の計算で用いた形状よりも小さい異方性定数で良いことが確認できた。次 に、得られた異方性定数を用いて、シミュレーションにより反転電流密度 j_{sw} を求めた。結果を図 2 に示す。図より、 膜厚 h_1 が大きくなると体積が増えるため、反転電流密度 j_{sw} が大きくなることが確認できた。ただし、損失定数 α を小さくすることにより、AFC 構造によって反転電流密度 j_{sw} を低減可能であることがわかった。また、以前の研究 において示された程度の反転電流密度の低減率が得られていることも確認できた。よって、微細素子に対しても AFC 構造による反転電流密度の低減効果を得られることがわかった。



参考文献

- [1] J. C. Slonczewski, J. of Magn. Magn. Mater., 159, 1 (1996).
- [2] L. Thomas, et al., IEEE Intertnational Electron Device Meeting pp. 27.3, 1-4 (2018).
- [3] K. Watanabe, et al., Nat. Commun., 9, pp. 5–10, (2018).
- [4] K. Yamada, et al., J. Appl. Phys., **127**, 133906 (2020).

TMR センサを用いたプロトン核磁気共鳴信号の検出

大兼 幹彦¹, 我妻 宏¹, 水上 成美², 藤原 耕輔³, 熊谷 静似³, 安藤 康夫¹ (¹東北大学工学研究科, ²東北大学材料科学高等研究所,³スピンセンシングファクトリー(株))

Detection of NMR signal by TMR based sensors

M. Oogane¹, H. Wagatsuma¹, S. Mizukami², K. Fujiwara³, S. Kumagai³, Y. Ando¹

(¹Graduate School of Engineering, Tohoku University, ²AIMR, Tohoku University,

³Spin Sensing Factory Corp.)

はじめに

強磁性トンネル接合を用いた磁気センサ (TMR センサ) の高感度化が飛躍的に進んでおり, ヒトの心臓や 脳から発生する微弱な生体磁場の検出が可能になっている¹⁾。本研究では、プロトンの核磁気共鳴 (NMR) 信 号を TMR センサにより検出することを目的として研究を行った。プロトンの NMR 信号が, 地磁気程度の微 弱な外部磁場下で検出可能になれば, 将来的にコンパクトな磁気共鳴画像診断装置 (MRI) への応用が期待で きる。

実験方法

水を含んだペットボトルサイズの容器に、プロトン核磁化を励起するためのソレノイドコイルを巻き、容器中央に TMR センサを配置した。また、コイル付き容器の外側に、外部磁場印加用のヘルムホルツコイルを 設置した (図 1)。ソレノイドコイルにパルス電流を印加して核磁化を励起した後、ヘルムホルツコイルによ り発生させた直流外部磁場方向に核磁化が緩和する過程を TMR センサによって測定した。

実験結果

NMR 測定に用いた TMR センサの性能を評価した結果,その磁場分解能は1 kHz において約 300 fT/Hz^{1/2} と非常に小さいことが分かった。図 2 に直流外部磁場を約 40 μ T とした場合の,核スピンの自由誘導減衰 (FID) 運動に起因する NMR 信号の一例を示す。明瞭な FID 信号が観測され,またその周波数は、プロトン核磁化の共鳴周波数と一致した。これらのことから、TMR センサにより、明瞭な NMR 信号の観測に成功した と言える。

謝辞

本研究は JST-S イノベプロジェクト、東北大学先端スピントロニクス研究開発センター、および、スピントロニクス学術連携研究教育センターの支援を受けて行われた。







図2 測定した NMR 信号 (挿入図は拡大図)

<u>参考文献</u>

1) K. Fujiwara et al., Appl. Phys. Express, 11 023001 (2018).

CoFeBTa アモルファス軟磁性層を用いた TMR センサ

Mahmoud Rasly, 中谷友也, 李 江南, Hossein Sepehri-Amin, 介川裕章, 桜庭裕弥 (物質・材料研究機構) TMR sensors with amorphous CoFeBTa soft magnetic layer M. Rasly, T. Nakatani, Jiangnan Li, H. Sepehri-Amin, H. Sukegawa, Y. Sakuraba (National Institute for Materials Science)

<u>はじめに</u>

トンネル磁気抵抗(TMR)を用いた磁気センサにおいて、用途に応じてセンサの磁気特性を設計すること が重要である.生体磁気や欠陥検査など微弱な磁界の検出には、軟磁性で高感度かつ、低ノイズのセンサが 必要である.そのようなTMR センサの自由層として、NiFe(パーマロイ)と CoFeBの積層構造が報告され ているが[1]、一般にNiFeと結晶化 CoFeBの結晶対称性の違いによりTMR 比が低下することが問題である. CoFeSiB などアモルファス軟磁性材料も有効であるが[2]、300 °C 程度で結晶化して軟磁性が損なわれること が課題である[3].そこで本研究では、CoFeB に Ta を添加することで結晶化を抑制した、CoFeBTa (CFBT)を 自由層に用いた TMR 素子の磁気特性、TMR および低周波ノイズ特性を調査した.

<u>実験方法</u>

TMR 素子の積層構造は、下部電極/Ta (5)/CFBT (20)/Ta (0.3)/CoFeB (3)/MgO (1.8)/CoFeB(2.5)/CFBT (0.6)/CoFe (0.5)/Ru (0.8)/CoFe (3)/IrMn (8)/Ru (8) (膜厚は nm)の上部ピンのスピンバルブである. CFBT は Co₄₀Fe₄₀B₂₀と Ta の同時スパッタにより成膜し、Ta 濃度は 9 at. %である. スピンバルブ素子を磁界中で 2 度 アニールすることで、固定層磁化と自由層の容易軸が直交した磁化配列[1]を実現した. 単一素子およびフル ブリッジの低周波ノイズ特性を、FFT アナライザにより測定した.

<u>実験結果</u>

図1に TMR-磁界特性を示す. 2度目のアニール温度 (T_{2nd}) が 200 °C の場合, y 方向の自由層の磁気異方性と, x 方向のピン方向の直交関係 により,ほとんどヒステリシスのない線形な TMR 曲線が得られ,磁気 センサとして好ましい特性である. dTMR/dH (= $dR/dH \cdot 1/R_{min}$)で定義さ れる感度は最大 70 %/mT である. 一方, T_{2nd} = 250 および 280 °C の場 合, TMR 曲線はヒステリシスを示す. これは, x 方向にも誘起された 自由層の磁気異方性により, Stoner-Wohlfarth モデルで説明できる.

図 2 は 50 µm 径の単一素子の、中間磁化状態(図 1 で µ0H=+1 mT) におけるノイズスペクトラムである.1 Hz-10 kHz の周波数帯域では 1/f ノイズが支配的であり、その電圧密度($\sqrt{S_v}$)はバイアス電圧(V_b)に比例 して増大する.また、 $V_b = 60$ mV においてランダムテレグラフノイズ が観測された.10 Hz における V_b で規格化したノイズレベル($\sqrt{S_v}/V_b$) は、中間磁化状態で 1.3 nV/ $\sqrt{\text{Hz}}$ /mV、および平行磁化状態で 0.7 nV/ $\sqrt{\text{Hz}}$ /mV であり、NiFe を用いた場合の 3.3 nV/ $\sqrt{\text{Hz}}$ /mV (平行磁化状 態)に比べ小さく、アモルファス CFBT の優位性が示された.また、 最小検出磁界(detectivity)は、10 Hz において 2.2 nT/ $\sqrt{\text{Hz}}$ であった.

参考文献 [1] Fujiwara et al. J. Appl. Phys. 111, 07C710 (2012), Jpn. J. Appl. Phys. 52, 04CM07 (2013). [2] Kato et al. Appl. Phys. Express 6, 103004 (2013). [3] Jimbo et al. J. Appl. Phys. 117, 17A313 (2015).



図1TMR 曲線のアニール温度依存性



[CoPd/Pd]/[Co/Pd]ハイブリッドメモリ層の熱アシスト STT 磁化反転

趙望臻,加藤剛志,大島大輝,園部義明*,高橋茂樹*,岩田聡

(名古屋大学,*サムスン日本研究所)

Thermally assisted STT switching of hybrid memory layer using CoPd/Pd and Co/Pd multilayers

W. Zhao, T. Kato, D. Oshima, Y. Sonobe*, S. Takahashi*, S. Iwata

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

1. はじめに

スピントランスファートルク(STT)磁化反転方式は Gbit 級磁気ランダムアクセスメモリ(MRAM)の書き込 み手段として利用されているが、10 Gbit 級の大容量の MRAM を実現するには、高い熱安定性(Δ)と低い臨界電流 密度(J_c)の両立が求められている。我々は低キュリー温度(T_c)の CoPd/Pd 多層膜(ML)と高 T_c の Co/Pd ML を 用いたハイブリッドメモリを設計し、熱アシストによる高効率的な STT 磁化反転が実現できることを検証した [1-3]。今回、スピン偏極電流により磁化反転のトルクが加わる高 T_c 層の層厚比を変化させた[Co(x) / Pd(1.6-x)]₁ / [CoPd / Pd]₂ (x = 0.4, 0.6, 0.8)ハイブリッドメモリ層を用い、STT 磁化反転のΔと J_c の温度依存性を調べた。さらに、 ハイブリッドメモリ層の実効磁気異方性定数(K_{eff})の温度依存性などと STT 磁化反転との関係を検討した。

