

心磁図の空間フィルタによる電流源推定における分析領域の検討

岩井守生¹, 小林宏一郎¹, 孫文旭²

¹ 岩手大学理工学部 ² 近畿大学工学部

Consideration of analysis area of current source estimation by spatial filter in MCG.

Morio Iwai¹, Koichiro Kobayashi¹, Wenxu Sun²

¹Faculty of Science and Engineering, Iwate University, Iwate 020-8551, Japan

²Department of Engineering, Kinki University, Hiroshima 739-2116, Japan

はじめに

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、特に、心磁図は人体の透磁率が一定であることなどから、心筋内の電流分布の推定に有用である。現在多くの場合、空間フィルタ法を用いて心筋内の電流源推定が行われている。算出方法の違いにより、様々な手法が提案されているが、本研究では、再構成磁場精度が高く、過剰な広がりや抑制可能な eLORETA 法¹⁾を採用した。従来は、観測点と解析点の関係を考慮し、可能な限り小さな解析領域にすることで、推定精度を向上させてきた²⁾。しかし、広がりを持った電流源では、広がりが正しく表現できず、推定解が歪むことが考えられる。そこで心臓の大きさより大きい解析領域を設定することで推定解が歪まないのではないかと考えた。この考えを検討すべく、解析領域の大きさを変更することによる推定解の影響を検討した。

検討方法

従来通りの心臓の大きさ (xy 平面 120mm 四方) の解析空間 (解析点: 1440 点) に対して、xy 平面 180mm 四方の大きさの解析空間 (解析点: 3240 点)、xy 平面 240mm 四方の大きさの解析空間 (解析点: 5760 点) を新たに定義し、これら 3 つの解析領域の eLORETA による電流源の推定精度を比較した。本検討では実計測心磁図の R 波ピーク時の計測磁場を用いた (日立製の 64ch SQUID 磁束計を用いた³⁾)。比較項目は推定電流最大値の 80% 以上のボクセル数、GOF (Goodness Of Fit)、CT 画像を用いた推定解の大きさの比較である。

検討結果

3 つの解析領域を比較した結果、ボクセル数は解析点が多くなることにより、解析領域を大きくすることで推定解が広がることが分かった。次に、GOF に関しては、すべての解析領域で 0.99 を超えており、GOF では影響がないことが分かった。最後に、CT 画像との比較について、従来の解析領域では推定解が 2 つに分かれており、正しい位置に推定されていないが、拡張した解析領域では大きさ・位置ともにおおむね正しく推定された。これらの結果より広がりのある電流源を推定する場合は、対象よりも大きい解析領域を設ける必要があることが分かったため報告する。

表 1. 検討結果 (ボクセル数・GOF)

解析領域	従来法	提案法 1(xy 平面 180mm 四方)	提案法 2(xy 平面 240mm 四方)
ボクセル数	179	233	305
GOF	0.99	0.99	0.99

参考文献

- 1) R. D. Pascual-Marqui. "Discrete, 3D distributed, linear imaging methods of electric neuronal activity. Part 1: exact, zero error localization.", arXiv :0710.3341 [math-ph], vol. 1, pp. 1-16, Oct. 2007.
- 2) W. Sun and K. Kobayashi. "Simulation of extended source localization using sLORETA method for magnetocardiography," *J. Mag. Soc. Japan*, vol. 41, pp. 75-80, 2017.
- 3) H. Kanzaki et al., "A new screening method to diagnose coronary artery disease using multichannel magnetocardiogram and simple exercise," *Basic Res. Cardiol.*, vol. 98, no. 2, pp. 124-132, 2003.

超低磁場下における分極磁場パルスを用いない磁気共鳴信号計測

小山大介¹, 柴田眞輔²
(¹金沢工業大学, ²株式会社リコー)

Detection of Magnetic Resonance Signal without Prepolarization Technique in Ultra-low Magnetic Field

Daisuke Oyama¹, and Shinsuke Shibata²

(¹Kanazawa Institute of Technology, ²RICOH Company, Ltd.)

はじめに

μT から mT 程度の静磁場を利用する磁気共鳴画像 (MRI: Magnetic resonance imaging) として, 超低磁場 MRI の開発が進められている. 著者らはこれまでに卓上サイズのコイルセットで構成される小型超低磁場 MRI システムの開発を進めてきた¹⁾. このシステムでは静磁場強度を数十 μT としており, 信号強度増幅とスピン向きを制御することを目的として分極磁場パルスを用いていた. しかし分極磁場パルスの使用は装置の大型化や計測時間の増長につながるといった不利益も招いていた. そこで本研究では分極磁場パルスを使用しない超低磁場 MRI システムの実現を目的として, 静磁場強度を約 1 mT とした MRI 計測システムを作製し, 磁気共鳴(MR: Magnetic resonance) 信号計測実験を実施した.

超低磁場 MRI 用コイルセット

Fig. 1 に本研究で開発した超低磁場 MRI 用コイルセットの概要を示す. Y 方向の静磁場発生用コイル(B_0 コイル) として Merritt コイル²⁾ を基にコイルを設計し, 222 回巻きの静磁場コイルを製作した. 1 A の電流を印加した際に発生する中心磁束密度は 0.6 mT であった. また, スピンを倒すための X 方向の交流磁場を発生させるコイル (RF コイル) を B_0 コイルの側面に配置した.

磁気共鳴信号 (MR 信号) を検出するための誘導コイルを B_0 コイルおよび RF コイルの中央に置き, MR 信号の Z 方向成分を検出するようにした. 検出コイルは外径 39 mm , 内径 29 mm , 高さ 29 mm の円筒形をしており, 巻数は 660 回である. 計測試料は円筒形のコイルの中に置かれる.

磁気共鳴信号計測実験

製作したコイルセットで MR 信号を観測可能であることを示すため, プラスチック容器に入れた 11.4 g の水を対象とした計測実験を実施した. B_0 コイルに 1.48 A の電流を印加し, 0.88 mT の静磁場を発生させた. 計測にはエコー時間を 10 ms としたスピンエコーシーケンスを用いた.

Fig. 2 に観測されたエコー信号を示す. 比較のため, 試料無しの場合に観測された波形も重畳して描いている. いずれも 500 回の加算平均波形である. 試料ありの場合に指数関数的に減衰する 37.7 kHz の信号が観測されており, エコー信号であるが分かる. 作製したコイルセットにより, 約 1 mT 下において分極磁場パルスを使わずにエコー信号を観測可能であることが確認できた.

謝辞

本研究の一部は, 科研費 (20K12680) の助成を受けて実施した.

参考文献

- 1) D. Oyama et al., *IEEE Trans. Magn.*, **53**, 5100504, 2017.
- 2) R. Merritt et al., *Rev. Sci. Instrum.*, **54** (7), 879-882, 1983.

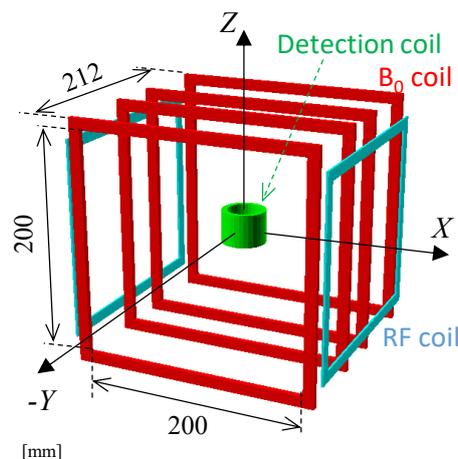


Fig. 1. Coil set of our ULF-MRI system.

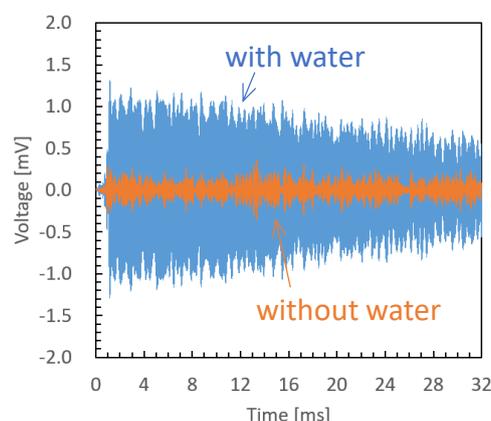


Fig. 2. Recorded signal with and without a water phantom.

ヒト子宮肉腫細胞株の多剤耐性の有無において 60 Hz 交流磁界が抗がん剤作用へ与える影響の違い

芝木玲生¹, 柿川真紀子¹, 山田外史²
(¹金沢大学, ²公立小松大学)

Differential effects of 60 Hz magnetic fields on anticancer drug potency in human uterine sarcoma cell lines with and without multidrug resistance
R.Shibaki¹, M.Kakikawa¹, S.Yamada²
(¹Kanazawa University, ²Komatsu University)

はじめに

本研究室ではこれまで、ヒト肺がん細胞株 A549 およびヒト肝がん細胞株 HepG2 において、交流磁界による抗がん剤作用の増強を確認した。現段階ではこのメカニズムには不明な点が多い。しかし、外部刺激により細胞膜に存在する膜電位と膜タンパク質の構造が変化すると言われており、また磁界により細胞膜に含まれるタンパク質の構造が変化するという報告もある。この理由から、磁界が抗がん剤の取り込み・排出に関わる膜タンパク質に影響を与え、結果として抗がん剤作用が増強した可能性が考えられる。

先行研究において、ヒト子宮肉腫細胞株 MES-SA では交流磁界曝露によって細胞膜電位が増加したが、同じ由来の多剤耐性細胞株 MES-SA/Dx5 では膜電位への影響はなかった。MES-SA/Dx5 は抗がん剤を細胞外へ排出する P-glycoprotein と呼ばれる膜タンパク質が過剰に発現している細胞である。そこで、本研究では多剤耐性に焦点を当て、MES-SA と MES-SA/Dx5 において、交流磁界が抗がん剤作用に与える影響について、生存率を指標として評価することを目的とした。

がん細胞における抗がん剤作用への交流磁界影響の測定方法

交流磁界の条件は周波数 60 Hz, 磁束密度 50 mT とした。抗がん剤は, daunorubicin, doxorubicin, etoposide, cisplatin の 4 種類を使用した。MES-SA/Dx5 の各抗がん剤に対する耐性率はそれぞれ異なっている。磁界曝露群(MF + drug)には抗がん剤と磁界を, 非曝露群(drug only)には同濃度の抗がん剤のみを添加し, それぞれ 0.5-4 h 反応させ, 生存率を測定した。両群の生存率を比較することで, 抗がん剤作用に対する交流磁界影響および抗がん剤の耐性率による交流磁界影響を評価した。

がん細胞における抗がん剤作用への交流磁界影響の結果

MES-SA および MES-SA/Dx5 に対して, 抗がん剤 daunorubicin を使用した実験結果をそれぞれ Fig.1, 2 に示す。グラフの縦軸は非曝露群に対する曝露群の細胞生存率の相対比, 横軸は反応時間を表している。実験結果から, MES-SA ではすべての反応時間で非曝露群に比べて曝露群の細胞生存率が約 40% 低下し, 特に反応時間 1 h では最大で約 56.4% 低下した。なお, この結果は複数回の実験により再現性があり, また統計分析によってすべての反応時間で有意差が認められた。一方, MES-SA/Dx5 では MES-SA と比較すると磁界影響は小さいが, 反応時間 0.5 h において最大で約 12.1%, 非曝露群に比べて曝露群の細胞生存率が有意に低下した。なお, この結果は複数回の実験により再現性があり, また統計分析によって反応時間 0.5, 2 h で有意差が認められた。その他の抗がん剤作用の磁界影響に関する結果と MES-SA と MES-SA/Dx5 の磁界影響の違いに対する考察は口頭発表で述べる。

