MR センサを用いた磁気粒子イメージング

Suko Bagus Trisnanto¹、笠島多聞²、悪七泰樹²、竹村泰司¹ (¹横浜国立大学、²TDK 株式会社)

Magnetic particle imaging using magnetoresistive sensor Suko Bagus Trisnanto^{*1}, Tamon Kasajima², Taiju Akushichi², Yasushi Takemura¹ (¹Yokohama National University, ²TDK Corporation)

<u>はじめに</u>

磁気粒子イメージングは、腫瘍等に選択させた磁性ナノ粒子を検出、画像化する技術である¹⁻³⁾。20 kHz 程度の交流磁界を印加し、磁性ナノ粒子を磁化させ、その磁化信号の時間変化を検出コイルへの誘導起電力として測定する手法が主に用いられている。本講演では、磁気抵抗効果(MR)センサを用いた磁性ナノ粒子の検出を報告する。MR センサの入力磁界に対して出力電圧が飽和する非線形特性を応用することにより、従来よりも印加する交流磁界の強度や周波数を低減できる可能性が示唆された。

実験方法と結果

TDK 製の MR センサを使用した。室温動作下で微弱磁界を検出することが可能であり、心臓磁界計測への 応用も報告されている⁴⁾。磁気粒子イメージングを試みた測定系を Fig.1 に示す。試料には超常磁性を示す MRI 造影剤 Resovist[®]を用いた。エポキシ樹脂に分散させた固相、直径 3 mm の円錐形状であり、2.8 mg-Fe を 含む。傾斜静磁界は 0.8 T/m、交流励磁磁界は 0.04 mT/ μ_0 @10 kHz とした。500 Hz 及び 502.5 Hz の走査磁界 により画像構成した結果を Fig. 2 に示す。Reference は試料なし、検出コイルへの誘導起電力の基本波信号に よる画像構成、検出コイルを 1 次コイルとして 2 次コイルがつくる磁界を測定する MR センサ出力の第 7 高 調波信号による画像構成である。MR センサを使用して、線形磁化応答する磁性ナノ粒子のイメージングが 可能であることがわかった⁵。

参考文献

- 1) B. Gleich, J. Weizenecker, Nature, 435, 1214, 2005.
- 2) 吉田、日本磁気学会 まぐね, 13(4), 161, 2018.
- 3) S. B. Trisnanto, Y. Takemura, *Physical Review Applied*, 14, 064065, 2020.
- 4) 寺園、澁谷、大川、日本磁気学会 まぐね, 14(4), 211, 2019.
- 5) S. B. Trisnanto, T. Kasajima, T. Akushichi, Y. Takemura, submitted.





5.0

Fig. 1 Simplified instrumentation setup of MPI scanner with MR sensor.

Fig. 2 Axial cut of a cone shaped solid Resovist[®] phantom reconstructed from (a) pickup coil and (b) MR sensor signals.

人体サイズ MPI に向けた超伝導傾斜磁界コイルの設計

吉本昌史¹、森岡大陽¹、笹山瑛由¹、竹村泰司²、吉田敬¹ (¹九州大学、²横浜国立大学)

Design of gradient magnetic field coil using superconducting tape for human body size MPI Masafumi Yoshimoto¹, Hiroaki Morioka¹, Teruyoshi Sasayama¹, Yasushi Takemura², Takashi Yoshida¹ (¹Kyushu Univ., ²Yokohama National Univ.)

はじめに

磁性ナノ粒子からの磁化信号を読み取ることで、疾患領域の画像化を 高感度・高分解能で行う磁気粒子イメージング(MPI)が注目されている。 MPIの人体応用に向けて、装置のボア径拡大が求められるが、従来通り の銅コイルを用いると、MPIで必要な傾斜磁界を発生させることができ ない。そこで、銅コイルに代わり高磁界を発生可能な超伝導コイルを用 いることが有用だと考えられる。本研究では、超伝導コイルを用いるこ とで、人体サイズの MPI 装置において必要な傾斜磁界が発生可能なこ と、またそれを、磁気共鳴映像法(MRI)の静磁界コイルを逆接続で利用 することで実現可能であることを示す。