2. 実験方法

熱酸化膜付 Si 基板上にマグネトロンスパッタ法により, Si Sub/Ta(10) / Cu₇OTa₃₀(150) / Pt(5) / [Pt(1.0) / Co(0.6)]₆ ML / Cu(2.5) / [Co(x) / Pd(1.6-x)]₁ ML / [Co₄₈Pd₅₂(0.4) / Pd(1.2)]₂ ML / Cu(5) / Ta(5) (層厚の単位は nm) という GMR 構 造を作製した。光露光, EB 露光及び Ar⁺イオンエッチングにより, GMR 膜を微細加工し, 接合部の直径が 120 nm から 300 nm までの CPP-GMR 接合を作製した。STT 磁化反転は CPP-GMR 接合に電流パルス(パルス幅 τ = 10 µs -100 ms)を印加した後の抵抗値を測定することで観測した。パルス幅依存性を τ = 1 ns まで外挿し, 臨界反転電流密 度 J_{c0} , およびΔを見積もった。試料を加熱ステージに置いて測定することで, J_{c0} , Δの温度依存性を調べた。また, ハイブリッドメモリ層のみの Si Sub/ Ta(5) / [Co(x) / Pd(1.6-x)]₁ ML / [Co₄₈Pd₅₂(0.4) / Pd(1.2)]₂ ML / Ta(2) を作製し, 実効垂直磁気異方性 K_{eff} を測定した。

3. 実験結果

Fig. 1 は x = 0.4, 0.6, 0.8 のハイブリッドメモり層の J_{c0} , Δ の温度依存性を示している。 J_{c0} と Δ はともに温度上 昇により減少し, 熱アシスト STT 磁化反転が確認される。x = 0.4, 0.6 に対し, x = 0.8 では J_{c0} が大きく減少して いる。一方, x = 0.8の Δ は他の試料に対し, 大きく減少していない。Fig. 2 はハイブリッドメモリの K_{eff} の温度依 存性を示している。xの増加により磁化が増大するため, K_{eff} と Δ の温度依存性の差異は STT 磁化反転の反転核の 大きさの差に起因すると考えられる。x = 0.8の Δ が他の試料に対し大きく減少していないのに対し, J_{c0} は大きく 減少している。この原因として, x = 0.8 はx = 0.4, 0.6 に対し, ダンピング定数が小さいためと考えられる [4]。 これらの結果から, 界面に低ダンピング, 高 T_c 材料を用いることが, 室温での J_{c0} 低減に寄与したと考えられる。 また, 高温では, 低 T_c の CoPd/Pd 多層膜の磁化が消失することで, Δ が減少し, J_{c0} が低下するという熱アシスト 効果が観測されている。





4.参考文献

Machida et al., IEEE Trans. Magn., 53, 2002205 (2017).
 W. Zhao et al., IEEE Trans. Magn., 54, 3450405 (2018).
 W. Zhao et al., J. Magn. Magn. Mater., 493, 165749 (2020).
 T. Kimura et al., Jpn. J. Appl. Phys., 57, 09TD01 (2018).



Fig. 2 Temperature dependence of effective anisotropy K_{eff} of $[Co(x)/Pd(1.6-x)]_1 / [CoPd/Pd]_2$.

D03-FeAlSiエピタキシャル電極を用いた MTJ 素子の作製

赤松昇馬、大兼幹彦、角田正清、安藤康夫 (東北大学大学院 工学研究科) Fabrication of MTJs using FeAlSi epitaxial electrode with low magnetic anisotorpy S. Akamatsu, M. Oogane, M. Tsunoda, Y. Ando (Graduate School of Engineering, Tohoku University)

はじめに

強磁性トンネル接合(MTJ)センサの感度向上のために、高トンネル磁気抵抗(TMR)比と軟磁気特性を 両立するフリー層材料が求められている。本研究では D0₃規則構造を有し、良好な軟磁気特性を示す Fe₈₅Al_{5.} $_{4}$ Si_{9.6}(センダスト、以下 FeAlSi)に着目した。優れた軟磁気特性に加えて、Fe 電極に類似した結晶構造を有 することで、MgO 絶縁層を介した Δ_1 電子のコヒーレントトンネリングによる高 TMR 比が期待される[1]。先 行研究により[2]、MgO 基板上で D0₃-FeAlSi エピタキシャル薄膜の作製に成功し、良好な軟磁気特性も観測 している。本研究の目的は、FeAlSi エピタキシャル電極を用いた MTJ 素子を作製し、その TMR 特性を評価 することである。

実験方法

MgOsub./MgO(20)/FeAlSi(30)/MgO(2.0)/CoFe(5)/IrMn(10)/Ta(5)/Ru(10)(in nm)(*T*_{FeAlSi}=400°C,*T*_a=300-425°C w/1 T)構造の MTJ 多層膜をマグネトロンスパッタ法で作製した。また、作製した多層膜をフォトリソグラフィお よび Ar イオンミリングを用いて MTJ 素子形状に微細加工した。作製した MTJ 素子について、直流 4 端子法 により磁気抵抗特性を評価した。

実験結果

Fig. 1に D0₃-FeAlSi エピタキシャル電極を用いた MTJ 素 子の磁気抵抗曲線の熱処理温度依存性を示す。300℃以上の 熱処理によって、D0₃-FeAlSi を電極とした MTJ 素子におい て、初めて TMR 効果の観測に成功した。最大の TMR 比は 熱処理温度が 325℃において、58.4%であった。さらに、D0₃ -FeAlSi の良好な軟磁気特性を反映した、比較的小さな反転 磁場も確認できた。一方、350℃を超える熱処理によって、T MR 比の大きな減少が観測された。今後、FeAlSi 電極層、お よび、下地層の成膜条件のさらなる最適化を行い、熱処理温 度耐性を改善することによって、TMR 比のさらなる向上が 期待される。以上の結果より、D0₃-FeAlSi は、MTJ センサの 感度向上に有望な材料と考えられる。





謝辞

本研究は JST-S イノベプロジェクト、東北大学先端スピントロニクス研究開発センター、および、スピントロニクス学術連携研究教育センターの支援を受けて行われた。

<u>参考文献</u>

[1] W. H. Butler et al., Phys. Rev. B, 63, 054416 (2001).

[2] S. Akamatsu et al., AIP Advances, 10, 015302 (2020).

強磁性亜鉛フェライトの合成と磁気及び磁気光学特性

安達信泰、中田勇輔、新海圭亮(名古屋工業大学) Preparation and magnetic and magneto-optical properties of of Zinc Ferrite N. Adachi, Y. Nakata, K. Shinkai (Nagoya Institute of Technology)

1.はじめに

可視光領域に高い透過率を示す ZnFe₂O₄は、反強磁性を示すことが知られているが、作製手法により強磁性を示す報告もあり、磁気光学結晶として期待できる¹⁾²⁾。我々は、有機金属分解法により焼成温度 500℃、焼成時間 1h で作製した ZnFe₂O₄ 薄膜が極低温で大きな磁化を示したことを報告した³⁾。この強磁性は、逆スピネル配列に起因すると考えられる。本研究では、さらに結晶化の際の熱処理を様々な条件で行うことで、ZnFe₂O₄ 薄膜の磁気特性の最適化、磁気光学特性を報告する。

2. 実験方法

ZnFe₂O₄薄膜は有機金属溶液(高純度化学)をシリカガラス基板上にスピンコーティングして成膜し、熱処理 結晶化して作製した。有機金属溶液は、Zn と Fe が 1:2 の組成比となるように混合し、溶液滴下後は 100℃で 30min 乾燥し、有機物を分解させるために 300℃で 30min 仮熱処理を行った。これを約 0.3µm の膜厚が得ら れるまで繰り返し、その後、熱処理を行い結晶化させた。熱処理は、温度を 400~1000℃、時間を 1min~12h まで変えて作製した。作製した試料に対し、XRD による結晶評価、SQUID による磁気特性の評価、またファ ラデー回転測定を低温で行った。

3. 結果と考察

結晶化した薄膜は、ZnFe₂O₄単相のスピネル構造を示す多結晶回折ピークのみが観測された。Fig. 1 に各焼 成条件で作製した試料の温度 4K での磁化曲線を示した。どの試料においても保磁力は 700 Oe 程度を示し、 強磁性は同じ磁性相に由来すると考えられる。10kOe の印加磁界において、495℃_1h では 34.1emu/g、500℃_2h では 44.5emu/g の磁化を示した。また、480℃_12h では 37.2emu/g の磁化を示したことから、大きな磁化を示 す焼成条件は、焼成温度 500℃付近・焼成時間 2h 程度から焼成温度 480℃付近・焼成時間 12h 程度の間にあ ると考えられる。また、温度 4~300K における磁気ヒステリシス曲線からアロットプロットからキュリー温 度を 190K 程度と見積もった。80 K におけるファラデー回転を Fig.2 に示す。磁界に対して負の回転角を示 し、膜厚当たりに換算すると、470nm で、-1.8×10³ deg/cm を示し、短波長領域で比較的大きなファラデー効 果を示すことが分かった。

謝辞:メスバウアー分光測定で、名古屋工業大学の壬生教授、田中准教授にお世話になりました。SQUID 測 定で、分子科学研究所の伊木氏、藤原氏らスタッフの皆様にお世話になりました。ここに感謝致します。 References

1) K. TANAKA et.al., J. Phys. Chem Solids Vol 59, No. 9, pp. 1611–1618 (1998)

2) N. Wakiya et.al. J. Mag. Mag. Mat. 310 (2007) pp.2546-2548

3) N.Adachi et.al. 13aC-9 日本磁気学会第42回学術講演会予稿集



Fig.1 The magnetization curves depending on annealing conditions for $ZnFe_2O_4$ films.



Fig.2. The Faraday Hysteresis curves at 80 K of $ZnFe_2O_4$

急冷により作製した高飽和磁化 Ca-Zn 系スピネルフェライト

橋本順平、柿崎浩一、神島謙二 (埼玉大学)

High saturation magnetization calcium-zinc spinel ferrite prepared by rapid cooling J. Hashimoto, K. Kakizaki, K. Kamishima

(Saitama Univ.)