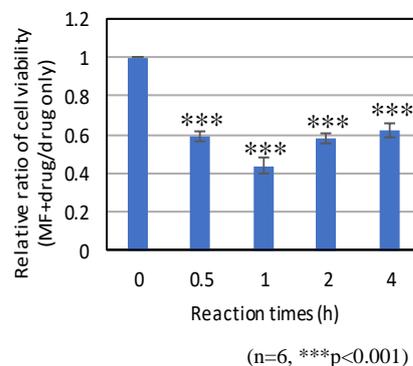


Fig.1 MF effect of daunorubicin on MES-SA cells

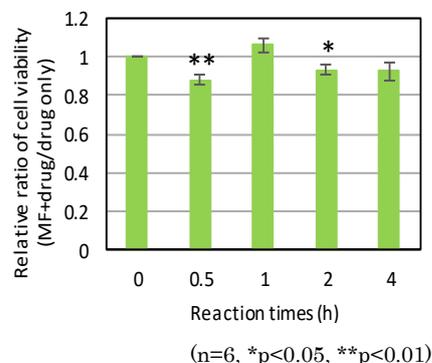


Fig.2 MF effect of daunorubicin on MES-SA/Dx5 cells

静電集積法による磁気ハイパーサーミア用 球状(La, Sr)MnO₃ 発熱体の作製

山田恭輔¹、清野智史¹、藤枝俊¹、横井敦史²、Tan Wai Kian²、武藤浩行²、中川貴¹
(¹大阪大学、²豊橋技術科学大学)

Preparation of spherical (La, Sr)MnO₃ heating mediator for magnetic hyperthermia
by electrostatic adsorption

K. Yamada¹, S. Seino¹, S. Fujieda¹, A. Yokoi², W. K. Tan², H. Muto², T. Nakagawa¹
(¹Osaka University, ²Toyohashi University of Technology)

1. 研究背景

磁気ハイパーサーミアとは、体外から印加した交流磁場によって発熱する発熱体を、体内に集積あるいは挿入して、発熱体周辺のみを選択的に加温し、がん組織のみを殺傷する治療法である。この発熱体には、印加磁場の強度に到達温度が依存しないこと、発熱特性が印加磁場の向きに依存しないこと、注射器によって体内に挿入可能であることが求められる。これらの条件を満たす発熱体として、組成が(La, Sr)MnO₃(以下LSMO)であり、アルギン酸ゲル化法での100-500 μmの顆粒試料の作製が報告されているが、球状試料の合成には至っていない。そこで、本研究では原料粉末を球形集積する技術である静電集積法に注目し²⁾、LSMO球状試料の作製を行った結果について報告する。

2. 実験方法

LSMO球状試料を作製するために、まず、均一な組成の試料の生成、及び微細な粉末試料の生成が期待できる錯体重合法によってLSMO粉末を作製した³⁾。続いて、このLSMO粉末を出発原料に静電集積法³⁾によって球状粉末集合体を作製する。表面電荷調整では、LSMO粉末を界面活性剤であるSDCを用いて分散させた後、ポリカチオンとしてPDDAを積層させゼータ電位を正(+48 mV)に、さらにポリアニオンとしてPSSを交互に積層することにより、ゼータ電位を負(-13 mV)に調整した。これらの2種のサスペンションを所定の体積比率で混合し、4 rpm、7日間の回転・攪拌処理を行うことによりLSMO球状粉末集合体を得た。最後に、このLSMO球状粉末集合体に大気中1250 °C、10 hの熱処理を加え焼結体を得た。

3. 結果と考察

錯体重合法によって作製したLSMO粉末は、SEM観察から粒径100 nm程度であった。この粉末試料から静電集積法によって作製した球状粉末集合体は非常に脆く、SEM観察はできなかった。この脆い球状試料を熱処理で焼結させた結果、ハンドリングが容易な硬さの粒子となった。熱処理後のLSMO球状試料のSEM像をFig.1に示す。この粒子の長軸の長さは242 μm、短軸の長さは220 μmであった。長軸に対する短軸の比は1.10であり、比較的高い真球度を有する。ほかの球状試料についてもほぼ同様の形状が得られている。また、この球状試料の密度は、LSMOの理論密度の80%であり、圧粉成形体ではないにも関わらず比較的高い密度を実現できた。

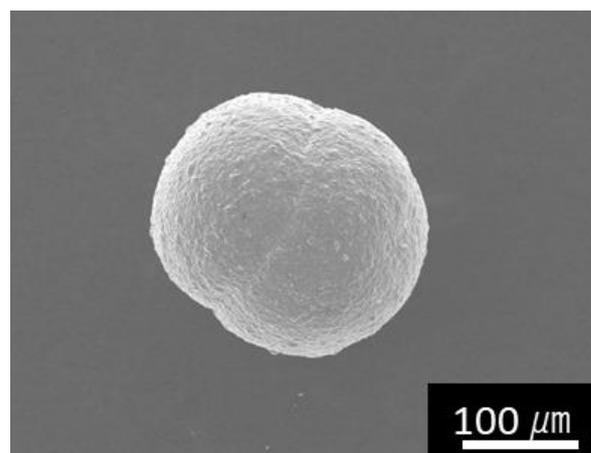


Fig.1 : SEM image of LSMO spherical sample after annealing

参考文献

- 1) 赤井勇樹 他, 第39回日本磁気学会学術講演会, (2015) 9aE-2.
- 2) W. K. Tan, *et.al.*, *Nanoscale Research Letters*, **14**, (2019) 297.
- 3) M. Horiki *et.al.*, *J. Magn. Soc. Jpn.* **35**, (2011) 22-26.

シリカ被覆磁性ナノ粒子の磁気発熱量評価

木村 優介、櫻井 淳平、秦 誠一、岡 智絵美
(名古屋大学)

Evaluation of magnetic heating efficiency of silica-coated magnetic nanoparticles

Y. Kimura, J. Sakurai, S. Hata, C. Oka
(Nagoya Univ.)

はじめに

磁性ナノ粒子の交流磁場下における磁気発熱はがん磁気温熱療法などで注目されている。磁気発熱応用では、発熱量予測に基づいた磁性ナノ粒子複合体設計が求められるが、磁性ナノ粒子の磁気発熱量を正確に予測する方法はまだない。そこで我々は、発熱量理論式では考慮されていないが、実際の粒子間では生じている、粒子間磁氣的相互作用に着目した。本研究では、磁氣的相互作用を変化させその影響を解明することを目的に、磁性ナノ粒子を異なる膜厚でシリカ被覆し、発熱量を評価した結果を報告する。

実験方法

磁性ナノ粒子として、共沈法により合成したマグネタイトナノ粒子（平均粒径 9.9 nm）を用いた。磁性ナノ粒子のシリカ被覆は、オルトケイ酸テトラエチル（TEOS）を磁性ナノ粒子分散エタノール水溶液に超音波処理下で添加し実施した。異なるシリカ被覆量の試料を得るために TEOS 添加量を変化させシリカ被覆を行った。シリカ被覆量の指標として、シリカ被覆磁性ナノ粒子中のシリカと磁性ナノ粒子の質量比を ICP-AES 測定結果から算出した。発熱量測定はシリカ被覆または未被覆磁性ナノ粒子に交流磁場 ($f=2.0$ MHz、 $H=4.0, 3.0$ kA/m) を印加し実施した。試料の比熱容量は DSC 測定から得られた値を用いた。

実験結果

Fig. 1 にシリカ被覆磁性ナノ粒子の TEM 画像、Fig. 2 に発熱量測定結果を示す。TEOS の添加量調節により、磁性ナノ粒子に対するシリカの質量比が 1.15、2.07 である試料が得られた。シリカ被覆量増加に伴い発熱量が増加することから、磁氣的相互作用の減少により発熱量が増加することを確認した。作製した磁性ナノ粒子は単磁区構造であると予想されるので、1つの粒子は磁気双極子としての働きをもち、粒子間には磁気双極子間相互作用が働くと考えられる。磁気双極子間相互作用は、双極子間距離の 3 乗に反比例した負のポテンシャルエネルギーで記述される¹⁾。つまりシリカ被覆粒子では、粒子間距離の増加に伴い磁気双極子間相互作用による負のポテンシャルエネルギーが減少し、磁気モーメントの回転に消費されるエネルギーが低下し、発熱量が増加したと推測する。

参考文献

1) Stefano Giovanazzi et al., Physical Review Letters, **89**, 130401(2002)

謝辞

本研究は科研費 (21K14512) の助成を受けたものである。

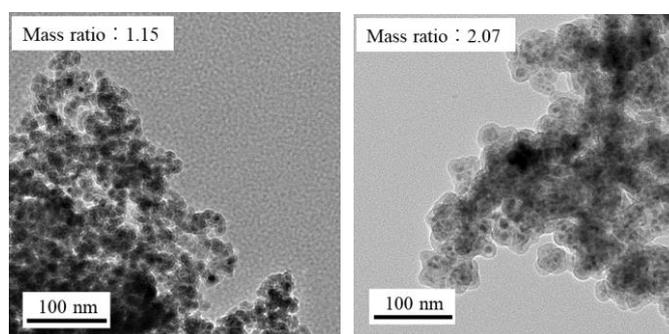


Fig. 1 TEM images of silica-coated magnetic nanoparticles

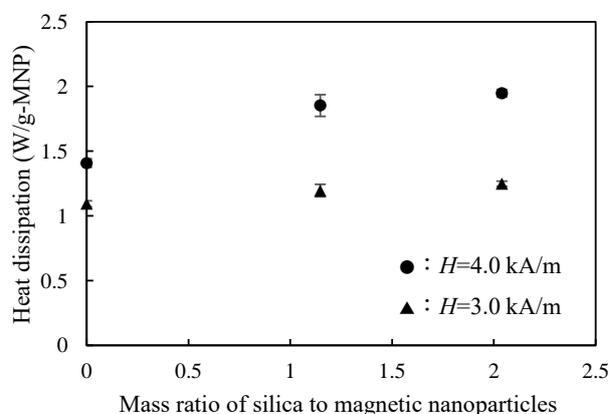


Fig. 2 Effect of mass ratio of silica to magnetic nanoparticles (MNPs) on heat dissipation

磁気ハイパーサーミア用 PID 加熱制御システムの開発

鹿野 晃弘, トンタット ロイ, 桑波田 晃弘, 薮上 信
(東北大学)

Development of PID-based Automatic Temperature Control System for Magnetic Hyperthermia
Akihiro Shikano, Loi Tonthat, Akihiro Kuwahata, Shin Yabukami
(Tohoku Univ.)

1. はじめに

磁気ハイパーサーミア (MH: Magnetic Hyperthermia) において, 生体に投与された磁性体の発熱による温度上昇はがん治療への有効性が確認されているが [1], 過度な加熱は正常組織に対してもダメージを与え, 侵襲性を高めてしまう. そのため, 治療中のがん組織の正確な温度計測と定温加熱制御は重要な技術である. 本研究では, リアルタイム温度計測と PID 制御による定温加熱制御システムの開発と原理実証 [2] について報告する.

2. システム構築と実験方法

Fig. 1 に開発した MH システムの構成を示す. 本システムは, チラー (FLOWMAX, Miller Electric), 誘導加熱電源 (EasyHeat 2.4 kW, Ambrell), 光ファイバー温度計 (FL-2000, 安立計器), PC で構成される. 温度計測を基に, LabVIEW 2020 (National Instruments) を用いた PID 制御によって, コイルに流す電流を制御し, 治療に必要な温度を維持できる. がん加熱治療のためのコイルは, 内径 70 mm, 外径 85 mm, ピッチ 7 mm の 2 巻である. 260 kHz の電流 300 A を流したときのコイル中心における磁界強度は 11.5 kA/m であり, 磁界強度と周波数の積は生物医学的な制限の $5 \times 10^9 \text{ Am}^{-1}\text{s}^{-1}$ [3] 未満であるため, 生体への影響はない.