方法

Fig.1 に示すように、人体サイズの MPI 装置としてボア径 600 mm を想定 し、超伝導コイルは内径 800 mm、コイル間距離 690 mm のマクスウェルコイ ルとした。用いる超伝導線材は幅 4 mm、厚さ 0.15 mm の高温超伝導テー プ線材を想定し、巻き数は一層 500 turn の超伝導コイルを積層させることで 変化させた。ビオ・サバールの法則を基に数値計算により、発生する磁界 の計算を行った。傾斜磁界は、コイル巻き数(層数)を変化させることにより 1 T/m、2 T/m の発生を目指した。

結果

Fig.2(a) に 100 A の電流を逆向きに流し傾斜磁界を発生させたときの、 マクスウェルコイル中心軸上での磁束密度を示す。横軸は距離であり、z = 0 mm をマクスウェルコイル間の中心とした。2500 turn (5 層)において 1 T/m、5000 turn (10 層)において 2 T/m を実現できることが分かる。次に、傾 斜磁界 1 T/m、2 T/m を発生する巻き数(層数)において、100 A の電流を 同方向に流した場合の磁束密度の結果を Fig.2(b) に示す。z = 0 mm にお いて 2500 turn のとき 336 mT、5000 turn のとき 649 mT となった。超伝導コ イルを用いる MRI では、1.5 T~3 T の一様な静磁界が用いられている。こ のことから、MPI と MRI の一体化の際に、MPI 用超伝導コイルを追 加することなく、MRI 用超伝導コイルの一部を用いることで MPI に 必要な傾斜磁界を発生できることが分かる。



Fig.1 Schematic of gradient coil



Fig.2 Magnetic flux density along the center axis of the coil (a) gradient magnetic field (b) uniform magnetic field

パルス励磁による磁性ナノ粒子のイメージング手法

田中靖也¹, 平野陽豊¹, 二川雅登¹, 竹村泰司², 大多哲史¹ (¹静岡大学, ²横浜国立大学)

Imaging technique of magnetic nanoparticles using pulse magnetic field S. Tanaka¹, H. Hirano¹, M. Futagawa¹, Y. Takemura², S. Ota¹

(¹Shizuoka University, ²Yokohama National University)

はじめに

がん等の疾病に対する早期診断技術として、磁性ナノ粒子と磁場を用いた画像診断技術が期待されている。 この技術は、コイル内部に交流磁場を印加することで得られる特有の磁化信号を検出する。また、磁性ナノ 粒子は高速で応答するパルス磁場を印可することで、磁気緩和の実測に成功している¹⁾。本研究では、パルス 励磁による新たなイメージング手法について、粒子サンプルを小型コイル外部に配置し、コイルを掃引する ことで空間分布を計測することで評価した。

<u>実験法・結果</u>

本研究では、Fe₃O₄ナノ粒子 (M-300, シグマハイケミカル社)をサンプルとして計測を行った。立ち上が りの応答が高速のパルス励磁を実現する面積 25 mm²の正方形型の励磁コイルを作成し、立ち上がり時間 100 ns、サンプルへの磁場強度 2.25 mT のパルス励磁を実現した。励磁コイル内部に幅 1 mm の円型検出コイル を 1.6 mm 間隔で 2 つ配置し、励磁・検出コイルを含む磁気検出プローブを構成した。このとき、検出コイル を励磁コイルに対して直交させることで、励磁コイルによって生成された磁束が検出コイルを鎖交しないた め、検出コイルではサンプルから得られる磁化成分のみを検出する²⁾。コイルを掃引する距離は、2 つのサン プルの中心を 0 mm 位置として-7 mm から 7 mm まで掃引し、0.5 mm 間隔で計測した (Fig. 1)。