緒言

スピネルフェライトは、一般に化学式 MeFe₂O₄(Me = Mg²⁺, Zn²⁺, Co²⁺, ...)で表される。¹⁾ Mg 以外のアルカリ土類二価イオンは Me サイトに入 らないと考えられていた。しかし先行研究²⁾のW型フェライト組成を 参考に CaZn₂Fe₁₆O₂₇の組成で焼成を行うと高飽和磁化の Ca 系スピネル と α-Fe₂O₃、Ca 系酸化物の混相が得られた。但し、このスピネルの単相 は得られていない。本研究では Ca-Zn 系高飽和磁化スピネルフェライ トの単相を得るための作製条件を検討し、飽和磁化値向上を試みた。

実験方法

作製方法は粉末冶金法であり、2通りの焼成過程で行った。原料粉 には CaCO₃, ZnO, α-Fe₂O₃を用い、Ca 系副生成物を抑制するため Ca の 少ない Ca0.5Zn2.5Fe16-xO27-8 組成となるように秤量し、湿式ボールミルで 24 時間混合後、乾燥させた。混合粉末を1 t/cm²でディスク状に加圧 成型し、T_s=1200~1300℃で5時間焼成した。焼成後、空冷(-200 K/h.) もしくは水冷により試料を得た。3)試料の結晶構造は粉末X線回折法 で同定し、磁気特性は超伝導量子干渉型磁束計(SQUID)を用いて測定 した。

実験結果

図1にCa_{0.5}Zn_{2.5}Fe_{16-x}O_{27-δ} (0≤x≤7)、T_S = 1300°C、急冷試料のX線 回折図を示す。どの試料もスピネルが主相であった。x=0ではα-Fe2O3 が異相として残存するが、1≤x≤7ではスピネルの単相となった。こ れに対し、空冷(-200 K/h.)の試料では0≤x≤7の範囲でスピネルが生成 したが、いずれも単相は得られず、異相として α-Fe₂O₃、Ca₃Fe₁₅O₂₅が生 (T_S = 1300°C・急冷)の飽和磁化 成した。

図2にCa0.5Zn2.5Fe16-xO27-& (0 ≤ x ≤ 7)、Ts = 1300°C、急冷試料の飽和磁化を示す。300Kではx=1で最大値 93 emu/g であり、1.8 K では x = 3 で最大値 146 emu/g であった。一方、空冷(-200 K/h.)した試料の飽和磁化の 最大値は x = 1 で、300 K 及び 1.8 K においてそれぞれ 48 emu/g および 87 emu/g であった。また、急冷試料は 導電性がありマグネタイト様スピネルであることが考えられるが、低温で通常のZn置換マグネタイト(約140 emu/g)⁴より高い飽和磁化値であった。この結果より、急冷により二価鉄を含むマグネタイト様スピネルが生 成しただけでなく、Caを添加したことによりイオン分布に変化が生じ、磁化が増加したと考えられる。

参考文献

- 1) S. Blundell, Magnetism in Condensed Matter, 97-98 (Oxford Univ. Press, 2001)
- 関川雄大, 柿崎浩一, 神島謙二; 第41回磁気学会学術講演会概要集, 5 (2017) 2)
- 3) E. W. Gorter, Philips Res. Rep. 9, 356-360 (1954)
- J. J. Went, E. W. Gorter, Philips Tech. Rev. 7, 185 (1952) 4)



(Ts=1300°C・急冷)の X線回折図



Ca系γ型六方晶フェライトの磁気特性に対する Ni, Zn 置換効果

今井大貴、柿崎浩一、神島謙二

(埼大院理工)

NiZn-substitution effect on magnetic properties of Ca-based y-class hexagonal ferrite

H. Imai, K. Kakizaki, K. Kamishima

(Saitama Univ.)

<u>はじめに</u>

Ca や Fe は地表付近での存在割合が大きく、資源的に豊富で毒性が低いという利点がある。そこで我々は Ca、Fe を用いた磁性体である Ca 系 γ 型六方晶フェライト A₄B₂₀O₃₃ (A, B = Ca, Co, Fe)¹⁰の作製を試みた。Braun らの試料の組成比 Ca : Co : Fe = 22 : 3 : 75 で試料を作製した結果、γ 型フェライトのほかに副生成物として非 磁性物質の CaFe₂O₄が生じ、γ 型フェライト本来の磁気特性を評価できなかった。しかし組成を Ca : Co : Fe = 4.0 : 0.7 : 15.3 とすることで γ 型フェライトの単相試料が作製できることを発見した。²¹ Braun らは二価遷移金 属が Zn の場合には γ 型フェライトは作製できないとしていたため、¹¹本研究では Co を Ni へ変更したうえで Zn 置換を試み、γ 型フェライトの作製条件ならびに磁気特性への影響について調べた。

<u>実験方法</u>

Ca: Zn: Ni: Fe = 4.0: x: 0.7-x: 15.3 となるように CaCO₃, ZnO, NiO, α-Fe₂O₃ を秤量し、遊星ボールミルによる粉砕を行 った後、ディスク状に加圧成型し、1225℃で本焼成した。試 料の結晶構造は粉末X線回折法で同定し、磁気特性は VSM と SQUID 磁束計を用いて測定した。

<u>実験結果及び考察</u>

図1はZn置換Ni- γ 型フェライト試料のX線回折図を示す。 すべての組成において γ 型フェライト単相となった。Braun ら は二価遷移金属をZnとした場合、通常 γ 型フェライトは作製 できず、Y₂O₃等の添加が必要であると指摘した。¹⁾しかし本研 究の組成においては、二価遷移金属をZnのみとした試料 (x=0.7)についても γ 型フェライトが単相で得られた。

図2は各試料の熱磁気曲線を示す。いずれの試料でもキュ リー点は一つであり、試料に含まれる強磁性体はγ型フェラ イトのみだった。これはX線回折図の結果と矛盾せず、また 得られた磁気特性がγ型フェライトのみに起因することを示 す。Niのみのγ型フェライトのキュリー点は233℃であり、 Znの置換量が増加するに従いキュリー点は減少した。そして Znのみのγ型フェライトではキュリー点は103℃となった。 キュリー点の減少は磁性イオンであるNiを非磁性イオンであ るZnに置換したことで、酸素を介した磁性イオン間の超交換 相互作用が弱くなったことに起因すると考えられる。

参考文献

- P. B. Braun and W. Kwestroo, Philips Res. Repts., 15, 394 (1960)
- 今井大貴、柿崎浩一、神島謙二;第9回CSJ化学フェス タ予稿集, P9-115 (2019)



図1 組成 Ca: Zn: Ni: Fe = 4.0: x: 0.7-x: 15.3、 Ts=1225°Cの試料のX線回折図



⊠ Ba₃Fe₁₀TiO₂₀

unknown

 \diamond h-BaTiO₂

• 18H-type

M-type

LiTi 置換 18H 型六方晶フェライトの作製

高橋久由、柿崎浩一、神島謙二 (埼玉大学 大学院 理工学研究科) Synthesis of LiTi substituted 18H-type hexaferrite H. Takahashi, K. Kakizaki, K. Kamishima (Graduate School of Science and Engineering, Saitama University)

<u>緒言</u>

18H 型六方晶フェライトは、S ブロックとT ブロックからなるY 型六方晶フェライトのT ブロックに六方晶チタン酸バリウム3化学 式分の層が挟まった積層構造である。本研究室の先行研究において 18H 型の組成を $Ba_5Me_{2,x}Ti_{3,x}Fe_{12+2x}O_{31}$ としたとき、x = 0.5で最適組 成となることがわかっている。¹⁾本研究では二価金属を $Li^+_{2/3}Ti^{4+}_{1/3}$ で置換した 18H 型フェライトを作製した。

<u>実験方法</u>

作製方法は2つあり、1つ目の作製方法は乾式焼成法である。原 料 粉 と し て BaCO₃, Li₂CO₃, TiO₂, α -Fe₂O₃ を 用 い て Ba₅(Li_{2/3}Ti_{1/3})_{2-x}Ti_{3-x}Fe_{12+2x}O₃₁($x = 0.125 \sim 1.250$)の化学量論組成になる ように秤量し、乳鉢で乾式混合を行った。得られた試料を加圧成型 し、1100^oC で 5 時間本焼成した。2 つ目の作製方法はエタノール焼 成法であり、エタノールを分散媒とした湿式混合を行った。これら の作製方法により得られた試料について粉末 X 線回折法により試 料の結晶構造を解析し、振動試料型磁力計(VSM)を用いて磁気特性 を測定した。

結果と考察

図 1 に乾式焼成法で作製した $Ba_5(Li_{2/3}Ti_{1/3})_{2-x}Ti_{3-x}Fe_{12+2x}O_{31}$ 試料の X 線回折図を示す。 $0.125 \le x \le 1.25$ の範囲で 18H 型が生成した。 しかし、いずれも単相は得られず、異相が残った。最も単相に近い のは x = 0.5 の試料であり、これが最適な組成であると考えられる。

図2にx = 0.5の組成で乾式焼成法とエタノール焼成法により作製 した試料(Ba₅(Li₂₃Ti_{1/3})_{1.5}Ti_{2.5}Fe₁₃O₃₁)のX線回折図を示す。エタノー ル焼成法で作製した試料は単相であった。このことから、Liを用い た18H型の作製には、エタノール焼成法が適していると考えられる。

図3に乾式焼成法とエタノール焼成法により作製したx=0.5の試料(Ba₅(Li₂₃Ti_{1/3})_{1.5}Ti_{2.5}Fe₁₃O₃₁)の熱磁気曲線を示す。乾式焼成法では キュリー点が2ヶ所存在した。低温側が18H型で、高温側がLiTi 置換系のM型フェライトに由来するものだと考えられる。エタノ ール焼成法では、M型フェライトのキュリー点は消失し、磁気的に も単相になった。

乾式混合ではなくエタノール湿式混合を行うことで局所的な組 成ずれによる副生成物の生成を抑制できたと考えられ、エタノール 焼成法により単相のLiTi置換18H型六方晶フェライトが得られた。

$T_{\rm s} = 1100^{\circ}{\rm C}$ x = 1.250a Milling and a start of the st A Barren . x = 0.875units) (arb. tile korely a x = 0.500Intensity trickater this day x = 0.12520 30 40 50 60 10 70 2θ (deg.) Cu-Ka $\boxtimes 1$ Ba₅(Li_{2/3}Ti_{1/3})_{2-x}Ti_{3-x}Fe_{12+2x}O₃₁ \mathcal{O} X 線回折図 \diamond *h*-BaTiO₃ • 18H-type \bigtriangledown M-type $T_{\rm s} = 1100^{\circ}{\rm C}$ dry mix (arb. units) tikkinle i ime hei Intensity ethanol ball mill 20 30 40 50 60 70 10 2θ (deg.) Cu-Ka $\boxtimes 2$ Ba₅(Li_{2/3}Ti_{1/3})_{1.5}Ti_{2.5}Fe₁₃O₃₁ OX 線回折図 H = 1 kOe $T_{\rm S} = 1100^{\circ}{\rm C}$ 20 dry mix



<u>参考文献</u>

1) K. Watanabe, T. Fujihara, K. Watanabe, K. Kakizaki, K. Kamishima : J. Phys. Soc. Jpn. 89, 014704, pp. 1-5 (2020).