MRI (Magnetic Resonance Imaging) 造影剤として医薬品認可されている磁性ナノ流体のフェルカルボトラン (Resovist® 注, 共和クリティケア) 0.5 mL をマイクロチューブへ入れ, 2 巻コイル中心に設置し, 開発した定温加熱システムの性能を評価した. コイルにステップ状の電流を流した場合のフェルカルボトランの発熱応答を測定し, ジーグラ・ニコルス法 [4] を用いて, PID パラメータ $K_c = 29.87$, $T_i = 0.64 \text{ min}$, $T_d = 0.16 \text{ min}$ を決定した. これらの PID パラメータに基づき, 室温から治療温度 45 °C と 50 °C までの 600 秒間の加熱検証実験を実施した.

3. 結果

Fig. 2 に目標温度 45 °C と 50 °C における PID 定温加熱制御実験の温度変化を示す. フェルカルボトランの温度が目標温度の $\pm 2\%$ に収束するまでの整定時間 T_s は, それぞれ 194 秒, 208 秒であった. 目標温度を維持している 300 秒間における温度変化の標準偏差は, それぞれ $45 \pm 0.07 \text{ }^\circ\text{C}$, $50 \pm 0.10 \text{ }^\circ\text{C}$ である. これらの標準偏差は光ファイバー温度計の分解能の $0.10 \text{ }^\circ\text{C}$ 以下であるため, 治療温度を正確に制御することに成功した. 本システムを用いることで,

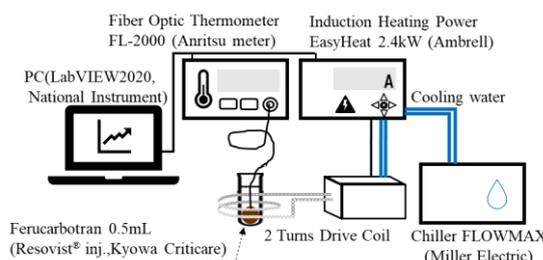


Fig. 1 PID-based automatic temperature control system for magnetic hyperthermia

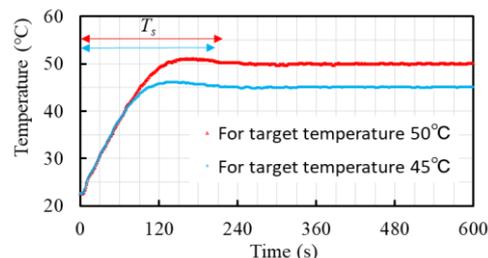


Fig. 2 Accurate temperature control of Resovist® 0.5 mL モデリングが困難な *in vivo* の実験においても同様に, 様々ながん細胞株に合わせて治療温度を正確にコントロールできると考えられる.

4. まとめ

定温加熱制御を可能とする磁気ハイパーサーミアシステムを開発した. PID 制御を応用することで, がん治療に用いるフェルカルボトランの温度を, $45 \pm 0.07 \text{ }^\circ\text{C}$, $50 \pm 0.10 \text{ }^\circ\text{C}$ の高い安定性で制御することに成功した. 今後の予定として, がんモデルマウスを用いた動物実験を実施し, 本システムを用いて低侵襲にがんを治療できることを実証する.

謝辞

本研究の一部は, JSPS 科研費 (19K23597, 20K20210) および東北大学卓越大学院プログラムの助成を得たものである.

参考文献

- [1] A. S. Garanina *et al.* : *Nanomedicine: Nanotechnology, Biology and Medicine*, Vol.25, 102171 (2020).
- [2] A. Shikano *et al.* : *IEEJ Trans*, 16:807-809 (2021).
- [3] R. Hergt *et al.* : *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 311(1):187-192 (2006).
- [4] Ziegler JG *et al.* : *Transactions of the ASME*, 64, 759-768 (1942)

磁気分画したフェルカルボトランの磁気異方性

石川真守¹, 大多哲史², Suko Bagus Trisnanto¹, 山田努¹, 吉田敬³, 竹村泰司¹
(¹横浜国立大学, ²静岡大学, ³九州大学)

Magnetic anisotropy of magnetically fractionated Ferucarbotran
Mamoru Ishikawa¹, Satoshi Ota², Suko Bagus Trisnanto¹, Tsutomu Yamada¹, Takashi Yoshida³,
Yasushi Takemura¹
(¹Yokohama National Univ., ²Shizuoka Univ., ³Kyushu Univ.)

はじめに

がんの磁気温熱治療において、磁性ナノ粒子を十分に発熱させることが課題であり、そのために磁性ナノ粒子の磁気特性を解明する必要がある。本研究では磁性ナノ粒子の磁気特性を示す指標として磁気異方性に着目した。試料の異方性定数や異方性エネルギーを得るために、磁化容易軸方向と磁化困難軸方向の磁化特性の差から算出する方法、交流磁化率から算出する方法を用いた。また、本研究では、MRI 造影剤に臨床利用されている Resovist®の有効成分であるフェルカルボトランを特定の粒径群に磁気分画した3種類の磁性ナノ粒子を測定試料とした。それぞれの磁化特性、交流磁化率から異方性定数、異方性エネルギーを算出し、評価した。

実験方法・結果

測定粒子はフェルカルボトラン (Ferucarbotran, $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3/\text{Fe}_3\text{O}_4$) を磁気分画した MS1、MS2、MS3 (名糖産業株式会社、実効コア粒径は MS1 : 21.6 nm, MS2 : 10.7 nm, MS3 : 6.2 nm)¹) を使用した。それぞれ液中試料とエポキシ樹脂で固めた固定試料を作製した。固定試料においては、無磁場下で固定した無配向固定試料と $\mu_0 H = 720$ mT の直流磁場中で固定し粒子の磁化容易軸を揃えた配向固定試料の2種類を作製した²)。配向固定試料は磁化容易軸に対して平行方向と垂直方向に励磁をし、試料の磁化容易軸方向、磁化困難軸方向の磁化特性を測定した。磁性ナノ粒子の濃度は鉄換算として 28 mg-Fe/mL、2 mg-Fe/mL に調整した。そして、それぞれの試料の直流磁化特性、交流磁化特性 (磁場強度 $\mu_0 H = 5, 20$ mT、周波数: 1–100 kHz)、交流磁化率 (磁場強度 $\mu_0 H = 0.04$ mT、周波数: 100 Hz–1 MHz) の測定を行った。

MS1 の配向固定試料の磁化容易軸方向と磁化困難軸方向の直流磁化特性を Fig. 1 に示す。この2曲線の差は磁気異方性に起因している。また、MS1 の交流磁化率実部と虚部のグラフを Fig. 2 に示す。これらの結果から異方性定数や、異方性エネルギーを算出し評価した。詳細なデータは当日発表する。

参考文献

- 1) T. Yoshida *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **114**, 173908, 2013.
- 2) G. Shi *et al.*, *J. Magn. Magn. Mater.*, **473**, 148, 2019.

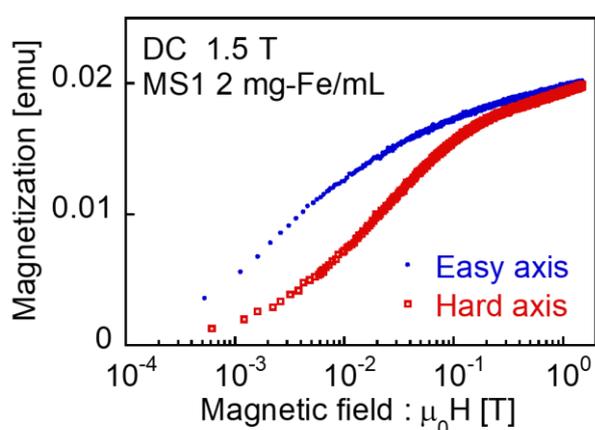


Fig. 1 DC magnetization characteristics of MS1.

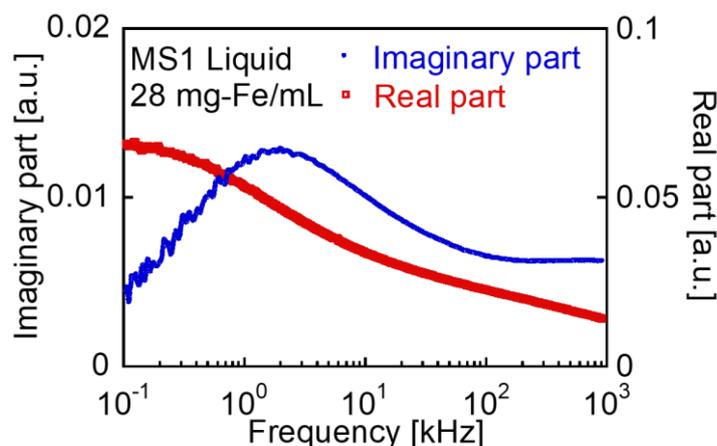


Fig. 2 Real and imaginary parts of AC susceptibility of MS1.

磁化容易軸を配向させた超常磁性ナノ粒子の FORC 測定

笹岡英将¹, 楊超^{1,2}, Suko Bagus Trisnanto¹, 小林樹¹, 山田努¹, 宋増禄², 大多哲史³, 竹村泰司¹
(¹横浜国立大学, ²南京工業職業技術大学, ³静岡大学)

FORC measurement of superparamagnetic nanoparticles with oriented easy axis

Eisuke Sasaoka¹, Chao Yang^{1,2}, Suko Bagus Trisnanto¹, Itsuki Kobayashi¹, Tsutomu Yamada¹,
Zenglu Song², Satoshi Ota³, Yasushi Takemura¹

(¹Yokohama National Univ., ²Nanjing Vocational Univ. of Industry Technology, China, ³Shizuoka Univ.)

はじめに

磁性ナノ粒子の医療応用として、磁気ハイパーサーミアや磁気ナノ粒子イメージングなどが挙げられる。これらの医療応用において、ナノ粒子の磁化特性を解明することは重要となる。本研究では、MRIの造影剤として用いられている Resovist[®]について、First-Order-Reversal-Curve (FORC) 解析^{1,2)}を行い、磁性ナノ粒子の磁化反転挙動を測定した。

実験方法と結果

本研究では、Resovist[®]をエポキシ樹脂と混合し、無磁場下で固定させた無配向固定試料、及び $\mu_0H = 870$ mTの静磁場下で固定させた配向固定試料³⁾を作製した。これらの濃度は 2.8 mg-Fe/ml とした。これらの試料について、通常の VSM によるメジャー LOOP とマイナー LOOP に加え、FORC 測定を行った。配向試料では磁場印加方向を容易軸と困難軸の 2 方向とした。

Fig. 1, 2 は、配向固定させた Resovist[®]における容易軸方向での測定結果である。Fig. 2 は磁化反転の強弱を表す分布で、縦軸は掃引を反転させたときの磁場 μ_0H_r [mT]、横軸を印加磁場 μ_0H [mT]で表示している。また、Fig. 2 における特徴のある a~c の範囲は、Fig. 1 の曲線における a~c と対応している。これらの結果から、容易軸方向での FORC 分布は Hc 軸および Hu 軸に沿っていることが分かる。特に Hc 軸に沿った分布は保磁力の発現を表して、これは Fig. 1 から $\mu_0H = 0.5$ mT ほどであることが確認できる。このように保磁力が生じることはマイナー LOOP から確認され、超常磁性を示す Resovist[®]を配向させることで、磁化が容易軸方向に束縛されるため、この束縛から磁化を反転させるために保磁力が生じたと考えられる。

当日はこの結果についての詳細の他、無配向固定試料と配向固定試料の困難軸方向での測定結果、またそれらの比較検討について報告する。

参考文献

- 1). 岡本聡, までりあ, 第 56 巻, 第 9 号, (2017).
- 2). C. Pike *et al.*, *J. Appl. Phys.*, 85, 6660, (1999).
- 3). G. Shi *et al.*, *J. Magn. Mater.*, Vol.473, 148, (2019).