Fig. 2 にコイルを x 軸方向に掃引させたときの粒子信号強度を示した。2 つのサンプルは-4 mm ~ -1 mm 地 点と 1 mm ~ 3 mm 地点に配置されている。各サンプルの位置にて粒子信号強度の増加を確認するとともに、 各サンプルの中心位置に粒子信号強度のピークが確認された。また、2 つのサンプルの粒子信号強度のピー クの差はサンプルに含まれる粒子質量(3.3g 及び 1.5g)に比例することを確認し、粒子信号強度から検出対 象の位置と量を推測できることを確認した。講演では、検出プローブとサンプル配置に依存した信号強度に ついて詳細に述べる。

<u>謝辞</u>

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

<u>参考文献</u>

- 1) S. Ota, and Y. Takemura, J. Phys. Chem. C, 123, 28859-28866 (2019).
- 2) T. Sasayama, T. Yoshida, and K. Enpuku, J. Magn. Magn. Mater., 505, 166765 (2020).



Fig. 1 Position of an exciting coil, detection coil, and magnetic nanoparticle sample.



Fig. 2 One-dimensional measurement of two particle samples.

磁気ナノ粒子トモグラフィへの種々の空間フィルタ適用結果の比較

岡村直樹、東野光宇太、笹山瑛由、吉田敬 (九州大学)

Comparison of the application results of various spatial filters in magnetic nanoparticle tomography Naoki Okamura, Kohta Higashino, Teruyoshi Sasayama, Takashi Yoshida (Kyushu University)

目的

近年、磁気ナノ粒子を用いた癌などのイメージング手法が注目されており、我々も多数の検出コイルでイ メージングする磁気ナノ粒子トモグラフィを提案している。先行研究¹⁾では逆問題解析において、計算時間 の短縮やアーチファクトの改善を目的として、磁気ナノ粒子トモグラフィに脳磁図などで用いられる空間フ ィルタ法の1つであるミニマムバリアンス空間フィルタ(MV-SF)を適用した。本稿では、それ以外のよく 知られた空間フィルタを適用し、得られた結果について比較を行った。

方法

実験装置を図1に示す。励起コイルに交流電流を流して磁気ナノ粒子を磁化し、磁気ナノ粒子から得られ る第3高調波の磁場信号を16個の検出コイルを用いて取得した。磁気ナノ粒子サンプルは、Resovist(富士 フィルム RIファーマ)を使用し、150 µl あたりの鉄含有量が500 µg と400 µg になるように glycerol で固相 化したものを用いた。深さ30 mm の位置にサンプル1つを配置した時と2つ配置した時の磁場計測を行い、 空間フィルタ(MV-SF の他、eLORETA²)を適用しサンプルの位置を推定した。

結果

逆問題解析結果の一例を図2に示す。図2(a)は濃度が500 μgFeのサンプルを1つ配置した場合、図2(b)は 濃度が500 μgFeと400 μgFeの2つのサンプルを配置した場合のMV-SFとeLORETAを適用した場合の結果 である。図2(a)からMV-SFは eLORETAよりもスパースな解を検出できていることが分かる。図2(b)からMV-SFでは信号が消失しているのに対し eLORETAでは2つのサンプルを検出できていることが分かる。今後、 サンプルの位置や濃度を変化させた場合などの他の条件について、比較検討をする予定である。



謝辞:本研究は JSPS 科研費(JP21H01342)の助成を受けたものである。

参考文献

- 1) N. Okamura, T. Sasayama, and T. Yoshida, IEEE Trans. Magn., in press. DOI: 10.1109/TMAG.2021.3078748
- 2) R. D. Pascual-Marqui, Mathmatical Phys., ArXiv: 0710.3341 (2007).