Sr 置換 18H 型六方晶フェライトの作製

神治樹、柿崎浩一、神島謙二 (埼玉大学 大学院 理工学研究科) Synthesis of Sr substituted 18H-type hexaferrite H. Kan, K. Kakizaki, K. Kamishima (Graduate School of Science and Engineering, Saitama University)

緒言

六方晶フェライトは M 型や Y 型などがあり、これらは S ブロック((2MeFe₂O₄)^{0±},(2Fe₃O₄)²⁺)、R ブロック((BaFe₆O₁₁)²⁻)、T ブロック ((Ba₂Fe₈O₁₄)^{0±})を組み合わせた積層構造である(Me は二価遷移金属 イオン)。先行研究において、S ブロックとT ブロックで構成され る Y 型の T ブロック間に六方晶 BaTiO₃(*h*-BTO)3 化学式から成る 層が挟まってできた構造である 18H 型六方晶フェライトを見出し た¹⁾。18H 型の最適組成は Ba₅Me_{1.5}Ti_{2.5}Fe₁₃O₃₁ であることが分かっ ている。本研究では、18H 型六方晶フェライトに含まれるアルカ リ土類金属の Ba を Sr に換えて作製条件の探索を試みた。

実験方法

原料粉 SrCO₃, BaCO₃, ZnO, α-Fe₂O₃, TiO₂ を化学量論組成 (Sr_xBa_{5-x})Zn_{1.5}Ti_{2.5}Fe₁₃O₃₁となるように秤量した。これらを湿式ボー ルミルで24時間混合し、乾燥させた。混合粉末を1 t/cm²のディ スク状に加圧成型し、1250°C で5時間本焼成した。試料の結晶構 造は粉末 X 線回折法で同定し、磁気特性は振動試料型磁力計 (VSM)を用いて測定した。

結果と考察

図 1 に 1250°C で焼成した(Sr_xBa_{5-x}) $Zn_{1.5}Ti_{2.5}Fe_{13}O_{31}$ (0.00 $\leq x \leq$ 0.80)のX線回折図を示す。全ての試料で18H型が生成したものの、 $x \geq 0.20$ の試料では異相である立方晶 SrTiO₃(*c*-STO)相のピークが 観測された。

図2に1250°C で焼成した(Sr_xBa_{5-x})Zn_{1.5}Ti_{2.5}Fe₁₃O₃₁ (*x*=0.00~0.15) の熱磁気曲線を示す。単相が得られた試料ではキュリー温度が 100°C 付近であり、Sr 置換により 18H 型六方晶フェライトのキュ リー点は、ほぼ変化しなかった。

Sr 系 18H 型六方晶フェライトの生成限界が低いのは、STO の晶 系によるものと考えられる。18H 型は六方晶 *h*-BTO 層が挟まって できた構造である一方、六方晶 *h*-STO は存在しない。これにより 18H 型六方晶構造に固溶し難く比較的生成しやすい立方晶 *c*-STO が副生成物として生じたと考えられる。

以上より、Sr 置換 18H 型六方晶フェライト (Sr_xBa_{5-x})Zn_{1.5}Ti_{2.5}Fe₁₃O₃₁の単相作製限界は $x \le 0.15$ であることが分かった。

$T_{\rm s}$ =1250°C \checkmark 18H-type \diamond c-STO x = 0.80West and the state of the second Intensity (arb. units) 0.60 Les and the second second 0.40 0.20 a la miller la Tam a Baller a der ett 0.15 Y 0.10 TYTE TO WAR AND A THE TOWN 0.00 Unite Service a Trans There a stress a 10 20 30 40 50 60 70 2θ (deg.) Cu-Ka \boxtimes 1 (Sr_xBa_{5-x})Zn_{1.5}Ti_{2.5}Fe₁₃O₃₁ \mathcal{O}

X線回折図



参考文献

1) K. Watanabe, T. Fujihara, K. Watanabe, K. Kakizaki, K. Kamishima: J. Phys. Soc. Jpn. 89, 014704, 1 (2020).

六方晶フェライト Ba(Fe1-xScx)12O19の磁気相図

丸山健一(院生)¹,田中誠也(院生)¹,内海重宜¹,鬼柳亮嗣²,中尾朗子³,森山健太郎³,石川喜久³ (¹公立諏訪東京理科大学大学院,²日本原子力研究開発機構,³総合科学研究機構)

Magnetic phase diagram of hexagonal ferrite $Ba(Fe_{1-x}Sc_x)_{12}O_{19}$

K. Maruyama¹, S. Tanaka¹, S. Utsumi¹, R. Kiyanagi², A. Nakao³, K. Moriyama³, Y. Ishikawa³

(¹Suwa Univ. of Sci, ²Japan Atomic Energy Agency, ³CROSS)

<u>はじめに</u>

六方晶フェライト BaFe₁₂O₁₉に非磁性イオン Sc³⁺を添加した Ba(Fe_{1-x}Sc_x)₁₂O₁₉では,磁気モーメントが角度 配列したヘリカル磁性が発現する。六方晶フェライトで発現するヘリカル磁性は強誘電性も示すマルチフェ ロイックスとしても注目されている。我々は,様々な Sc 濃度 x を持つ Ba(Fe_{1-x}Sc_x)₁₂O₁₉の良質な単結晶の育 成に成功している^[1]。本研究では,育成した Ba(Fe_{1-x}Sc_x)₁₂O₁₉単結晶試料について中性子回折および磁化測定

を行い, T-x磁気相図を作成したので報告する。

<u>実験方法</u>

Ba(Fe_{1-x}Sc_x)₁₂O₁₉ 単結晶試料はフラックス法により育成した。J-PARC の物質・生命科学実験施設(MLF) BL18 に設置された,中性子単結晶回折装置 SENJU を用いて,TOF-Laue 中性子回折測定を様々な温度で行った^[2]。温度変化の速度は0.5 K/min とした。入射中性子波長は0.4-8.8Å である。また,試料振動型磁力計(VSM)を用いて磁化の温度変化を測定した。外部磁場は5 kOe とし, *c* 軸方向に印加した。



Fig. 1 Temperature dependence of (00l) neutron diffraction pattern for the *x*=0.128 crystal.

実験結果

(00/)中性子回折パターンの温度依存の一例として, x=0.128 結晶 の結果を Fig.1 に示す。(00 $2(n+\delta)$)で指数付けされる磁気衛星反射 が 212 K 以下で観測され、ヘリカル磁性とフェリ磁性の磁気相転 移温度が 212 K であることが分かった。ここで δ は磁気衛星反射の 非整合性を示す。x=0.153 結晶では全測定温度範囲(<296 K) で磁 気衛星反射が観測された。これら中性子回折と磁化の温度変化の 結果に基づいて作成した Ba(Fe_{1-x}Sc_x)₁₂O₁₉の磁気相図を Fig.2 に示 す。ヘリカル磁性は Sc 濃度 x>0.06 の領域で観測され、高 Sc 濃度 領域ではヘリカル磁性と反強磁性が共存した範囲があり、さらに 高 Sc 濃度範囲では反強磁性相のみ観測された。

謝辞

中性子回折実験は、J-PAR・MLF のユーザープログラム(課題番号 2018B0073, 2019A0211, 2019B0098, 2020A0034)の下で行われた。

参考文献

[1] S. Utsumi et al., ACS Omega in print.

[2] T. Ohhara et al., J. Appl. Crystallogr. 2016, 49, 120–127.



Fig. 2 Magnetic phase diagram of $Ba(Fe_{1-x}Sc_x)_{12}O_{19}$ in the *T*-*x* plane.

磁気表面プラズモン効果用 Mn-Zn-Fe-O 薄膜の熱処理過程の解析

黒岩海斗, 芦澤好人, 中川活二 (日本大学)

Analyses of annealing process of Mn-Zn-Fe-O thin films for magneto-plasmonic effect Kaito Kuroiwa, Yoshito Ashizawa, and Katsuji Nakagawa

(Nihon Univ.)

はじめに

表面プラズモンの励起状態が外部磁界によって変化する磁気表面プラズモン効果¹⁾が確認されている.誘電性磁性体を用いる検討として,これまで酸化物磁性体であるフェライト*M*Fe₂O₄(*M*=Ni,Co,Zn)薄膜を用いた Au/*M*Fe₂O₄二層薄膜構造で磁気表面プラズモン効果が報告されている²⁾.弱 磁界における大きな磁気表面プラズモン効果を実現するため,軟磁気特性に 優れる酸化物強磁性体である Mn-Znフェライト薄膜に着目した.良質な薄 膜を作製する手法として Mn-Zn-Fe-O スパッタ薄膜に焼成を行ったが,その 時の熱処理過程の各条件のわずかな変化により大きく異なる結晶配向の薄膜 が作製された.そこで本研究では,より良質な薄膜作製のため熱処理過程の 各条件で作製された薄膜の評価を行い,膜中の結晶状態遷移の解析を目的と する.