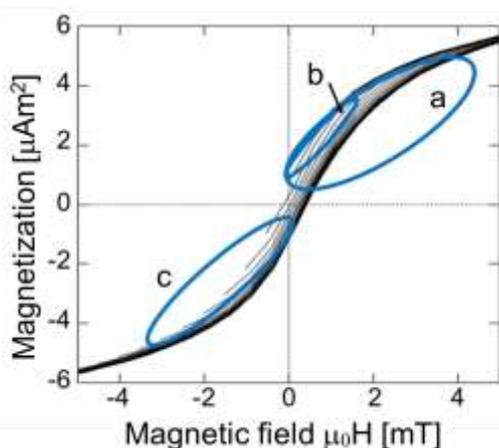


Fig.1 Reversal curves of the easy axis sample.

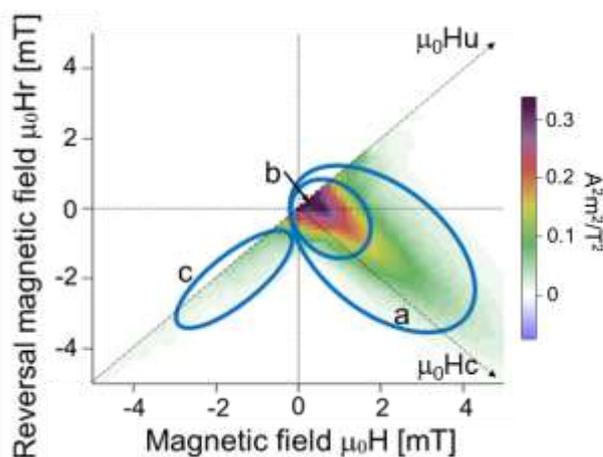


Fig.2 FORC diagram of the easy axis sample.

直流磁場により配向制御した磁性ナノ粒子の交流磁化率

野口翔矢¹, Suko Bagus Trisnanto¹, 山田努¹, 大多哲史², 竹村泰司¹
(¹横浜国立大学, ²静岡大学)

AC magnetic susceptibility of magnetic nanoparticles whose orientation is controlled by DC magnetic field
Shoya Noguchi¹, Suko Bagus Trisnanto¹, Tsutomu Yamada¹, Satoshi Ota², Yasushi Takemura¹
(¹Yokohama National Univ., ²Shizuoka Univ.)

はじめに

磁性ナノ粒子を用いた磁気ハイパーサーミア治療において、交流磁場下での磁性ナノ粒子の発熱効率向上のため、磁気特性の解明が必要である。本研究では、磁性ナノ粒子の磁気的な特性を示す指標として交流磁化率^{1,2)}に着目した。磁性ナノ粒子に直流磁場を印加することで粒子の配向状態^{3,4)}を制御しながら、低振幅の交流磁場を印加し交流磁化率の測定を行うことで、磁気緩和がどのように変化するかの評価を行った。本研究では、MRIの造影剤として承認されている Resovist[®]、その有効成分であるフェルカボトラン、およびそれを特定の粒形群に磁気分画したものを測定試料とした。

実験方法・結果

測定粒子は Resovist[®] ($\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3/\text{Fe}_3\text{O}_4$)、その有効成分であるフェルカボトランおよびそれを磁気分画することにより得られた MS1、MS2 (名糖産業株式会社) を使用した。これらの磁性ナノ粒子の濃度はいずれも 28 mg-Fe/ml とし液中状態で測定を行った。測定条件は交流磁場振幅を $\mu_0 H = 0.09$ mT、励磁周波数を 0.1–50 kHz とし、直流磁場を交流磁場に対して垂直方向および平行方向に印加し、その磁場強度は最大で $\mu_0 H = 20$ mT とした。

Resovist[®]の測定結果に関して、直流磁場を印加しながら測定した交流磁化率実部 χ' の結果を Fig. 1 に、交流磁化率虚部 χ'' の結果を Fig. 2 に示す。Fig. 1 に関して、印加する直流磁場を大きくすると粒子がより強く配向されるため、交流磁化率実部は各周波数において小さな値となった。また、周波数増加に伴い値が減少する結果となったが、これは粒子の回転が印加交流磁場に追従できなくなっているためだと考えられる。Fig. 2 に関して、磁気緩和時間に対応する磁化率虚部のピーク周波数も直流磁場が大きくなると高周波側にシフトすることが確認された。これより、配向の影響により粒子の回転が妨げられ磁気緩和時間が小さくなったと考えられる。実部・虚部において、同じ磁場強度の直流磁場を印加した場合、垂直印加時よりも平行印加時のほうが配向の影響が大きいことが確認された。詳細なデータは当日発表する。

参考文献

- 1) T. Yamaminami *et al*, *J. Magn. Magn. Mater.* **517**, 167401, 2021
- 2) T. Yoshida *et al*, *J Appl. Phys.*, **111**, 053901, 2012
- 3) R. Onodera *et al*, *IEEE Trans Magn.*, **57**, 6100605, 2021
- 4) G. Shi *et al.*, *J. Magn. Magn. Mater.*, **473**, 148, 2019

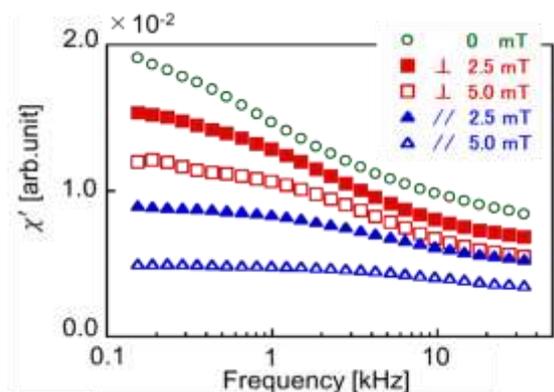


Fig. 1 Real part of AC susceptibility of Resovist measured under different DC magnetic field.

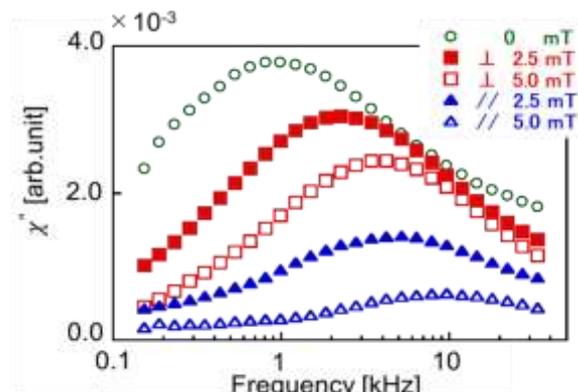


Fig. 2 Imaginary part of AC susceptibility of Resovist measured under different DC magnetic field.

磁性ナノ粒子の DC 磁場を重畳させた交流磁化過程の解析

喜多英治^{1,2)}、小野寺礼尚³⁾、岸本幹雄²⁾、柳原英人²⁾
 (筑波大学応用加速器¹⁾、筑波大学数理物質系²⁾、茨城高専³⁾)

Experimental and simulation studies of dynamic MH loop with DC magnetic field of magnetic nanoparticles

E. Kita¹⁾, R. Onodera²⁾, M. Kishimoto¹⁾ and H. Yanagihara¹⁾

(University of Tsukuba¹⁾, NIT Ibaraki college²⁾)

はじめに

ナノ粒子の交流磁場応答は磁気温熱治療の発熱源やナノ粒子イメージング(MPI)の検知手段として応用が期待されている。AC 磁場単独ではなく DC 磁場を重畳することによって、治療と診断の同時進行や、応用上の特性の制御につながることを期待される。これまでに市販の超常磁性ナノ粒子分散体 (Resovist®) と球形強磁性ナノ粒子分散体について、DC 磁場重畳での交流磁化曲線を測定した[1]。この発表では両者の測定結果を比較し、2 準位モデルによるシミュレーションを用いて解析する。

動的磁化曲線と DC 磁化曲線

Fig.1に Resovist®の動的磁化過程の計測結果を示す。[1] AC 磁場の周波数と振幅は 58kHz、70mT、0~50mT の DC 磁場を AC 磁場と平行に印加した。図中の DC 磁場 0mT のデータに VSM で測定した DC 磁化曲線を点線で重ねて示した。DC 測定では、磁化曲線は保磁力を持たないが、交流磁化曲線は明白な保磁力を示した。DC 磁場の印加により磁化曲線は印加方向に単純にシフトし、ヒステリシス領域での形状変化は小さい。振動磁場が DC 測定でのヒステリシスの領域を超えると、ループ面積は急激に減少する。

解析

交流磁場による動的磁化曲線について、2 準位モデル[2,3]を用いてシミュレーションを行った。Fig.2に、温度 100K で磁気異方性エネルギー 10^4J/m^3 、飽和磁化 10^5A/m 、体積 10^{-24}m^3 のモデル物質に対して、磁場振幅 0.1T の交流磁場を磁気異方性主軸に平行に印加したときの磁化曲線のシミュレーション結果を示す。周波数 30kHz では、ほとんど保磁力を示さないが、500kHz 以上では顕著な保磁力を示す。このことから、磁気緩和による周波数依存性を再現できていると考えている。DC 磁場重畳の効果もシミュレーションで確認する予定である。

参考文献

- 1) 小野寺ほか、日本磁気学会学術講演会 16aC-8 (2020).
- 2) J. Carrey *et al.*, JAP **109**, 083921 (2011).
- 3) J. J. Lu, *et al.*, JAP **76**, 1726 (1994).

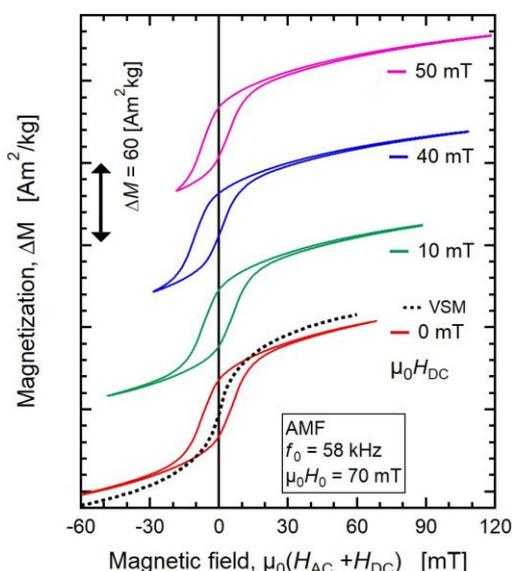


Fig. 1. Dynamic magnetization curves of Resovist®. A dotted line shows a DC magnetization curve.

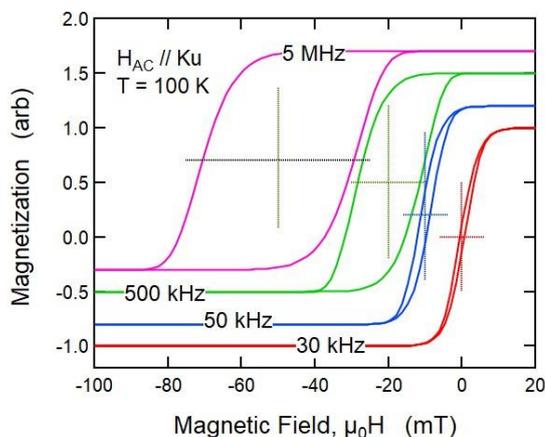


Fig. 2. Simulation of dynamic MH curves as a function of measuring frequency.