脳内磁気粒子イメージングのための酸化鉄ナノ粒子の表面設計

清野智史¹,池畠博人¹,田邉瑞姫¹,梅田知宙²,富山貴美²,田中晶子³,坂根稔康³, 山内一輝⁴,野村航大⁴,殿岡俊⁴,井澤彰宏⁵,藤枝俊¹,中川貴¹ (¹大阪大学,²大阪市立大学,³神戸薬科大学,⁴三菱電機(㈱,⁵日本メジフィジックス(㈱) Surface design of iron-oxide nanoparticles for intracerebral magnetic particle imaging S.Seino¹, H. Ikehata¹, M. Tanabe¹, T. Umeda², T. Tomiyama², A. Tanaka³, T. Sakane³ K. Yamauchi⁴, K. Nomura⁴, S. Tonooka⁴, A. Izawa⁵, S. Fujieda¹, T. Nakagawa¹ (¹Osaka University, ²Osaka City University, ³Kobe Pharmaceutical University, ⁴Mitsubishi Electric Corp., ⁵Nihon Medi-Physics Corp.)

1. 研究背景

様々な疾病領域を画像化する技術として、磁気粒子イメージング(Magnetic Particle Imaging: MPI)の医療診 断分野への応用が期待されている。本研究では、対象をアルツハイマー病の早期診断と設定し、脳内の Amyloid β(以下、Aβ)へと輸送・集積可能なトレーサーの実現を目指し、コアとなる磁性酸化鉄ナノ粒子の表面修 飾法について検討を行った。構築した表面修飾プロトコルと、得られた粒子の特性について報告する。

2. 実験

フェルカルボトランに永久磁石による磁気分離操作を行い、得られた磁気画分を、酸化鉄ナノ粒子として使用した。放射線を利用した手法により、酸化鉄ナノ粒子表面に金ナノ粒子を担持させ、表面修飾の足場として利用した^[1]。金担持酸化鉄ナノ粒子の分散液に、末端に-SH 基が修飾された PEG (PEG-SH, NH₂-PEG-SH)の水溶液を混合し、金への-SH 基の特異吸着を利用して粒子の PEG 化を行った^[2]。標的認識性能を付与するため、PEG 末端の-NH₂基を介して、プローブ分子の固定化を行った。得られた粒子の評価は、TEM、ICP、DLS、VSM 測定により実施した。

3. 結果と考察

粒子の TEM 像の例を図 1 に示す。酸化鉄ナノ粒子と金ナノ粒子が 複合体を形成している様子が観察された。DLS 径は約 100 nm であ り、良好な水分散性を示した。表面修飾の前後で、磁場磁化曲線 を比較した結果を図 2 に示す。磁気的挙動が変化していないこと から、金担持・PEG 修飾・プローブ固定化といった表面修飾工程 が、酸化鉄ナノ粒子の磁気特性に影響を及ぼさないことが分かる。 プローブ分子が固定化された粒子の標的認識性能を、Ex-vivo 試験 で評価した。Aβが蓄積した細胞が含まれる脳細胞切片上に合成 した粒子分散液を滴下したところ、粒子が標的部位に選択的に 集積することが分かった。またモデルマウスを使用した In-vivo 試験において、経鼻投与された粒子がマウスの脳内に移行し、脳 内の Aβへの選択性を発揮することが示された。これらの結果か ら、本研究で提案した表面修飾プロトコルにより、脳内標的部位 に集積可能な磁性ナノ粒子が得られることが分かった。 本研究は、AMED の課題番号 JP 20hm0102073 の支援を受けた。

参考文献 [1] S. Seino et. al., Journal of Nanoparticle Research, 10, 1071–1076 (2008), [2] S. Seino et. al., Journal of Nanoparticle Research, 15, 1305 (2013).



図1 合成した粒子の TEM 像



高感度磁気粒子イメージングのための磁気粒子の磁気特性の評価

野村航大¹,山内一輝¹,鷲野将臣¹,松田哲也¹,岡田泰行¹, 進泰彰¹,清野智史²,中川貴²,紀和利彦³,殿岡俊¹ (1三菱電機株式会社,2大阪大学,3岡山大学)

Evaluation of magnetic particle magnetization characteristics for high sensitivity Magnetic Particle Imaging

K. Nomura¹, K. Yamauchi¹, M. Washino¹, T. Matsuda¹, Y. Okada¹,

Y. Susumu¹, S. Seino², T. Nakagawa², T. Kiwa³, S. Tonooka¹

(¹Mitsubishi Electric Corp., ²Osaka University, ³Okayama University)