実験方法

試料は、RF マグネトロンスパッタリング法により SiO₂ 基板上に成膜後に 高真空赤外線ランプ加熱装置を用いて熱処理を施した.ターゲットには、 Mn_{0.5}Zn_{0.5}Fe₂O₄を用いた. Mn-Zn-Fe-O 薄膜は、一旦チャンバを 2.6×10⁻³ Pa 以 下まで排気後、スパッタ時 Ar ガス圧 0.4 Pa、投入電力 100 W の条件で、膜厚 50 nm 程度を成膜した.

熱処理過程を Fig. 1 に示す. 大気中において 300℃で焼成後, 一旦真空に 引いた後, 窒素を流入してから窒素中において 1100℃で焼成を行った. 1100℃時の焼成時間 20 min 及び昇温時間 30 s を固定し, 大気中焼成時間, 真 空引き時間, 窒素流入時間を変化した. 作製された薄膜の結晶構造は X 線回 析 (X-Ray Diffraction : XRD) 法を用いて評価し, 磁気特性は振動試料型磁力 計 (VSM) を用いて行った.

実験結果

窒素流入時間 $t_N & 2 \min および 10 \min として焼成した薄膜の XRD プロフ$ $ァイルを Fig. 2 に示す. <math>t_N = 2 \min$ では Mn-Zn フェライト結晶粒の(3 1 1), (4 0 0), (3 3 3)面からの回折線が観測された. 一方, $t_N = 10 \min$ では Mn-Zn フェラ イトの(4 0 0)面に起因すると考えられる強い回折線が観測された. 一方, Mn-Zn フェライト結晶では観測されない 41°付近にも回折線が観測されて いる. そこで配向の変化や他の生成物を解析するために,各熱処理過程 (Fig. 1 中の 1~5) における構造解析を行った. Fig. 3 には $t_N = 2 \min$ におい て熱処理過程の各条件における XRD プロファイルを示す. 300℃の熱処理過 程 1~3 では回折線が観測されなかったが,1100℃の熱処理過程 4,5 において Mn-Zn フェライト相からの回折線が観測された. 以上より,形成する相や配 向面が,結晶化温度以下での焼成条件により制御可能なことが示唆された.

参考文献

- 1) J. B. González-Díaz et al., Phys. Rev. B, 76, 153402 (2007).
- 2) K. Narushima et al., Jpn. J. Appl. Phys., 55, 07MC05 (2016).



Fig. 2 XRD profiles for Mn-Zn-Fe-O thin films with different annealing time $t_{\rm N}$, in $\rm N_2$ atmosphere at 300 °C.



30 35 40 45 50 55 60 65 Diffractionangle, 2θ [deg]

Fig. 3 XRD profiles for Mn-Zn-Fe-O thin films annealed at various conditions of the annealing process.

Fe-Si-Al ナノ結晶軟磁性合金の磁気特性

神山 望、松岡 孝、尾藤 輝夫^{*} (日本ケミコン株式会社、*秋田県立大学)

Soft Magnetic Properties of Fe-Si-Al Nano-crystalline Alloys Nozomu Kamiyama, Takashi Matsuoka, Teruo Bitoh* (Nippon Chemi-Con Corp., *Akita Prefect. Univ.)

<u>緒言</u>

Fe-Si-B-Nb-Cu 合金において、結晶粒径の微細化によって軟磁気特性が飛躍的に改善することが発見され既 に実用化が広く進んでいる¹⁾。結晶粒径が微細化すると各結晶粒の結晶磁気異方性が平均化され全体として 低減することから軟磁気特性が改善する。微細結晶は Si が固溶した α-Fe 相であり、その結晶磁気異方性は ゼロではない²⁾。Fe-Si に Al を加えた合金は古くから研究され、組成と結晶磁気異方性定数 K₁の関係が調べ られており K₁=0の組成が報告されている³⁾。筆者らは結晶磁気異方性を低減する目的で、Fe-Si の一部を Al で置換した組成で、液体急冷法によるアモルファス箔体から微結晶軟磁性材を試作した。結果、 Fe_{67.5}Si_{15.5}Al₆Nb₃B₇Cu₁の組成の時に高い透磁率を示し、その時の結晶磁気異方性定数 K₁がゼロに近いと考え られることを報告した⁴⁾。その後、上記組成を基に Fe と Si の組成比を変えた Fe-Si-Al ナノ結晶軟磁性材を試 作し、熱処理時の保持温度と磁気特性の関係を評価したので報告する。

<u>実験方法</u>

原料を Fe_{83-x}Si_xAl₆Nb₃B₇Cu₁(*x*=15.5~18.5)の組成で秤量し、Ar 雰囲気中で溶解し母合金を作製した。これを 液体急冷法により板厚 7~10µm のアモルファス合金箔にし、巻回してトロイダル状の閉磁路コアに加工後、 窒素雰囲気中で保持温度 520~590℃の条件で熱処理して結晶化させた。磁気特性は、トロイダルコアを樹脂 ケースに収納後、銅線を巻いて測定した。熱処理後の結晶相の構造は、XRD で確認した。磁歪は、トロイダ ルコアと同条件で熱処理した短冊状リボンをひずみゲージ法で評価した。

<u>結果</u>

それぞれ x=15.5:570℃、x=16.5:560℃、x=17.5:540℃、x=18.5:530℃で透磁率が最大となり、Si 濃度が高いと透磁率が最大となる保持温度は低くなった(Fig.1)。x=16.5の磁歪は、550℃,560℃=+1ppm、570℃,580℃=-1 ppm であり、560~570℃の間で正負が反転した。結晶化度は、550℃:67.7%→580℃:74.2%と保持温度が高いほど大きいことから、結晶相の体積変化が磁歪変化の原因と考えられる。x=16.5 では、結晶相の格子定数は、550℃:0.2845nm → 580℃:0.2843nm と保持温度が高いほど小さいことから、結晶相の Fe:Si:Al の比は保持温度により異なると考えられる。周囲温度によるインダクタンスの変化も保持温度で異なっており、

結晶相の結晶磁気異方性定数 K₁が異なる、すなわち結晶相の組成が異なると考えられる。以上より、Fe-Si-Alナノ結晶軟磁性合金の磁気特性は、その構造によって異なり、磁気特性が最大となった保持温度では結晶磁気異方性定数 K₁および磁歪が共にゼロ近傍となる構造であると推測される。また、母合金の Si 濃度が異なると同保持温度でも構造が異なるために、透磁率が最大となる保持温度が Si 濃度で異なると考えられる。

参考文献

1) G. Herzer, IEEE Trans. Magn., 25, 3327-3329(1989)

2) S.Arajs,H.Chessin,D.S.Miller,J.App.Phys.32,857-859(1961)

3) Zaimovsky, A.S., Selissky, I.P.J. Phys. (USSR)4,563-565(1941)

4) 日本金属学会 2020 年秋季 第167 回講演大会



Fig.1 Annealing temperature dependence of permeability (100kHz) of Fe_{83-x}Si_xAl₆Nb₃B₇Cu₁

15aD - 9

bcc 構造を持つ Fe-Co 合金単結晶膜の 磁歪特性に及ぼす熱処理の影響

秋田谷燿¹・芹澤伽那^{1,2}・大竹充¹・川井哲郎¹・二本正昭¹・桐野文良³・稲葉信幸⁴ (¹横浜国大,²中央大,³東京藝大,⁴山形大)

Influence of Heat Treatment on the Magnetostrictive Property

of Fe-Co Alloy Single-Crystal Films with bcc Structure

Teru Akitaya¹, Kana Serizawa^{1,2}, Mitsuru Ohtake¹, Tetsuroh Kawai¹, Masaaki Futamoto¹, Fumiyoshi Kirino³, Nobuyuki Inaba⁴ (¹Yokohama Nat. Univ., ²Chuo Univ., ³Tokyo Univ. Arts, ⁴Yamagata Univ.)

はじめに 大きな磁歪を示す軟磁性材料は,振動エネルギー・ハーベスタやカセンサなどへの応用に向けて研究されている.逆磁歪効果による磁化回転には,磁歪定数(λ)が大きいだけでなく,磁気異方性エネルギーも小さいことが必要である.また、コイル等で磁化回転を高感度に検出するためには、飽和磁束密度(B_{s})が高いことが望ましい.これらの要求を満たす材料として、近年、Coリッチ組成のFe-Co合金が注目されている¹⁻³⁾.Fe-Co合金は、35 at.%Co付近で B_{s} が最大であり、40 at.%Co付近で結晶磁気異方性エネルギーはほぼゼロとなる.そのため、Feリッチ組成のFe-Co合金において大きな磁歪が得られれば、応用デバイスの特性向上が見込まれる.最近、我々は、VN(001)下地層上に600 °Cの高い成長温度でFe₅₀Co₅₀(001)単結晶膜を形成し、 A_{100} = +300×10⁻⁶の飽和磁歪定数が得られることを報告した⁴⁾.組成や熱処理法によっても、磁気異方性や磁歪が変化することが考えられる.本研究では、Co組成を $x = 0 \sim 50$ at.%で変化させて $Fe_{100-x}Co_x(001)$ 単結晶膜を形成し、高温成長後の冷却速度を-600 °C/1.5~72 h (= -400~-8.3 °C/h)で変化させた.そして、組成および冷却速度が構造、磁気異方性、磁歪に及ぼす影響を系統的に調べた.

実験方法 膜形成には,超高真空高周波マグネトロン・スパッタリング装置を用いた. MgO(001)単結晶 基板上に 600 °C の基板温度で 10 nm 厚の VN 下地層および 100 nm 厚の Fe_{100-x}Co_x膜を形成した. その後,製膜装置内で,速度を制御して室温まで冷却させた.構造解析には RHEED および XRD,表面 起伏観察には AFM,磁化曲線測定には VSM を用いた.磁歪特性は,片持ち梁状の試料の面内方向に回 転磁界を印加し,そり量をレーザー変位計で測定することにより評価した.