交流磁場下における液中酸化鉄ナノ粒子の物体回転観測

諏訪 雅頼, 川東 慎太郎, 塚原 聡
(大阪大学 大学院理学研究科)

Physical rotation of iron oxide magnetic nanoparticles under alternating magnetic field

M. Suwa, S. Kawahigashi, S. Tsukahara
(Graduate School of Science, Osaka University)

緒言

磁性ナノ粒子 (MNP) は磁場を用いて非接触に操作可能で、ナノメートルサイズであることから微小空間の力学特性を測定するためプローブとして期待される。しかし、交流磁場中での MNP 自体の回転運動 (物体回転) には MNP 内での磁化の回転 (内部回転) が影響し複雑である。最近、減衰振動磁場下における酸化鉄 MNP の物体回転を磁気直線二色性 (MLD: 磁場に対し平行および垂直方向の電場を持つ直線偏光の吸光度差) から高感度で観測できることが分かった^[1]。我々が用いた減衰振動磁場は、周波数 10 kHz ~ 80 kHz, 初期振幅は ~0.5 T と比較的強い振動磁場であるが、周波数は離散的にしか変えられず、減衰の時定数は 0.2 ms 程度と短い。本研究では、定常的な交流磁場下における MNP 回転運動の磁場周波数や振幅への依存性を調べた。

実験

共沈法によりマグヘマイト MNP (粒径: 12.2 ± 0.4 nm) を合成し、MLD 測定のためイオン交換水で希釈した (濃度 ~ $60 \mu\text{g mL}^{-1}$)。また、グリセロールの添加により粘性率を変えた。MLD 観測用のコイルや光学系は、以前の報告^[1]と同様のものを用い、Voigt 配置で測定した。コイルにバイポーラ電源を接続し、周波数 10 Hz ~ 10 kHz, 振幅 1 mT ~ 20 mT の定常的な交流磁場を発生させた。磁場に対して 45° の偏光面を持つ直線偏光をコイル内の試料溶液に入射し、磁場と平行および垂直な偏光成分の透過光強度を測定、MLD を計算した。

結果と考察

交流磁場下におけるマグヘマイト MNP 分散溶液の MLD の波形を Fig. 1 に示す。MLD は MNP の配向によって生じるため、この波形は回転運動を表す。MLD のピーク値は周波数に依存しないことから、磁場の各極値で配向が平衡状態に達していることが分かる。一方、バレー値は周波数とともに増加した。これは、周波数に伴って配向が緩和する時間が減少するためと考えられる。さらに、周波数の増加に伴い MLD 波形の位相のずれが観測された。

力学プローブへの応用を目指し、粘性率依存性も調査した。MLD の振幅は粘性率増加に対して単調に減少し、その減少曲線は周波数で異なった。この周波数依存性を用いれば、測りたい粘性の範囲毎に感度を最適化することが可能と考えられる。また、粘性率増加に伴い位相差の増大が観測された。位相は MNP 濃度に依存しないため、粘性測定のパラメータとして有用と考えられる。

参考文献

- 1) M. Suwa, A. Uotani, S. Tsukahara, *Appl. Phys. Lett.*, **116**, 262493 (2020)

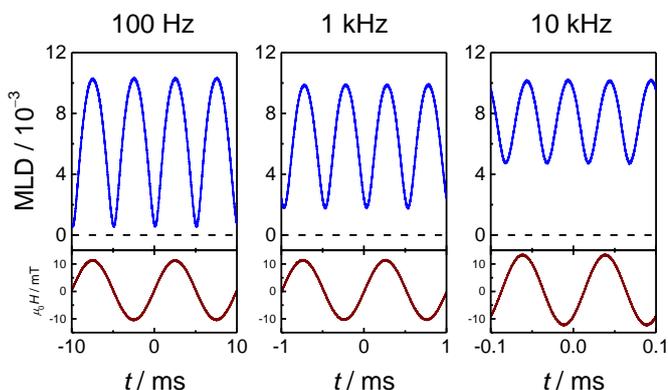


Fig. 1 MLD 波形の磁場周波数変化。上: MLD, 下: 磁場

磁性ナノ粒子のネール緩和とブラウン緩和の複合磁化応答モデル

大多哲史¹, 宮澤良真¹, 永田大貴², 二川雅登¹, 竹村泰司²
(¹静岡大学, ²横浜国立大学)

Complex magnetization dynamics of Néel and Brownian relaxations in magnetic nanoparticles

S. Ota¹, R. Mayazawa¹, D. Nagata², M. Futagawa¹, and Y. Takemura²

(¹Shizuoka University, ²Yokohama National University)

はじめに

磁性ナノ粒子を用いたがん温熱治療や医療イメージングを始めとする医療応用は盛んに研究されている。粒子が液体中に分散した状態では、磁化本来の緩和機構であるネール緩和に加えて、粒子の物理的回転が影響するブラウン緩和が生じる。従来では、ネール緩和にブラウン緩和が重畳するというモデルが考えられていた^{1,2}。本研究では、単純な重ね合わせでは表現できないネール緩和とブラウン緩和のモデルを提案した。超常磁性的なシングルコア、マルチコア、ナノフラワー、強磁性的なシングルコア、立方構造という異なる5つの構造の粒子について、磁化応答の実測から磁気緩和特性を評価した。

実験方法・結果

実験に用いた5種類の酸化鉄ナノ粒子について、超常磁性的なシングルコア構造 (CMEADM-004, S1)、マルチコア構造 (Ferucarbotran, S2) の粒子は名糖産業株式会社から提供いただいた。ナノフラワー構造 (synomag[®]-D, S3)、立方構造 (BNF-starch, S4) の粒子は Micromod 社から、強磁性的なシングルコア構造 (M-300, S5) はシグマハイケミカル社から購入した。粒子の物理的回転を防ぐため樹脂で固定した固体試料と、純水中に分散した液体試料を各粒子に関して用意した。講演において掲載する磁性ナノ粒子の透過型電子顕微鏡像は、横浜国立大学機器分析評価センターに測定いただいた。

Fig. 1 に振動試料型磁力計 (VSM) を用いて磁場強度 0–1200 kA/m の範囲で計測した磁化曲線を示した。固体試料の保磁力について、S1, S2, S3 ではほとんど確認されないが、S4, S5 について明確に確認され、S4, S5 が強磁性的であることが分かる。磁化回転により粒子自体も回転可能な液体試料では、異方性エネルギーが実効的に減少するため、構造に関係なく超常磁性的であった³。また、特に S1 に関しては、液体試料の磁化曲線が固体試料と同様であったことから、異方性エネルギーの小さな粒子であると考えられる。対して S2, S3 に関しては、固体試料においても、超常磁性的な磁気特性が確認された一方で、液体試料の磁化曲線と異なっているため、S1 と比較して異方性エネルギーの大きな構造を有していると考えられる。講演では、交流磁化曲線から解析した励磁周波数に依存した磁気緩和に関する計測結果と、ネール緩和とブラウン緩和を考慮した磁化応答モデルを用いた解析について詳細に述べる。

謝辞

本研究の一部は、科研費 20H05652、20H02163 の助成を受けて実施した。

参考文献

- 1) R.E. Rosensweig, *J. Magn. Magn. Mater.*, **252**, 370–374 (2002).
- 2) S. Ota, and Y. Takemura, *J. Phys. Chem. C*, **123**, 28859–28866 (2019).
- 3) S. Ota, and Y. Takemura, *Appl. Phys. Express*, **10**, 085001 (2017).

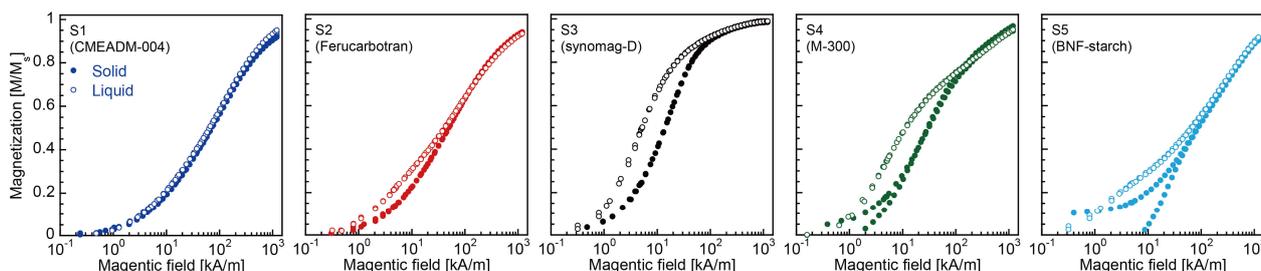


Fig. 1 Magnetization curves of measured magnetic nanoparticles in solid and liquid under magnetic fields of 0–1200 kA/m .

Large magneto-optical effects in a non-collinear antiferromagnet and its application for antiferromagnetic spintronics

Tomoya Higo

(Department of Physics, University of Tokyo, Bunkyo-ku 113-0033, Japan)

Spintronics has attracted considerable attention because of potential applications in non-volatile data storage and low-power information processing. These applications are traditionally based on the control of magnetization in ferromagnetic (FM) materials. On the other hand, in the last few years, there also has been a surge of interest in antiferromagnetic (AF) materials as an active material for next-generation spintronics devices, with the prospect of providing higher density and much faster operation speed for the devices than their ferromagnetic counterparts [1]. However, it is also true that the absence of magnetization has made the AF state notoriously difficult to electrically detect and externally manipulate, unlike in the case of FM systems. Motivated by these intriguing properties, several breakthroughs have been made relatively recently. For example, anisotropic magnetoresistance and spin Hall magnetoresistance, an even-function response under time-reversal (TR), have been found useful for detecting the electrical switching of the collinear AF ordering [2,3]. Another breakthrough is the discovery of an odd-function response under TR in the non-collinear antiferromagnets Mn_3Sn [4]. As the first case in AF metals, Mn_3Sn has been experimentally found to exhibit a large transverse response such as an anomalous Hall effect (AHE) [4] and an anomalous Nernst effect (ANE) [5] which had been considered to be restricted to FMs.

Mn_3Sn is the hexagonal $D0_{19}$ system (space group $P6_3/mmc$) and has the ABAB stacking sequence of the (0001) kagome layer of Mn atoms. Below the Néel temperature $T_N \sim 430$ K, the geometrical frustration leads to a non-collinear AF ordering called the inverse triangular spin (ITS) structure. This AF state can be viewed as a ferroic ordering of cluster magnetic octupoles [6]. Interestingly, in Mn_3Sn , the octupole ordering, not the magnetization, plays a role of the major order parameter breaking the TR symmetry macroscopically. The polarization direction of the TR-odd order parameter (magnetic octupole in Mn_3Sn) determines the distribution of the Berry curvature in momentum space, which acts as an effective magnetic field and gives rise to the TR-odd transverse responses [4,7]

In this presentation, I will talk about magneto-optical properties of Mn_3Sn [8]. The magneto-optical Kerr effect (MOKE) has been intensively studied in various ferro- and ferrimagnetic materials because it provides a powerful non-contact and non-destructive probe for electronic and magnetic properties as well as for various applications, including magneto-optical recording. Although MOKE had been believed to be absent in the fully compensated collinear AFMs, recent theoretical and experimental progress has revealed that AHE has the same symmetry requirements as MOKE [9], suggesting the potentially large MOKE in Mn_3Sn . In fact, we have found that despite a negligibly small magnetization, Mn_3Sn exhibits a large zero-field MOKE (~ 20 mdeg) at room temperature, comparable to that in ferromagnets. Our first-principles calculation has clarified that the ferroic ordering of the cluster magnetic octupoles causes MOKE even in its fully compensated AF state. This large MOKE further allows imaging of the octupole domains (Fig. 1), which are closely related to the large transverse responses (e.g., AHE, ANE) induced by the Berry curvature, as discussed above. I will also report recent progress of development of the Mn_3Sn thin films [10] and newly observed optical responses from the terahertz waves [11]. These findings have provided an important avenue for further studying the AF dynamics [12] and developing AF devices such as memory [13] and heat-flux sensor [14].

This work is based on the collaboration with S. Nakatsuji group (Univ. of Tokyo), R. D. Shull group (NIST), J. Orenstein group (UCB), C. L. Chen group (JHU), R. Arita group (Univ. of Tokyo), Y. C. Otani group (ISSP), R. Matsunaga group (ISSP), N. P. Armitage group (JHU), S. Miwa group (ISSP), K. Yakushiji group (AIST), K. Kondou, T. Koretsune, and M.-T. Suzuki.