1. 研究背景

酸化鉄を主成分とする磁性ナノ粒子(MNP)からの高周波磁場応答を検出し、高感度にイメージングする 磁気粒子イメージング (Magnetic Particle Imaging: MPI) は新しい医療画像診断技術として注目されている^[1]。 MPI は MNP 粒子量と信号強度に線形の関係があり定量測定に利点がある一方、磁気特性や溶媒環境によっ ても MPI 信号強度が変動する。本研究では、市販の MNP である Resovist®と原液 Ferucarbotran を磁気分 離により磁場応答性の高い粒子を抽出した Ferucarbotran_Mag (FcM)^[2]を MPI 装置にて評価した結果を 報告する。

2. 実験

FcM と Resovist®の磁化曲線は VSM を用いて測定し、MPI 信号は製作した小型 MPI 装置を用いて測定した。サンプルは 鉄濃度が 2.8mg/mL となるよう純水で希釈した。磁場振幅 21mT、周波数 500 Hz の交流磁場を印可、受信コイルで検出 した信号をロックインアンプにより同期検波することで高調 波成分の信号強度と位相を評価した。画像再構成を行うため サンプルは3次元スキャンにより、MPI信号を取得した。

3. 結果と考察

FcM と Resovist®の磁化曲線を Fig. 1 に示す。磁気分離によ り飽和磁化および磁化率が大きくなっており、磁場への応答 性が高い粒子を抽出できていることを示している。

MPI 装置での測定結果を Fig. 2 に示す。FcM の MPI 信号強 度はResovist®と比較し2.1倍に向上しているが、励磁場 強度 21mT での FcM の磁化は Resovist®の約 1.8 倍であっ た。これは MPI 信号が MNP の非線形応答を用いることに起 因する。また、MNP の高調波の応答特性は溶媒の粘性など MNP が置かれる外部環境に依存する。従って、生体内で病 変に結合した磁気粒子の MPI 信号は、溶媒状態で計測する MPI 信号とは異なる可能性がある。発表では、実際の生体 環境下で重要になる粘性による高調波信号の変化および 画像再構成結果に及ぼす影響を詳細に議論する。

本研究は、AMED の課題番号 JP 20hm0102073 の支援を受 けた。





参考文献 [1] T.Knopp et al. Phys. Med.Biol. 62 R124, [2] 吉田 敬:まぐね Magnetics Jpn. Vol.13, No.4,2018

磁気双極子相互作用を考慮した磁性ナノ粒子の磁化特性に関する基礎研究

池田一貴、笹山瑛由、吉田敬 (九州大学)

Basic study of the effect of magnetic dipole interaction on magnetization properties of magnetic nanoparticles

Kazuki Ikeda, Teruyoshi Sasayama, Takashi Yoshida (Kyushu University)

<u>はじめに</u>

近年、磁性ナノ粒子を用いた磁気粒子イメージングや磁気的免疫検査な どの医療応用が注目されている。磁性ナノ粒子はターゲットに対し、複数 個結合する場合が想定される。本研究では、1つのターゲットに結合して いる2つの磁性ナノ粒子を想定し、磁気双極子相互作用を考慮した磁性ナ ノ粒子の交流励磁化特性について数値計算を行ったので以下に報告する。

解析方法

Fig.1 のように 2 つの磁性ナノ粒子がターゲットに結合している場合を考える。交流励起磁界 $H_{ex} = \mu_0 H_{ac} \sin \omega t \delta z$ 軸方向とし、2 つの磁性ナノ粒子の位置関係 $\theta \delta 0 g$ (外部磁界に対して平行)、45 度、90 度(外部磁界に対して垂直)の3 パターンに設定した。磁化容易軸の方向はランダムとし、Fig.2 のように $\theta_1, \theta_2 \delta \varphi_1, \varphi_2 \delta \delta \delta$ れ独立に設定した。磁気双極子相互作用を考慮した場合、有効磁界 \vec{H}_{eff} は次の式で表すことができる。

$$\vec{H}_{eff} = \vec{H}_{ex} + \frac{2K}{M_s} (\vec{u} \cdot \vec{n}) \vec{n} + \sum_j \frac{1}{4\pi r_j^3} \left(\frac{3\vec{m}_j \cdot \vec{r}_j}{r_j^2} \vec{r}_j - \vec{m}_j \right) + \vec{H}_{th}$$
(1)