実験結果 Fig. 1 に高温成長後に異なる速度で冷却した Fe_{100-x}Cox 膜の *λ*₁₀₀ を示す. いずれの冷却速度に対しても、Co 組成の増加に伴い、*λ*₁₀₀ は増大しており、例えば、-600 °C /1.5 h で冷却したFe, Fe₇₀Co₃₀, Fe₅₀Co₅₀ 膜の *λ*₁₀₀ は、それぞれ、+20×10⁻⁶、+210×10⁻⁶、+300×10⁻⁶ であった.また、Fe および Fe₇₀Co₃₀ 膜では、冷却速度を低下させても、*λ*₁₀₀ に大きな変化は見られなかったが、Fe₅₀Co₅₀ 膜では、冷却速度の低下に伴い *λ*₁₀₀ が増加し、-600 °C/72 h まで減速させると *λ*₁₀₀ は+360×10⁻⁶ にまで向上した。当日は、組成と冷却速度の変化に伴う構造の変化と、磁気異方性と磁歪特性との対応関係についても議論する.



Fig. 1 Cooling time dependences of λ_{100} estimated for Fe_{100-x}Co_x films with different compositions.

- 1) D. Hunter et al.: Nat. Commun., 2, 518 (2011).
- 2) T. Yamazaki, T. Yamamoto, Y. Furuya, and W. Nakao: Mech. Eng. J., 5, 17-00569 (2018).
- 3) F. Narita: Adv. Eng. Mater., 19, 1600586 (2017).
- 4) 大竹充, 芹澤伽那, 川井哲郎, 二本正昭, 桐野文良, 稲葉信幸: 第43回日本磁気学会学術講演会概要集, p. 165 (2019).

磁気異方性を有する新規圧粉材料の磁気特性

末綱 倫浩、木内 宏彰、眞田 直幸 ((株) 東芝 研究開発センター)

Magnetic properties of novel soft magnetic composite with magnetic anisotropy T. Suetsuna, H. Kinouchi, and N. Sanada

(Corporate Research & Development Center, Toshiba Corporation)

はじめに

軟磁性材料は、モータ・発電機・変圧器や、電源用インダクタ・トランス等に幅広く適用されており、シス テムの小型化・高効率化のために軟磁性材料が果たす役割は非常に大きい。この時、軟磁性材料には、高飽 和磁化、高透磁率、低鉄損等の特性が求められるが、高飽和磁化の磁性金属粒子を高密度に充填した圧粉材 料はそれらの特性を満たす可能性のある有力な材料候補として注目されている。しかしながら、一般に、圧 粉材料は鉄損が大きく、その低減が重要な課題となっている。我々は、鉄損を低減するために、磁気異方性 を有する新規圧粉材料を開発した。¹⁾本圧粉材料は扁平磁性金属粒子とバインダで構成されるが、扁平磁性金 属粒子の組成を非晶質組成にし、扁平面内で磁気異方性を発現させる事によって、極めて低い鉄損を実現し た。本研究では、その磁気特性について調査した。なお、圧粉材料は一般に磁束を三次元で制御する事が可 能であるが、開発した圧粉材料は、含有する扁平磁性金属粒子の形状磁気異方性(扁平形状に起因)と、扁 平面内に付与された磁気異方性から、更に優れた磁束の制御性を期待できるため、大きなポテンシャルを有 する材料である。

実験方法および結果

まず、FeCoBSi 組成の非晶質薄帯を合成し、熱処理後に粉砕を行う事によって扁平磁性金属粒子を合成した。 次に、合成した扁平磁性金属粒子をバインダと混合し、磁場中成型を行った後ホットプレス成型を行い、圧 粉材料を合成した。その後、圧粉材料に磁場中熱処理を施す事によって、磁気異方性を有する圧粉材料を合 成した。Fig.1に、磁場中熱処理前後での圧粉材料の保磁力変化を示す。Fig.1から、磁場中熱処理によって 磁気異方性が付与され(容易軸方向と困難軸方向とで大きな保磁力差が生じた)、これに伴い、保磁力を大幅 に低減できる事が分かった。Fig.2に、本研究で合成した圧粉材料(磁場中熱処理後)の容易軸方向の推定鉄 損(1T・100Hz~1kHz条件下)を示す。Fig.2から、本研究で合成した圧粉材料は、Fig.1の磁場中熱処理後 の低保磁力特性を反映し、汎用圧粉材料や電磁鋼板と比べて、極めて低い鉄損を実現できる事が分かった。



参考文献

1) T. Suetsuna, H. Kinouchi, T. Kawamoto, and N. Sanada, J. Magn. Magn. Mater. 473 (2019) 416-421.

Fe-Co 基合金を搭載した振動発電デバイスの 発電特性におよぼすバイアス磁場の影響

藤枝 俊*、井上森平*、岡田 拓*、長内史也**、枦 修一郎**、石山和志**、 清野智史*、中川 貴*、山本孝夫* (*阪大 工学研究科、**東北大 通研)

Influence of bias magnetic fields on performance of vibration power generator using Fe-Co based alloy

S. Fujieda*, S. Inoue*, T. Okada*, F. Osanai**, S. Hashi**, K. Ishiyama**,

S. Seino*, T. Nakagawa*, T. A. Yamamoto*

(*Graduate School of Engineering Osaka University, **RIEC Tohoku University)

背景

IoT 機器を駆動させるためのメンテナンスフリー小型電源として、応力印加により磁性体の磁気特性が変化する磁歪の逆効果(逆磁歪効果)を利用して身の回りの振動から発電する振動発電エネルギーハーベスティングが注目を集めている¹⁾。最新のユニモルフ U 字型振動発電デバイスでは、U 字型フレームに磁性体を貼り付けた状態でコイルを巻き付け、永久磁石でバイアス磁場を印加する(Fig.1参照)²⁾。自由端を振動させると磁性体に引張りおよび圧縮応力が加わり、逆磁歪効果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。優れた発電特性が得られる Fe-Ga 合金単結晶は振動発電用の逆磁歪材料としての応用が期待されるが^{3,4)}、実用的観点からは様々な材料の開発が望まれる。本研究では Fe-Ga 合金と比べ

て磁歪定数は小さいが飽和磁化が大きい Fe-Co 基合金に着目し、 その振動発電特性におよぼすバイアス磁場の影響を評価した。

実験方法

多結晶の Fe-49 wt%Co-2 wt% V 合金の板状試料を U 字型フレームに貼り付けた後、巻き数 3638 ターンの空芯コイルを取り付けた。 バイアス磁場を変化させるため、サイズが同じで表面磁束密度が異なる永久磁石を用いた。

実験結果

表面磁束密度 290 mTの永久磁石を用いた振動発電試験の結果を Fig. 2 に示す。この試験では、U 字型フレームの開口部が縮まるよ うに自由端を 1 mm 変位させた反動でデバイスを自由減衰振動さ せた。開回路電圧は最初の振動で約 3 V の最大値を示した後、振 動の減衰に伴い減少する。Faraday の法則に基づくと、この電圧は 逆磁歪効果によりコイル内に約 0.19 T の磁束密度変化(ΔB)が生 じたことを意味する。異なる表面磁束密度の永久磁石を用いて同 様の振動発電試験を行って評価した ΔB を Fig. 3 に示す。表面磁束 密度の増大に伴い、 ΔB は大きくなることが明らかになった。従っ て、Fe-Co 基合金を搭載した振動発電デバイスの発電特性の向上に は、バイアス磁場の調整が効果的である。

参考文献

- 1) T. Ueno and S. Yamada, IEEE Trans. Magn., 47 (2011) 2407.
- 2) 上野, 日本 AEM 学会誌, 26 (2018) 185.
- 3) S. Fujieda et al., IEEE Trans. Magn., 50 (2014) 2505204.
- 4) 藤枝 他, 日本金属学会会報, 59 (2020) 10.



Fig. 1 Unimorph U-shaped vibration power generator.



Fig. 2 Time response of open circuit voltage $V_{\text{op.}}$



Fig. 3 Magnetic flux density change of core as a function of surface magnetic flux density of magnets.

強磁性形状記憶合金を利用した振動発電の基礎検討

小澤海斗, 枦修一郎, 石山和志 (東北大学 電気通信研究所) Study of vibration power generation using ferromagnetic shape memory alloy K. Ozawa, S. Hashi, K. Ishiyama

(RIEC, Tohoku University)

1. はじめに

近年、環境に存在する希薄なエネルギーを「収穫」 して電力に変換する、環境発電技術を利用した発電 デバイスが開発されており、これは小型電子機器な ど IoT デバイスの自立電源となりうる¹⁾。中でも、 振動等の機械的な環境エネルギーも比較的大きな出 力を得られることから、振動発電技術が特に低消費 電力機器への電力供給源として期待が高まっている 2)。本研究では、磁場により歪みが発生する強磁性 形状記憶合金(FSMA)を振動発電に使用すること を提案する。Table 1 に各 FSMA の特徴をまとめた。 この中で Fe-Mn-Al-Ni 系は加工性に優れ、超弾性を 有する材料である。磁場誘起(逆)マルテンサイト 変態を起こし、母相は強磁性でマルテンサイト相は 反強磁性とされている 3。したがって、母相の磁気 モーメントの方向を揃えた状態で外部から応力を印 加して応力により相変態を起こさせ、それに伴う磁 化の差分を検出すれば電磁誘導により電力を取り出 せる可能性がある。

そこで、本研究では強磁性形状記憶合金の応力誘 起相変態を利用した振動発電デバイスの開発を目的 として Fe-Mn-Al-Ni 系合金の磁気特性を検討する。

2. 実験方法

Fig. 1 には本研究における BH ループトレーサの 装置構成を示す。短冊形状の試料に対して、応力無 印加の状態と応力印加用治具を用いて外部から試料 に応力を印加した状態でソレノイドコイル内に挿入 し、0.1 Hz の正弦波交流磁界を印加すると、3000 タ ーンの検出コイルには試料内部の磁束の時間変化に 伴う電圧が発生する。この電圧を DAQ デバイスに より取り込み、LabVIEW によるプログラムを用いて 制御することで磁束密度を算出し、BH 曲線の測定 が可能になる。

応力無印加時と応力印加時の磁束密度差を BH 曲線の測定結果から評価し、理論的な発電量を推定する。詳細は講演会で報告する。

Alloy	Processability	Transition temperatures [K]	Strain mechanism
Ni-Mn-Ga	×	300~440	Twin deformation
Co-Ni-Al	\bigtriangleup	~320	Twin deformation
Fe-Mn-Al-Ni	0	243	Magnetic field-invited transformation

Table 1. Characteristics of each FSMAs



Fig. 1. Measurement system for BH loops

謝辞

試料提供ならびにご助言をいただいた東北大学大 学院工学研究科金属フロンティア工学専攻貝沼亮介 教授、大森俊洋准教授、許皛助教に感謝する。

<u>参考文献</u>

- K. Takeuchi: J. Surf. Finish. Soc. Jpn., 67, 334 (2016).
- 2) I. Kanno: J. Surf. Finish. Soc. Jpn., 67, 348 (2016).
- T. Omori and R. Kainuma: *Materia Japan.*, 54, 398 (2015).