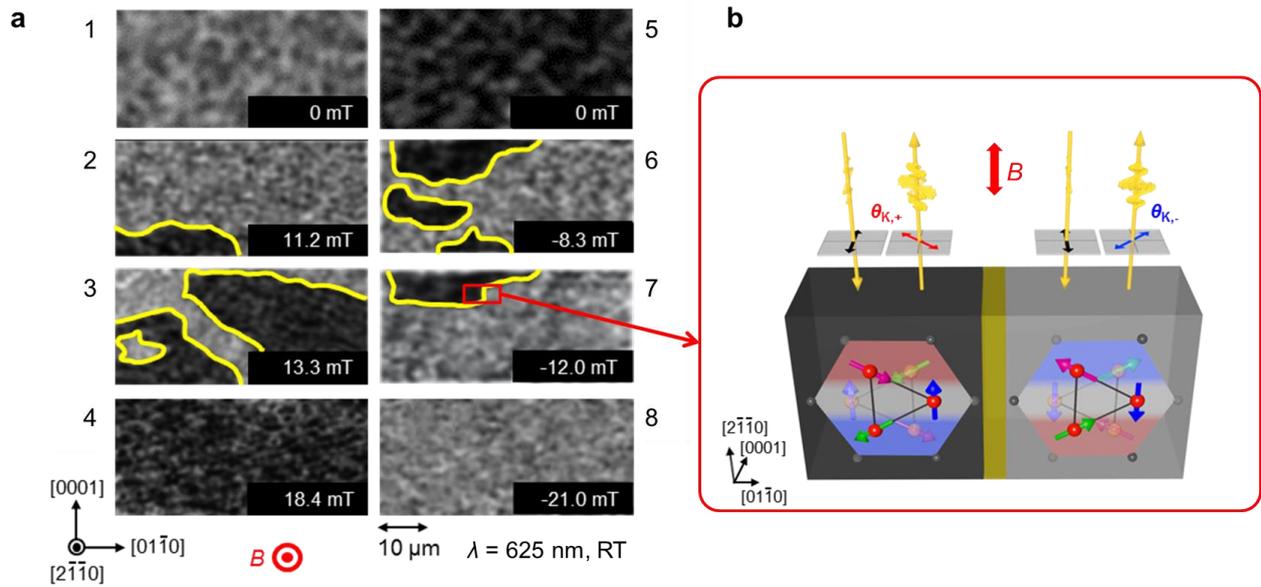


Fig.1 (a) Evolution of the antiferromagnetic domains of the Mn_3Sn (2-1-10) plane as a function of a field B (1-4: $-21 \rightarrow 21$ mT, 5-8: $21 \rightarrow -21$ mT). (b) Schematic illustration of two regions with different MOKE image contrasts due to opposite signs of the Kerr angles, corresponding to two types of cluster magnetic octupole domains that have inverse triangular spin structures with opposite spin directions within the (0001) plane.

Reference

- 1) T. Jungwirth et al., Nat. Nanotech. **5**, 231 (2016).
- 2) X. Marti et al., Nat. Mater. **13**, 367 (2014).
- 3) P. Wadley et al., Science **351**, 587 (2016).
- 4) S. Nakatsuji, N. Kiyohara, and T. Higo, Nature **527**, 212 (2015).
- 5) M. Ikhlas⁺ and T. Tomita⁺ et al., Nat. Phys. **13**, 1085 (2017).
- 6) M.-T. Suzuki et al., Phys. Rev. B **95**, 094406 (2017).
- 7) K. Kuroda⁺ and T. Tomita⁺ et al., Nat. Mater. **16**, 1090 (2017).
- 8) T. Higo et al., Nat. Photon. **12**, 73 (2018).
- 9) W. Feng et al., Phys. Rev. B **92**, 144426 (2015).
- 10) T. Higo et al., Appl. Phys. Lett. **113**, 202402 (2018).
- 11) T. Matsuda et al., Nat. Commun. **11**, 909 (2020).
- 12) S. Miwa et al., Small Sci **1**, 2000062 (2021).
- 13) H. Tsai⁺, T. Higo⁺ et al., Nature **580**, 680 (2020).
- 14) T. Higo et al., Adv. Funct. Mater **31**, 2008971 (2021).

Theoretical proposal for control of spin textures and vortices with topological light waves

Masahiro Sato

Department of Physics, Ibaraki University, Bunkyo, Mito 310-8512, Japan

Topological light waves such as vortex beams, vector beams, etc., have attracted much attention in the field of optics and laser science. Their basic natures and efficient methods of generating these waves have actively explored. These spatially structured lights have high potential to create various novel photo-induced phenomena when we apply them to materials. However, the study of such possibilities has been finally activated very recently. Motivated by this situation, we have theoretically studied several ways of application of topological light waves to materials. Particularly, we have focused on ways of controlling electron states in solid materials with topological lights.¹⁾⁻⁴⁾ In this symposium, I would like to mainly report two topics among our results.

The first topic is the application of vortex beam to magnets (Fig.1).^{1),2)} Vortex beam is the laser beam carrying orbital angular momentum (OAM). This wave has two characteristics. The first feature is that the intensity profile of the vortex beam is a doughnut type, i.e., the center of the beam focused plane is always the position of zero intensity irrespective of the value of OAM. The second is that electric- and magnetic-field directions has an angular dependence around the zero-intensity center in the focused plane. Based on these two natures, we have proposed ultrafast ways of creating topological magnetic defects such as skyrmion and skyrmionium (Fig.2), spin waves with a spiral wavefront (Fig. 3), and so on.

The second topic is the application of vector beam.^{3),4)} The vector beams also have unique spatial features. A simple way of creating a vector beam is to prepare a superposition of two vortex beams with OAM $+m$ and $-m$. Strongly focusing such a vector beam with lens, at the center of the focal plane we have the small singular area where only the AC magnetic (electric) field is dominant, while AC electric (magnetic) field is negligible. Namely, we can create a strong high-frequency magnetic (or electric) field without its dual field. Using this property, we have proposed several applications of vector beam to materials: Detecting magnetic resonance in magnetic semiconductors and multiferroic magnets, observing the edge current in topological phases (topological insulators, topological superconductors, etc.), estimating Fermi surface of metallic magnets, Floquet engineering, etc.

In this symposium, I would like to report these results, concentrating on their essential aspects. Moreover, if possible, I will also report our on-going result of application of vortex beam to superconductors.⁵⁾

Reference

- 1) H. Fujita and M. Sato, Phys. Rev. B **95**, 054421 (2017).
- 2) H. Fujita and M. Sato, Phys. Rev. B **96**, 060407(R) (2017).
- 3) H. Fujita and M. Sato, Sci. Rep. **8**, 15738 (2018).
- 4) H. Fujita, Y. Tada and M. Sato, New J. Phys. **21**, 073010 (2019).
- 5) T. Mizushima and M. Sato, in preparation.

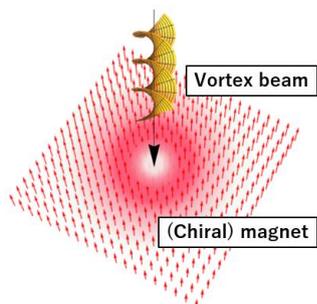


Fig. 1: Image of application of vortex beam to a magnet.

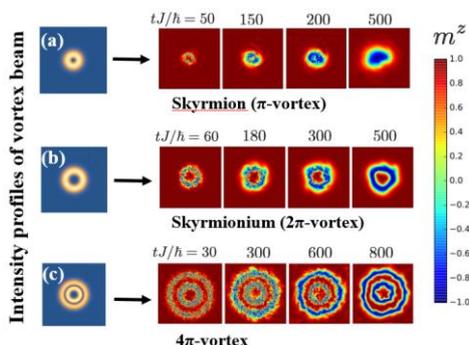


Fig. 2: Processes of creating topological defects in a magnet with (a) small-ring, (b) wide-ring, and (c) double-ring vortex beams.

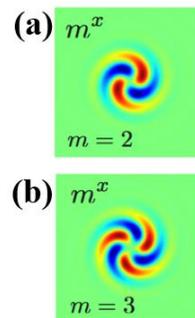


Fig. 3: Spin-wave resonances driven by vortex beams with QAM (a) $m=2$ and (b) 3.

Metamaterials and metasurfaces with broken symmetries

Satoshi Tomita

*Dep. of Physics & Center for Spintronics Research Network & Institute for Excellence in Higher Education,
Tohoku University, Japan*

tomita@tohoku.ac.jp

In this invited talk, I am going to present intriguing optical responses of structured metamaterials and metasurfaces with broken symmetries [1,2,3]. Mostly, my talk focuses on directional birefringence independent of light waves polarization, referred to as optical magneto-chiral (MCh) and magneto-electric (ME) effects. I would like to convince the audience that metamaterials and metasurfaces can boost optical MCh and ME effects by several orders of magnitude compared to natural materials.

The optical MCh effect is a combination of the magneto-optical (MO) effect and optical activity (OA). While the effect is usually very small in natural materials, it can be enhanced using metamaterials [1]. We embody experimentally a metamolecule using a Cu chiral structure (chiral meta-atom) for OA and YIG ferrite rod/cylinder (magnetic meta-atom) for the MO effect. The metamolecule is studied at the X-band microwave frequency at room temperature. At a chiral resonance frequency around 10 GHz, a large non-reciprocal refractive index difference around $\sim 10^{-3}$ enhanced by MCh effects is observed [4]. Numerical calculations have successfully reproduced this experimental observation and revealed that the enhancement is traced back to the hybridization of ferromagnetic resonance (FMR) in the magnetic meta-atom and chiral resonances in the chiral meta-atom. Furthermore, numerical simulation predicts a giant MCh effect with a much larger index difference [5]. Notably, our concept of enhanced MCh effects using metamaterials is applicable to other regions of the spectrum including, the THz, infrared, and visible region.

For a higher frequency operation than microwave, MCh metamolecules are miniaturized using a strain-driven self-coiling technique. A micrometer-sized free-standing Py chiral metamolecule is studied by cavity-FMR and coplanar-waveguide FMR [6]. This miniaturized metamolecule is very promising for obtaining optical MCh effects at millimeter wave and THz frequencies. However, many challenges remain within the optical region. To reach the optical region, the MCh metamolecule must be miniaturized to the nanometer-scale, and losses need to be reduced significantly. The former issue can be addressed by using supramolecules or biomolecules; for example, viruses, proteins, and coiled peptide.

The enhanced and giant MCh effects open a door toward the realization of synthetic gauge fields, in other words, effective magnetic fields for electromagnetic waves. However, the values of non-reciprocal refractive index differences obtained in this study are not yet large. Additionally, although numerical simulation predicted the giant MCh effect, it is relevant to a characteristic electromagnetic mode in the waveguide. Hence, implementation of the giant MCh effect by assembled metamaterials and metasurfaces in free-space is of great importance.

I thank K. Sawada, H. Kurosawa, T. Ueda, T. Kodama, N. Kikuchi, S. Okamoto for their valuable contribution in this work. I acknowledge financial supports by JSPS KAKENHI (20H02556, 20H01911) and CSRN of Tohoku University.

Reference

[1] S. Tomita *et al.*, JPD:ApPh **51**, 083001 (2018). [2] S. Tomita *et al.*, PRAppl **11**, 064010 (2019). [3] P. Riego *et al.*, JPD:ApPh **50**, 19LT01 (2017). [4] S. Tomita *et al.*, PRL **113**, 235501 (2014). [5] S. Tomita *et al.*, PRB **95**, 085402 (2017). [6] T. Kodama *et al.*, PRAppl **6**, 024016 (2016), *ibid.* **9**, 054025 (2018).