ここで、第一項は励起磁界、第二項は異方性磁界、第三項は双極子相互作 用磁界、第四項は熱雑音磁界であり、 \vec{u} は磁化の向きを、 \vec{n} は磁化容易軸の 向きを表している。本研究では、 \vec{n} は固定されているとし、ネール緩和のみ を考慮した。各パラメータは $\mu_0 H_{ac}$ = 20 mT, $f = \omega/2\pi = 100$ kHz, r = 40 nm, d_c = 20 nm, $M_s = 400$ kA/m, K = 10 kJ/m³ とした。ここで, M_s , K はそれぞれ飽和 磁化、磁気異方性定数を表す。LLG 方程式により(θ_1 , θ_2 , φ_1 , φ_2)に対する磁 化を計算し、それらから3 パターンに対する平均磁化を求めた。

解析結果

磁性ナノ粒子の位置関係θ(= 0,45,90 deg)に対する *M*-*H*曲線を Fig.3 に示す。なお、黒線は、2 つの磁性ナノ粒子が十分に遠い場合 を表す。θに対する 3 つの *M*-*H*曲線は、磁気双極子相互作用の影響 を無視できる場合に比べて最大磁化は小さくなった。これは、2 つ の磁性ナノ粒子がランダムな方向を向いている場合、平均すると磁 気双極子相互作用により有効磁界が小さくなったためだと考えられ る。一方、ヒステリシスの面積は小さくなっているため、ターゲッ トに対して2 つの磁性ナノ粒子が結合している場合、交流励起磁界 に対する磁化の応答性が向上していると考えられる。次に、θを大 きくするとヒステリシスの面積はわずかに小さくなっている。詳細 な結果については、当日発表予定である。



Fig.1 Magnetic Nanoparticles (MNPs) and target



Fig.2 Axis of easy magnetization and polar coordinate system



高調波スペクトルを用いた磁性ナノ粒子の固相・液相状態の識別

五藤仁哉、山村柊哉、圓福敬二、吉田敬 (九州大学)

Discrimination of solid and liquid phase states of magnetic nanoparticles using harmonic spectra. Jinya Goto, Shuya Yamamura, Keiji Enpuku, Takashi Yoshida (Kyushu University)

<u>はじめに</u>

近年、磁気応用による医療診断技術が注目されており、その中の一つに磁性ナノ粒子からの高調波磁化信 号を検出し対象の位置を特定する、磁気粒子イメージング(MPI)がある。本研究では、MPI での使用が検討さ れている磁性ナノ粒子 Synomag を使用して液相と固相の混合した試料を複数作製し、第三,五高調波の実部 の信号を用いて両者の割合を推定することを目指した。

高調波磁化信号と液相・固相状態識別の原理

液相試料(Free 粒子)と固相試料(Bound 粒子)では磁気緩和に違いが生じるため、交流励起磁界を印加した際の高調波磁化信号に差異が生じる。Free と Bound が共存した試料の第三、五高調波信号 M_{3R}, M_{5R} は以下のように与えられる。

$$M_{3,R} = n_F m'_{3,F} + n_B m'_{3,B}$$

$$M_{5,R} = n_F m'_{5,F} + n_B m'_{5,B}$$

ここで、 $m'_{i,F} \ge m'_{i,B}$ (*i*=3,5)は Free と Bound 粒子 1 個の信号であり、予め測定することができる。また、 未知数は Free と Bound 粒子の個数 $n_F \ge n_B$ である。従って、 $M_{3R} \ge M_{5R}$ の測定値をこの式に代入することで $n_F \ge n_B$ を求めることが出来る。本実験では $n_F \ge n_B$ の割合を変化させた試料を準備し、第三、第五高調波 の実部から $n_F \ge n_B$ の割合の推定を行った。