交番磁気力顕微鏡を用いたパーマロイ・パターンド薄膜の 磁壁移動イメージングにおける面内磁場強度依存性

成田 裕¹、大阪 飛翔¹、 園部 博¹、Jong-Ching Wu²、齊藤 準¹

(¹秋田大理工、²National Changhua University of Education)

Magnetic imaging of domain wall movement of permalloy patterned thin films by alternating magnetic force

microscopy and dependence of in-plane magnetic field intensity

Y. Narita¹, T. Osaka¹, H. Sonobe¹, J.C. Wu², H. Saito¹

(¹Akita Univ., ²National Changhua University of Education)

はじめに ソフト磁性材料の性能向上には、磁区構造を交流磁場下で観察し制御することが重要となる。しかしながら、磁気力顕微鏡(MFM)においては強磁性探針からの漏洩磁場により試料の磁区構造が変化しやすく、磁区構造の観察は無磁場下でも容易ではなかった。我々は昨年、ソフト磁性薄膜の交流磁場下での磁区構造観察を目的として、試料表面近傍で交流磁場を検出可能な交番磁気力顕微鏡(Alternating Magnetic Force Microscopy; A-MFM)に、残留磁場がゼロの超常磁性探針を用いる磁壁移動のイメージング法を提案し、交流磁場下でパーマロイ・パターンド薄膜を観察して、磁壁の移動範囲やピニングポイントが容易に検出できることを報告した。本研究では、薄膜に印加する面内磁場成分を制御することで、磁壁を静止状態から移動範囲が変化するまで連続的に観察した結果を報告する。

実験方法 A-MFM は探針の共振周波数と異なる非共振の探針試料間の交番磁気力が誘起する探針振動の周 波数変調を利用して磁場をロックイン検出する手法である。ソフト磁性薄膜の磁壁移動イメージングでは、 超常磁性探針の磁気モーメントの大きさを外部交流磁場源の磁場方向に周期的に変化させた状態で、磁壁移 動により磁壁から発生する磁場が探針に周期的に加わることで発生する交番磁気力を利用して、探針位置に おける磁壁移動の有無を検出する。A-MFM 観察には、自作した Co-GdOx 超常磁性探針(磁性膜厚 100 nm) を用い、パーマロイ・パターンド薄膜(4 μm 角、膜厚 75 nm、Ta キャップ層 2nm)を大気中で観察した。外 部交流磁場源としてフェライトコアを用い、試作した三点支持台上に設置して試料と探針に印加する交流磁 場の方向を、試料の膜面垂直方向を中心としてわずかに変化させた。交流磁場の周波数は 89 Hz であり、振 幅を 50~400 Oe で変化させた。A-MFM 像はロックイン信号(X+iY = R exp(iθ))から選択して取得した。 **実験結果** Fig.1(a)にパーマロイ・パターンド薄膜の面内磁場がゼロで磁壁が静止している状態での A-MFM 磁場像(ロックインX信号)、図(b)に磁場強度像(R 信号)を示す。ここで磁場の検出方向は膜面垂直方向で

あり垂直磁場を検出している。図(b)より磁壁の中心 部の垂直磁場はゼロであり、図(a)により磁壁の両側 で反対方向の垂直磁場が検出されることから、磁壁 は図(c)に模式図を示したネール磁壁であることがわ かる。Fig.2(a)に面内交流磁場を図の±y方向に 0.8 Oe 印加した場合に得られた A-MFM 磁場像(X信号)を 示す。磁壁が移動する範囲内でのみ、探針は磁壁か らの磁場を検出するので、磁壁の移動範囲を反映し た像が得られる。図(b)、(c)に図(a)より識別した磁壁 の最大移動位置の模式図を示す。面内磁場方向に平 行な磁区の面積が増加するように磁壁が移動し、そ の最大移動位置では 90°磁壁以外に 180°磁壁も発生 していることがわかる。学会ではこれらの詳細と共 に、A-MFM 像に及ぼす交流磁場波形の影響について も報告する。



Fig.1 A-MFM images of lock-in X signal [(a)] and lock-in R signal [(b)] without in-plane magnetic field and schematic figure of magnetic field distribution from Neel wall [(c)].



Fig.2 A-MFM images of lock-in X signal under in-plane magnetic field [(a)] and schematic figures of domain wall position with maximum domain wall movement. [(b), (c)]

15pD - 2

交番磁気力顕微鏡を用いた磁気記録ヘッドの 高空間分解能・磁場エネルギーイメージング 直流磁場と交流磁場の交差エネルギーによる信号強度の増大 —

今 裕史、 園部 博、 松村 诱、 齊藤 準

(秋田大理工)

High-resolution magnetic field energy imaging of magnetic recording heads by using energy cross term of AC and DC magnetic field on alternating magnetic force microscopy

H. Kon, H. Sonobe, T. Matsumura, H. Saito

(Akita Univ.)

はじめに ハードディスクドライブの主要部品である磁気記録ヘッドにおいては高密度化のためにヘッド素 子の小型化が進んでおり、磁気記録ヘッドから発生する交流磁場に対して高い空間分解能でのイメージング が求められている。我々はこれまで試料表面近傍の磁場の計測を可能にすることで空間分解能を大幅に向上 させた交番磁気力顕微鏡(Alternating Magnetic Force Microscopy; A-MFM)に高磁化率の Co-GdOx 系超常磁 性探針を用いることで、磁気ヘッドから発生する交流磁場に対してその 2 乗値に対応する磁場エネルギーの イメージング手法を提案し、従来の磁場イメージングと比較して高い空間分解能を得ている¹⁾。本研究では、

測定磁場の高周波化に向けて課題となる信号強度の増大のために、直流 磁場と交流磁場の交差エネルギーを利用した高感度化を検討した。

実験方法 A-MFM 観察は自作した Co-GdOx 超常磁性探針(磁性膜厚 100 nm)を用いて大気中で行った。観察試料には垂直磁気記録用の磁気 記録ヘッドを用い、交流電流 I" および直流電流 I を以下の範囲で印加 $U^{\dagger}_{t_{c_{o}}}$ $I = I^{d_{c}} + I^{a_{c}} \cos(\omega t)$ $(I^{d_{c}}: 0 \sim 5.0 \text{ mA}, I^{a_{c}}: 0 \sim 4.7 \text{ mA}, \omega/2\pi = 89 \text{ Hz})$ 電流印加により磁気力

 $F'_{-} = (\partial^2 / \partial z^2)(\boldsymbol{m}^{tip} \boldsymbol{\cdot} \boldsymbol{H}) = (\partial^2 / \partial z^2)(\boldsymbol{\chi}^{tip} \boldsymbol{H} \boldsymbol{\cdot} \boldsymbol{H}) = \boldsymbol{\chi}^{tip}(\partial^2 H^2 / \partial z^2)$

 $(H^2 = (H^{dc} + H^{ac} \cos(\omega t)) \cdot (H^{dc} + H^{ac} \cos(\omega t)))$ が発生する。本研究では、 直流磁場と交流磁場の交差エネルギー像に対応する F₂(ot) 像 $(F'_{z}(\omega t) = 2\chi^{tip}(\partial^{2}(H^{ac}H^{dc})/\partial z^{2})\cos(\omega t)$ (1)) 、交流磁場エネルギー像に 対応する $F'_z(2\omega t)$ 像 $(F'_z(2\omega t) = \chi^{tip} / 2(\partial^2 (H^{ac})^2 / \partial z^2)\cos(2\omega t)$ (2)) を イメージングし、その信号強度を比較した。

<u>実験結果</u> Fig.1 に磁気記録ヘッドの主磁極付近の F'(2ot) 像 $(I^{ac} = 4.7\text{mA}, I^{dc} = 0\text{mA})$ および $F'_{\tau}(\omega t)$ 像 $(I^{ac} = 4.7\text{mA}, I^{dc} = 5.0\text{mA})$ を示す。 $F'_{*}(\omega t)$ 像では $F'_{*}(2\omega t)$ 像と比較して信号強度が大きく、鮮明な像 が得られた。Fig.2 に $F'_{z}(\omega t)$ 像と $F'_{z}(2\omega t)$ 像の主磁極中心部での信号強度 の I^{ac} 依存性を示す。信号強度は概ね $F'_{z}(\omega t)$ 信号では I^{ac} に比例し、 F'(2wt)信号では1^{ac}の2乗に比例して変化しており、式(1)および(2)にし たがって変化していることがわかる。全ての I^{ac} の範囲で、直流電流 I^{dc} の 印加により信号強度が増加しており、直流磁場と交流磁場の交差エネルギ ーを利用することで信号強度の増大が図られていることがわかる。講演で はこれらの詳細とともに周波数を増加させた結果について述べる。

参考文献: 1) P. Kumar et al., Appl. Phys. Lett., 111,183105(2017)





Fig.1 A-MFM images of AC magnetic field energy [(a)] and energy cross term of AC and DC magnetic field [(b)].