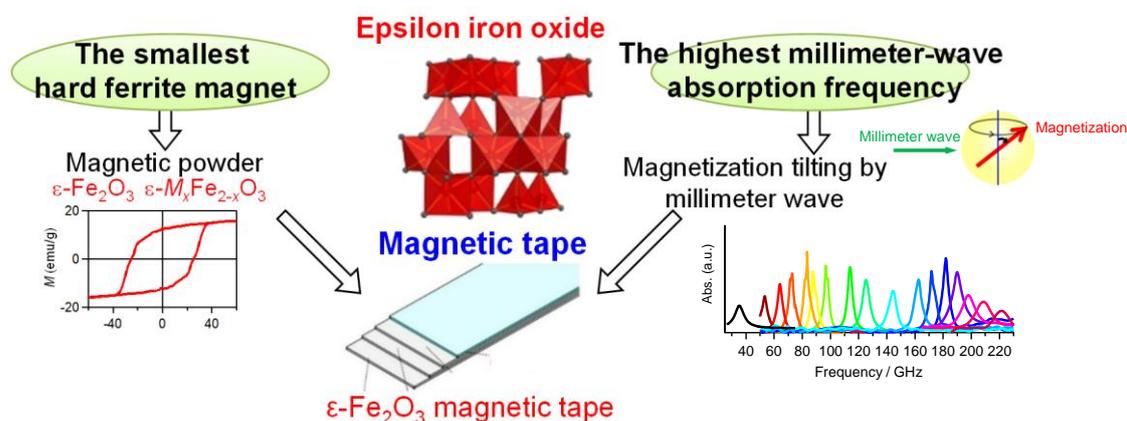
Focused-millimeter-wave-assisted magnetic recording based on epsilon iron oxide

Shin-ichi Ohkoshi

Department of Chemistry, School of Science, The University of Tokyo, Tokyo, 113-0033, Japan

We reported the first example of a single-phase epsilon iron oxide ($\epsilon\text{-Fe}_2\text{O}_3$) exhibiting the strongest coercivity among all known ferrite magnets in 2004. Metal-substituted epsilon iron oxide exhibits a coercivity of up to 37 kOe. $\epsilon\text{-Fe}_2\text{O}_3$ is the world's smallest hard ferrite magnet with a ferromagnetic order of up to 7.5 nm, which can be applied to high-density magnetic recording tapes. Moreover, $\epsilon\text{-Fe}_2\text{O}_3$ and metal-substituted epsilon iron oxide have the highest millimeter wave absorption frequency in the range from 35 to 222 GHz.

In the era of Big Data and the Internet of Things, data archiving is an essential technology, and therefore magnetic recordings are drawing attention because they guarantee long-term data storage. To archive a huge amount of data, further increase of the recording density is required. Herein a new magnetic recording methodology, "focused-millimeter-wave-assisted magnetic recording (F-MIMR)," is proposed. To examine this methodology, magnetic films based on epsilon iron oxide nanoparticles are prepared and a focused-millimeter-wave generator is built using terahertz (THz) light. Irradiating the focused millimeter wave to the epsilon iron oxide instantly switches its magnetic pole direction. Additionally, the spin dynamics of F-MIMR are studied using the calculation based on stochastic Landau–Lifshitz–Gilbert model considering all of the spins in an epsilon iron oxide nanoparticle. In F-MIMR, the heat-up effect of the recording media is expected to be suppressed. Thus, F-MIMR can be useful for high-density magnetic recordings. Millimeter wave magnetic recording technique enables to reduce the particle size of the magnetic material and solve the magnetic recording trilemma, leading to the increase of the recording capacity. The transition energy of the millimeter wave is *ca.* 1/5000 compared to that visible light. Therefore, heat-up is avoided in millimeter wave-assisted magnetic recordings, which is very important for magnetic recording tapes that use organic resin for the base film.



Focused-millimeter wave assisted magnetic recording (F-MIMR)

Reference

- 1) S. Ohkoshi, et al. *Adv. Mater.*, 32, 2004897 (2020).
- 2) S. Ohkoshi, et al. *J. Am. Chem. Soc.*, 141, 1775-1780 (2019).
- 3) H. Tokoro, S. Ohkoshi, et al. *Chem. Mater.*, 30, 2888-2894 (2018).
- 4) S. Ohkoshi, et al. *J. Am. Chem. Soc.*, 139, 13268-13271 (2017).
- 5) S. Ohkoshi, et al. *Scientific Reports*, 6, 27212 (2016).
- 6) S. Ohkoshi, et al. *Angew. Chem. Int. Ed.*, 55, 11403-11406 (2016).
- 7) A. Namai, S. Ohkoshi, et al. *Nature Communications*, 3, 1035 (2012).
- 8) S. Ohkoshi, et al. *Angew. Chem. Int. Ed.*, 46, 8392-8395 (2007).

Development of magnetic holographic memory using artificial magnetic lattice media

Y. Nakamura¹, P. B. Lim¹, and M. Inoue^{1,2}

¹ Toyohashi University of Technology, Toyohashi 441-8580, Japan

² National Institute of Technology, Tokyo 193-0834, Japan

Holographic memory has been attracting attention as a data-storage technology with high recording density and data transfer rates because two-dimensional (2D) page data can be recorded and read selectively from a single position. In holographic memory, 2D data is recorded as an interference pattern in recording media. Most holographic memories use photopolymers as a write once recording media, while the magnetic hologram is a candidate for rewritable holograms in which the interference patterns of light can be recorded as differences in the direction of magnetization on the magneto-optic recording materials. A magnetic hologram is recorded using the thermomagnetic recording technique. When focused signal and reference beams are incident on a perpendicularly magnetized media, the light interference produces a temperature distribution in the film corresponding to the interference pattern through the absorption of light. As a result, the magnetization of the region above the Curie temperature is reversed during cooling, and the interference pattern can be recorded as differences in the direction of magnetization of the magnetic material in the magnetic hologram. A written hologram can be reconstructed by a magneto-optical effect such as the Faraday effect, and a large Faraday rotation angle results in a bright reconstruction image.

We have studied to realize magnetic hologram memory using polycrystalline magnetic garnet (Bi:RIG) films using the collinear interference method. We succeeded recording and reconstruction of magnetic hologram but this first reported reconstruction image of the collinear magnetic holography was dark and noisy with large background noise¹⁾. On the other hand, we have also developed magnetic materials that introduce artificial structures with a scale of several nm to several hundred nm showing new magnetism and functions depending on its structure, which is called artificial magnetic lattice (AML). Based on this knowledge, we investigated the recording conditions including the AML recording media to improve the reconstruction image of magnetic hologram. In this report, the improvement of recording media is reported to achieve a large magneto-optical effect to achieve bright reconstruction images.

The diffraction efficiency of magnetic hologram, which is an index of the brightness of reconstructed image, is described as $\eta = \sin^2(\theta_F) \approx \theta_F^2 = (Ft)^2$, where θ_F is Faraday rotation angle of magnetic hologram, F is the Faraday rotation coefficient representing the rotation angle per unit thickness, and t is the depth of magnetic hologram, respectively. So, the recording of deep magnetic fringe in the recording media with large Faraday rotation coefficient is required to achieve bright reconstruction images. We have taken two ways to solve this issue. One is the use of magneto-photon microcavity (MPM) media for increasing the rotation angle per unit thickness^{2,3)}, and the other is the introduction of heat dissipation layers (HDLs) for controlling the heat generated during writing to form deep magnetic fringes⁴⁻⁶⁾. The MPM media, in which Bi:RIG layer is sandwiched between dielectric mirrors, can increase the Faraday rotation angle of a design wavelength by Fabry-Pérot resonance. We proved that the diffraction efficiency can be increased by the use of MPM media depending on the structure²⁾, and that the brightness of reconstruction image of magnetic hologram recorded on MPM medium with 1 μm Bi:RIG layer was also increased compared to that of the same thickness single layer film as shown in Fig. 1³⁾. On the other hand, the recording thickness of magnetic fringe in single layer films is limited by the heat diffusion during thermomagnetic recording although the formation of deep magnetic fringe increases the diffraction efficiency. That is, the excess heat by the absorption of light during recording diffuses laterally and merges the regions above Curie temperature near the surface of recording medium. As a result, the interference information is disappeared in such the region. To overcome this issue, the multilayer media with transparent HDLs without light absorption is proposed to control the heat diffusion in magnetic layer. In this HDL media, the most of excess heat is diffused into the HDLs, so the deep magnetic fringe can be formed. The effectiveness of this HDL multilayer film was first shown by numerical simulation⁴⁾. The HDL medium using $\text{Tb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ (TGG) for HDL layers was designed and fabricated as shown in Fig. 2(a), and the diffraction efficiency of the HDL and single layer media was evaluated using magnetic assist recording. As a result, the diffraction efficiency of HDL medium was about 1.6 times higher than that of single layer film as shown in Fig. 2⁵⁾. In addition, the error-free recording and

reconstruction was also achieved using this HDL medium. These results suggest that the use of artificial magnetic lattice media such as the MPM and HDL media is effective to achieve bright reconstruction image without error for magnetic holographic memory.

This work was partially supported by JSPS KAKENHI Grant Number A15H02240 and S26220902, and 21H01368.

Reference

- 1) Y. Nakamura, et al. Opt. Express, **22** (2014) 16439.
- 2) R. Isogai, et al. J. Magn. Soc. Jpn., **38** (2014) 119.
- 3) R. Isogai, et al. Opt. Express, **23** (2015) 13153.
- 4) R. Isogai, et al. Opt. Express, **24** (2016) 522.
- 5) Y. Nakamura, et al. Opt. Express, **27** (2019) 27573.

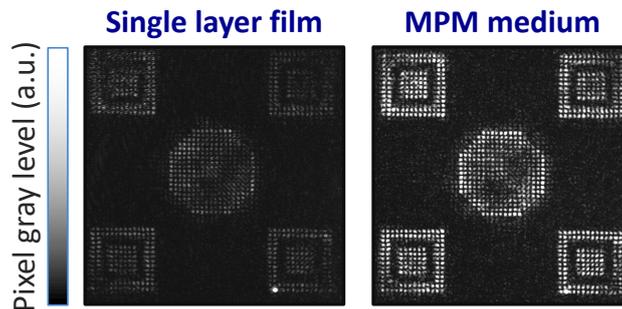


Fig. 1 Reconstruction images from Bi:RIG single layer film and MPM medium. Both media have the 1 μm thick Bi:RIG recording layer. The bright and high contrast image was obtained from the MPM medium.

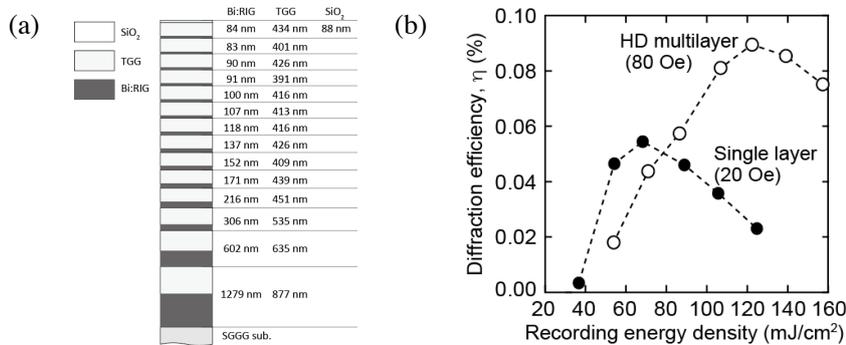


Fig. 2 (a) The structure of the fabricated HDL medium and (b) the diffraction efficiency of HDL and single layer media using magnetic assist recording.