実験結果

液相・固相混合試料としては、Synomag(micromod, Germany)と呼ばれる磁性ナノ粒子を使用し、固相と液相の合計試料体積を 300µL、合計鉄量を 800µgFe 一定とした。固相の割合 x は x = 0 から 0.25 刻みで 1 まで変化させた。固相試料の作製にはエポキシ樹脂を、液相試料の作製には精製水を用いた。励起磁界は振幅 20 mT、周波数は 20 kHz とした。

Fig 1(a)に測定信号とxの関係を示す。図に示すようにxの増加とともに測定信号は減少する。この結果を用いて、Free と Bound 粒子の個数 n_F と n_B を推定した結果を Fig. 1(b)に示す。高調波磁化信号を利用することで、液相と固相の状態推定が行えていることが分かる。しかし、推定誤差が大きいため、改善が必要である。



Fig 1. (a) Relationship between x and harmonic signals. (b) Estimation of $n_{\rm F}$ and $n_{\rm B}$

液体腫瘍細胞検出のための磁気免疫検査法の開発

坪田美咲、山下慶、岸本航平、黒田滉人、王璡、堺健司、紀和利彦 (岡山大)

Development of magnetic immunoassay for detection of liquid tumor cells M. Tsubota, K. Yamashita, K. Kishimoto, H. Kuroda, J. Wang, K. Sakai, T. Kiwa (Okayama Univ.)

<u>はじめに</u>

免疫反応学を利用した臨床診断は患者の疾患を評価する上で重要な役割を果たしている。現在、新しい免 疫検査の手法として、磁気免疫検査法の研究が進められている。この手法は従来の免疫検査と比べ、前処理 が不要で液相のまま測定可能であることから検査時間の大幅な短縮が期待されている。本研究では腫瘍細胞 を高感度に検出するための磁気免疫検査法の開発を試みた。

測定方法

磁気免疫検査では、磁気ナノ粒子に抗体を付加した磁気 マーカーを用いる。抗原と磁気マーカーを結合させること で粒径が増加し、磁気モーメントの緩和時間が変化する。 この変化を磁気信号の変化として検出することで抗原・抗 体反応の有無を計測する。

本研究で使用した磁気免疫検査装置を Fig.1 に示す。印 加コイルにより 1kHz, 8mTppの交流磁場をサンプルに印加



し、サンプルから得られた2次的な磁場を印加コイル Fi と同軸に配置した1次微分コイルのピックアップコイ

ルで検出。HTS-SQUID へ伝達する。得られた磁気信号の3次高調波をロックイン検波することで印加磁場に 線形な水の反磁性成分を除去し、磁気マーカーから発生する磁場のみを検出することが可能である。本研究 では、磁気ナノ粒子としてストレプトアビジンでコーティングされた FG beads (多摩川精機)を用いた。この 磁気ナノ粒子に Anti-p53 抗体と結合させることで磁気マーカーを作成した。抗体の結合では混合物をローテ ーターで結合し、その後ネオジウム磁石で結合物を集める工程を繰り返し3回行った。

<u>測定結果</u>

本研究では、計測対象として乳がん細胞(MCF-7/TAMR-1, 1×10⁶ cell/vital, Sigma-Aldrich)を用いた。Anti-p53 抗体は、乳がん細胞に含まれる p53 タンパク質と特異的に結合する。以下の 3 つの試料を調整し、50 µL を取 り出して計測を行った。

(a) 磁気マーカーのみ

(b) MCF-7 + FG beads(抗体なし)

(c) MCF-7 + 磁気マーカー

(b)は MCF-7 が存在する状態で、MCF-7 と FG beads が未 結合であることを確認するために、Anti-p53 抗体が結合して いないものを用いた。

全サンプルをそれぞれ3回ずつ測定し、平均した信号強度 の結果をFig.2に示す。磁気マーカーのみの(a)とMCF-7と 結合している(c)とでは、(c)の方が6.49 μ V_{pp}ほど高くなった。 また、(a)と(c)の中間地点である(b)では信号強度が一度高く なることが分かった。これより、MCF-7と磁気マーカーが 結合しているときとそうでないときの信号強度の差を見出す ことができた。



Fig.2 Average signal intensity of sample(a) to (c).