Fig.2 Dependences of AC current on A-MFM signal intensity at main pole with and without DC current.

交番磁気力顕微鏡を用いた垂直磁気記録媒体薄膜の ジグザグ状磁化反転境界の高分解能検出

田中 花道、和田 真羽、松村 透、齊藤 準

(秋田大理工)

High-resolution detection of zigzag magnetic reversal boundary of perpendicular magnetic recording media film by alternating magnetic force microscopy H. Tanaka, S. Wada, T. Matsumura, H. Saito

Tanaka, S. wada, T. Matsumura, H. Sar

(Akita Univ.)

はじめに 磁気力顕微鏡(MFM)において、磁気記録媒体は顕微鏡開発当初からの観察対象であり、高密 度磁気記録媒体を構成する 5 nm 程度の磁性結晶粒サイズに起因する nm オーダーのジグザク形状の磁化反転 境界の検出が、MFM の空間分解能の究極的な目標となり得る。このため我々の研究グループでは、MFM の 空間分解能を向上させるため、これまで困難であった試料表面近傍での磁場の単独検出が可能な交番磁気力 顕微鏡(Alternating Magnetic Force Microscopy; A-MFM)を開発し、さらに逆磁歪効果を利用することで測定 感度を高めた Fe 系非晶質高磁歪ソフト磁性探針を開発して、高密度垂直磁気記録媒体に対して 3 nm 程度の 空間分解能を空間スペクトルの評価により得ている。本研究では高い空間分解能を実空間で実証するために、 保護膜のない高密度磁気記録媒体薄膜の A-MFM 観察を行い、さらに A-MFM の磁場勾配値のゼロ検出機能 を利用して、磁場極性が反転する磁化反転境界を抽出した結果について報告する。

実験方法 A-MFM による直流磁場計測では探針に外部から交流磁場を印加し、探針の磁気モーメントの方向を周期的に変化させることで、試料からの直流磁場との相互作用により探針振動に誘起される周波数変調から直流磁場を検出する。ここでは、周波数変調した探針振動信号を周波数復調後に、交流磁場の駆動電圧を参照信号としてロックイン検出することで直流磁場に係わる画像信号(*X*+*iY* = *R*exp(*iθ*))を得る。垂直磁気記録媒体薄膜(グラニュラー媒体・粒径 5 nm 程度で保護膜なし)を測定試料とし、A-MFM 観察を大気中で行った。用いたソフト磁性探針は、非晶質 Fe₆₀Co₂₀B₂₀ ソフト磁性合金を Si 探針母材に 15 nm 程度成膜して自作した。A-MFM 観察では、探針に交流磁場(振幅 150 Oe、周波数 89 Hz)を小型フェライトコアにより印加した。A-MFM 像の解析には、像信号の正負が反転する画素を抽出するプログラムを作成し、磁化反転境界の可視化を行った。

実験結果 Fig1(a)に1 画素を2.5 nm 角で 観察した垂直磁気記録媒体薄膜の A-MFM 像(ロックインアンプのX信号)、図(b)に図 (a)で信号の正負が反転する画素を抽出して 得た磁化反転境界像、図(c)に図(b)の拡大像 を示す。図(c)では画素サイズをメッシュで 表している。 図(b)では、5 nm 程度のジグ ザグ形状の磁化反転境界が観察でき、その 大きさは像の空間スペクトルで評価した空 間分解能(5 nm)とも対応している。さら に結晶粒径の異なる垂直磁気記録媒体薄膜



Fig.1 A-MFM images of lock-in X signal [(a)], magnetic reversal boundary detected image from the image (a) [(b)], and enlarged view of (b) [(c)] for a perpendicular magnetic recording media film.

を観察したところ、粒径の大小に相関した磁化反転境界が観察できた。さらに垂直磁気記録媒体の記録ビットのビット境界においてもジグザグ形状の磁化反転境界の観察に成功した。これらの詳細は学会で報告する。 **謝辞** 観察に用いた垂直磁気記録媒体薄膜は、JX 金属(株)様からご提供いただきました。ここに感謝申し上 げます。

スピン偏極低エネルギー電子顕微鏡による アモルファス磁性ワイヤの磁区構造観察

立松峻一、下出晃広、岩永吉広、鈴木雅彦*、山内泰* (愛知製鋼、*物材機構)

Magnetic domain structure observation of amorphous magnetic wires by spin-polarized low energy electron microscopy S. Tatematsu, A. Shimode, Y. Iwanaga, M. Suzuki, Y. Yamauchi (Aichi Steel Corporation, *NIMS)

<u>1. はじめに</u>

MI センサは、MI (Magneto-Impedance, 磁気インピーダンス)効果を利用した小型で高感度、且つ低消費 電力の磁気センサであり¹⁾、近年では磁気マーカを使用した自動運転やスポーツ計測におけるモーションセ ンサとして利用されている。その原理は、コア材料であるアモルファス磁性ワイヤにパルス電流を通電した 際の、外部磁場に応じたインピーダンス変化を出力電圧に変換するものである。センサ性能として、これま でに 3pT/√Hz@10Hz の磁気分解能が得られているが、更なる低ノイズ化の方策として、ワイヤ表層の磁区構 造に着目して開発を進めている。一方、従来ワイヤに適用されてきた磁区構造観察手段では、研磨などによ り観察面の調整を行う必要があるため、形状や残留応力分布が磁気異方性へ及ぼす影響が損なわれた磁区構 造が観察されている懸念がある。本研究では、極表層の磁化方向の観察手段であるスピン偏極低エネルギー 電子顕微鏡を使用し、ほぼ非破壊でワイヤ表層の磁区構造の観察を試みるとともに、その構造と磁気特性や 加工条件との対応を調査した。

2. 実験方法

回転液中紡糸法により CoFeSiB 系および CoFeNiSiBMo 系アモ ルファス磁性ワイヤを作製し、所望の線径になるよう伸線した。 磁気特性は張力熱処理により調整した。磁区構造観察には、物 材機構に設置されているスピン偏極低エネルギー電子顕微鏡を 使用した。試料はアセトンで超音波洗浄を施したのち、図1に 示すように試料ホルダーに固定した。観察直前には 6~12 時間 Ar⁺スパッタ処理し、表面堆積物のクリーニングを行った。



図1 観察したワイヤの外観

3. 実験結果

線径 φ 13 μ m、円周方向の異方性磁界(Hk)18 Oe に調整 した CoFeNiSiBMo 系アモルファス磁性ワイヤの磁区構造 観察結果を図 2 に示す。試料の曲率による影響のためワイ ヤ表層の一部分のみではあるが、ほぼ非破壊で磁区構造が 観察できている。この試料では、ワイヤ表層の磁区はほぼ 円周方向を向いている。また磁壁内での磁化回転はワイヤ 表層面内のみで垂直成分が無く、円周方向の磁気異方性が 支配的であることが分かる。当日は他のワイヤの観察結果



図 2 SPLEEM で観察したワイヤの磁区構造

参考文献

1) L. V. Panina and K. Mohri: Applied Physics Letter, 65(1994), 9, 1189-1191

を示すとともに、磁気特性や加工条件との関係についても言及する。

半導体レーザー光源を用いた時間分解磁気光学顕微鏡の開発

小笠原剛、中村遼*、山口明啓*

(産業技術総合研究所、*兵庫県立大)

Development of a time-resolved magneto-optical microscope using a semiconductor laser light source

Takeshi OGASAWARA, Ryo Nakamura*, Akinobu Yamaguchi*

(AIST, *Univ. of Hyogo)

磁区ダイナミクスの観察は、磁気デバイス等の研究・開発において強力な手法である。しかし、現在の放射光施設 やモードロックレーザー等を用いる方法は、誰もが簡単に利用できる手法とは言い難い。また、これらの光源はパルス 光の繰り返し周期が固定されているため、試料を光源の周期に合わせて準備する必要があった。本研究では、ピコ秒 パルス半導体レーザーを光源に用いることにより、取り扱いが容易で、ピコ秒クラスの時間分解能をもち、任意の繰り 返し周期での測定が可能な、時間分解磁気光学顕微鏡の開発を行った。

図1に、本研究で開発した時間分解磁気光学顕微鏡の構成を示す。半導体レーザーは、中心波長が405-450 nm、

最小パルス幅が 50 ps、最大繰り返し周波数が 200 MHz である。レーザー光は、ボイスコイルで振動させ たマルチモードファイバーを通すことにより、干渉によ るスペックルを均一化している。マルチモードファイバ ーのモード分散によりパルス幅は約 30 ps 広がり、時 間分解能は最小で 80 ps 程度と考えられる。ベースと なる磁気光学顕微鏡はこれまでに筆者らが開発した 高分解能磁気光学顕微鏡¹⁾で、従来の磁気光学顕微 鏡に比べて高い空間分解能を持ち、磁化の3成分べ クトル観察が可能である。照明光の波長が 405 nm の 場合、理論的な空間分解能は 260 nm である。

図2に、開発した磁気光学顕微鏡を用いて観察した 磁区ダイナミクスの例を示す。試料はコプレーナ導波 路上にパーマロイの微細構造を作製したもので、導波 路にパルス電流を流すことにより幅 10 ns のパルス磁 場を印加して磁区を変化させている。数マイクロメータ 一程度の微細構造中の磁区の運動も鮮明に観察でき ている。

参考文献

1) Takeshi Ogasawara, Japanese Journal of Applied Physics **56**, 108002 (2017).



 $\boxtimes 1$: Schematic configuration of the time-resolved magneto-optical microscope system.



 $\boxtimes 2$: Magnetic domain dynamics observed by the timeresolved microscope.