Near-Infrared Magneto-Refractive Effect for Magnetic Multilayer; GMR film and Ferro./Antiferro. stacked film with Surface Plasmon Resonance

Shin Saito ^{a)}, and Hironaga Uchida ^{b)}

(a) Department of Electronic Engineering, Graduate School of Engineering, Tohoku University

b) Electrical and Electronic Information Engineering, Toyohashi University of Technology

1. Introduction

Much attention has been paid for magneto-refractive effect with the reflection configuration (R-MRE), because this effect simply brings light intensity change according with the arrangement of magnetizations. The magnitude of this change is small of about several %, which makes an application of R-MRE to real device difficult in this stage. In general, for a metallic magnetic multilayer film, a dominant factor of MRE is thought to be the spin-dependent scattering of conduction electrons and its optical properties are expressed by expanded Drude model corresponding to the magnetization state [1]. Therefore, evaluation of scattering time and spin-dependent scattering coefficient of metallic magnetic multilayer film are of importance as material physical properties to enhance R-MRE. However, materials examination to evaluate these properties in optical frequency region is not enough. In this study, the measurement of magneto-optical properties in IR region for antiferro-magnetically exchange coupled Co/Ru multilayers was carried out.

2. Experimental procedure

The multilayer films were fabricated by dc magnetron sputtering on glass substrates. A Ti(2 nm)/ Ru(3 nm) layer was adopted as an interlayer for the purpose of adhesion of the film to the substrate and the control of crystalline sheet texture with atomic closed packed plane parallel to the film plane. A SiN with 10 nm thick was used as a capping layer to avoid oxidation. The stacking structure of the magnetic multilayer was [Co or CoB(4 nm)/ Ru(d_{Ru} nm)]_N with the repetition number N of 10 with changing d_{Ru} from 0 to 1.2 nm. Here, Ru was selected as a nonmagnetic layer material to stabilize anti-parallel magnetically coupling state under zero field with a thinner film thickness than that of Cu by RKKY-like interlayer exchange coupling.

Magnetic properties were evaluated by the vibrating sample magnetometer with the maximum applied field (H_{max}) of 14 kOe. Optical properties were spectroscopically measured by the ellipsometer (M-2000, J. A. Woollam) with the wavelength region from 250 to 1700 nm. R-MRE was spectrometrically measured by hand-made system with an electromagnet applying magnetic field (H) along the film plane direction [2]. Here, the measurement wavelength (λ) range was 550–1650 nm limited by monochromator (USB-2000 and NIR-QUEST, Ocean Optics) and H_{max} was 14 kOe.

3. Results and discussion

Figure 1 shows color maps of experimental reflectance with the incident angle 70 deg. plotted against wavelength and magnetic field for a (a) [Co(4)/ Ru(0.7)]₁₀ film, (b) [Co₈₈B₁₂(4)/ Ru(0.7)]₁₀ film, and (c) [Co₈₀B₂₀(4)/ Ru(0.7)]₁₀ film, respectively. Here, magnetic field was applied in the film plane and along the normal direction of the reflection plane. For reader's understanding, reflectance curves normalized by the magnitude of reflectance of $H = 14$ kOe for the sample (a) are shown with the wavelength of (a-1) 1550 nm, (a-2) 1200, and (a-3) 900 nm, respectively. As shown in (a), in the longer wavelength region, reflectance changes corresponding to the arrangement of magnetizations such as parallel and anti-parallel, whereas in the shorter wavelength region, corresponding to the direction of magnetizations. This means that both R-MRE and transvers Kerr effect (TKE) are appeared in the same sample but different wavelength region due to intra-band and inter-band transition. On the other hand alternating crystalline Co layers with amorphous CoB layers as shown in (b) and (c), R-MRE is completely vanished, though antiferromagnetically interlayer coupling is realized in the all films. This fact clearly shows that crystalline symmetry is necessary condition for MRE due to suppression of

scattering of conduction electrons in the ferromagnetic layer. Magnetic multilayer for GMR film and Ferro./Antiferro. stacked film with Surface Plasmon Resonance will be also introduced in the presentation.

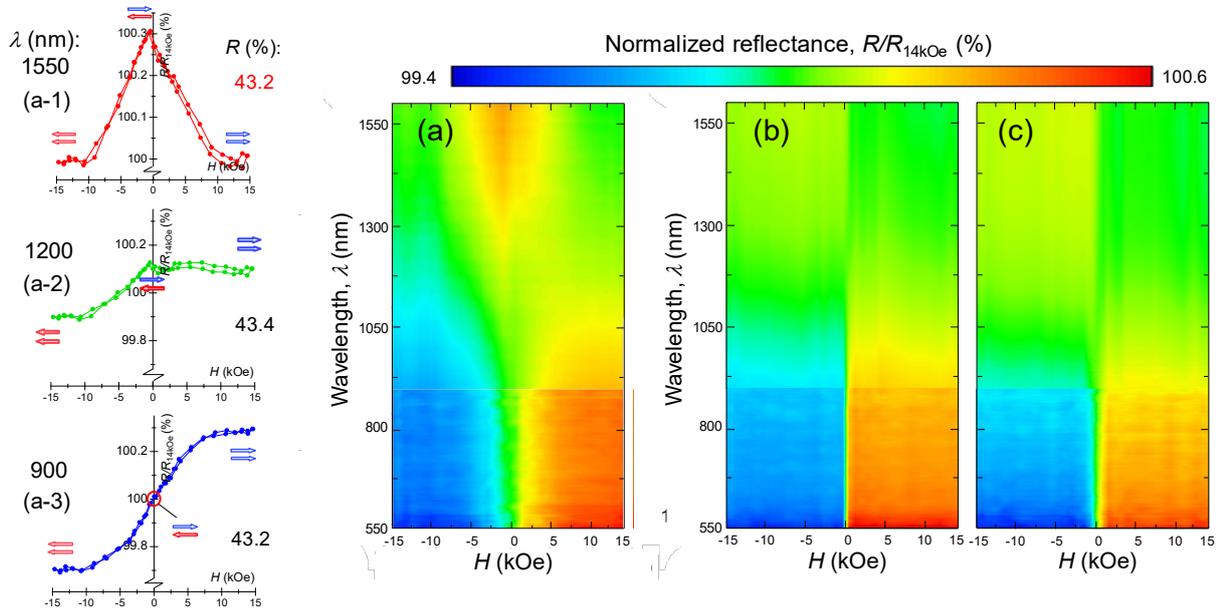


Fig. 1 Color maps of reflectance normalized by the magnitude of reflectance of $H = 14$ kOe plotted against wavelength and magnetic field for $[\text{Co or CoB}(4 \text{ nm})/\text{Ru}(0.7 \text{ nm})]_{10}$ multilayer films for (a) Co, (b) $\text{Co}_{88}\text{B}_{12}$, and (c) $\text{Co}_{80}\text{B}_{20}$, respectively. Reflectance curves for the sample (a) are also shown with the wavelength of (a-1) 1550 nm, (a-2) 1200, and (a-3) 900 nm, respectively.

Reference

- [1] J. C. Jacquet and T. Valet, *Materials Research Society*, **384**, 477 (2015). [2] Haruhiko Sato, Shin Saito, Shyota Mizuno, Koichi Akahane and Hironaga Uchida, *IEEJ Transactions on Fundamentals and Materials*, **136**, 174 (2016).

Faraday effect of nanogranular films

N. Kobayashi, K. Ikeda, and K. I. Arai

(Research Institute for Electromagnetic Materials, DENJIKEN)

Optical isolators utilizing Faraday effect are used in many applications, such as quality assurance of optical amplifier, optical ring laser, optical communication system, in the commercial, industrial and laboratory. They are highly reliable and important tools to support the advanced information society. However, since the discovery of the bismuth garnet (Bi substituted YIG, Bi-YIG) in 1972, no material with Faraday effect beyond Bi-YIG has been found. Furthermore, to respond of miniaturization of the optical devices, thin films with large Faraday effect have been studied, but their properties are inferior to the bulk Bi-YIG. Since new Faraday materials are not discovered, proposals for new optical devices are restricted. On the other hand, we have proposed a new magnetic transparent material of FeCo-fluoride nanogranular films. Nanogranular films consisting of nanometer-sized magnetic metal (Fe, Co or FeCo alloy) granules and a ceramic insulating matrix (nitride, oxide or fluoride) exhibit various functional properties such as high frequency permeability, tunneling magneto resistance, magneto-dielectric effect and magneto-optical effect depending on the composition ratio of granules and matrix. In addition, these films have significant practical advantages (e.g., they are easily fabricated and are thermally stable, and have been applied in magnetic sensors). Here, we introduce the giant Faraday effect of nanogranular films. Faraday rotation angles of these films are 40 times larger than the Bi-YIG at a wavelength of optical communication band (1500 nm)⁽¹⁾.

Thin films were fabricated using a RF tandem sputtering method. With the tandem method, a thin film is obtained by rotating a substrate holder so that the substrate alternately moves over a magnetic metal target and ceramics matrix target. The film composition was adjusted via power input to respective targets. The substrate used was heated quartz glass and heat treatment was performed after the film deposition. Thickness of, thus, obtained film materials was 0.5–1.0 μm . Films composition were determined with a wavelength - dispersive x - ray spectrometer (WDS), and film structure was evaluated using x - ray diffraction (XRD). Faraday effect was evaluated at six wavelengths (405, 515, 650, 830, 1310, and 1550 nm) using Faraday effect measuring equipment (BH - 600LD2M by NEOARK Corp.). Optical transmittance of thin films was measured with a spectrophotometer (UV - 3150 by Shimadzu Corp.); refractive index was determined from results of measurement in a wavelength range of 200–2000 nm using a spectroscopic ellipsometer. Values of optical transmittance and Faraday rotation angle in samples with different thickness were compared by reduction to thickness (optical path length) of 1 μm . All the mentioned evaluation procedures were conducted at room temperature.

Fig.1 shows the wavelength dependence of the Faraday rotation angle of $\text{Fe}_{21}\text{Co}_{14}\text{Y}_{24}\text{F}_{41}$, $\text{Fe}_{25}\text{Y}_{23}\text{F}_{52}$ and $\text{Fe}_{13}\text{Co}_{10}\text{Al}_{22}\text{F}_{55}$ films and bulk Bi-YIG. All the nanogranular films depicted in Fig.1 have much larger absolute Faraday rotation angles than Bi-YIG. The angle in the wavelength of 1310 to 1550 nm, which corresponds to the bands of optical communication, is small in Bi-YIG. In contrast, the nanogranular films exhibit large values in optical communication bands. In this presentation, we will also introduce the recent data.

Acknowledgments This work was supported by JSPS KAKENHI Grant Number JP20H02468, JP20K03843, JP19K21959, JST-CREST JPMJCR19T1, and Tohoku University Center for Spintronics Research Network.

Reference

- 1) N. Kobayashi, K. Ikeda, Bo Gu, S. Takahashi, H. Masumoto, and S. Maekawa, Scientific Reports, 8, 4978 (2018)

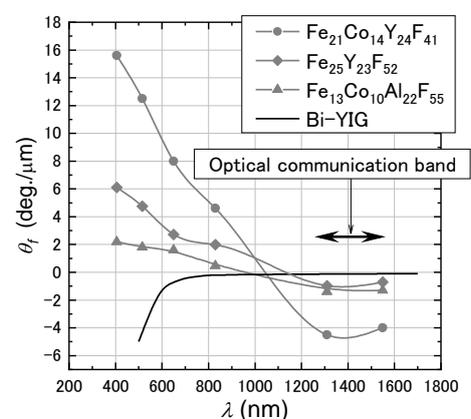


Fig.1 Relationship between the wavelength of incident light and the Faraday rotation angle of $\text{Fe}_{21}\text{Co}_{14}\text{Y}_{24}\text{F}_{41}$, $\text{Fe}_{25}\text{Y}_{23}\text{F}_{52}$ and $\text{Fe}_{13}\text{Co}_{10}\text{Al}_{22}\text{F}_{55}$ films. The films were deposited on substrates of 600 $^{\circ}\text{C}$, 550 $^{\circ}\text{C}$ and 680 $^{\circ}\text{C}$.