01aA - 10

スイッチ磁界に対する磁性ナノ粒子の応答性を利用した多菌種検出

高橋隼之介*,小野寺英彦**,村山徹**,トンタットロイ*,沖田和彦**,桑波田晃弘*,薮上信*,**, 大坪和香子*,横田琴音*,**,古谷真衣子*,金高弘恭*,三浦由則***,高橋英樹*** (*東北大学,**東北学院大学,***ジーエヌエス有限会社)

Measurement of multiple bacteria species using magnetic nanoparticles by switching magnetic field S. Takahashi^{*}, H. Onodera^{**}, T. Murayama^{**}, L. Tonthat^{*}, K. Okita^{**}, A. Kuwahata^{*}, S. Yabukami^{*,**},

W. Ohtsubo^{*}, K. Yokota^{*,**}, M. Furuya^{*}, H. Kanetaka^{*}, Y. Miura^{***}, H. Takahashi^{***}

(*Tohoku University, **Tohoku Gakuin University, ***JNS Co., Ltd.)

<u>1 はじめに</u>

口腔の細菌叢は歯周病,う蝕,肺炎と相関性があり¹⁾,これまでに高齢者施設等での臨床現場即時検 査(Point Of Care Testing: POCT)向けの細菌検出シ ステムを開発した²⁾.今回 POCT で求められる簡便 かつ高速な細菌検出器というニーズに対応するため に6チャンネル同時測定可能な本装置を開発した. 2計測原理・方法

本装置では、磁性ナノ粒子と細菌を抗原抗体反応 により結合させた試料への印加磁界を交互に反転さ せる事で, 試料の磁化反転の変化から細菌量を検出 した. 試料を永久磁石により試料容器の底に集め, 次に励磁コイル上で凝集させ、励磁コイルと磁界セ ンサ上を回転移動させた.1回転毎に励磁コイル上 で試料を停止させ磁界を印加し、2回転を1組とし 印加磁束密度を段階的に増加させた.磁界の印加時 間は 30 秒程度で磁束密度は最大 100 mT 程度とし, 1回転毎に反転させた. Fig.1 は本システムの主要構 成の写真である.本システムは6組の試料容器,回 転機構,永久磁石(NdFeB 磁石,5 mm×4 mm×3 mm) と,磁性ナノ粒子からの漏れ磁界を検出するセンサ (ジーエヌエス製 MI センサ) 1 つから構成され,同 時に 6 チャンネルでの測定が可能である. 試料は Protein A でコーティングされた磁性ナノ粒子

(Nanomag-D, 平均粒径 0.5 µm) と 1 次抗体 (ウサ ギ抗血清 Anti-B. longum) を結合させた後, ビフィズ ス菌 (B.longum) 10⁶ CFU/ml と抗原抗体反応をさせ た.また, コントロールとしてビフィズス菌なし (0 CFU/ml) の試料を用意した.

<u>3 計測結果</u>

Fig.2は1チャンネル構成の実験装置を用いた測 定後の試料の顕微鏡写真及び磁化反転の経過を表し た評価値をスイッチ磁界(反転させた印加磁界)の 磁束密度に対して表したものである.測定後の試料 の凝集はビフィズス菌が0CFU/mlの場合より,10⁶ CFU/mlの場合の方が大きかった.これは磁性ナノ粒 子とビフィズス菌が結合し,更に共に凝集している 為であると考えられる.また Fig. 2 のグラフより, スイッチ磁界が大きくなるにつれて評価値が減少す る様子が分かり,ビフィズス菌 0 CFU/ml よりも 10⁶ CFU/ml の試料の評価値の減少が早いことから,ビフ ィズス菌が検出できた.この違いは凝集の様子が異 なる事で,より強く凝集したビフィズス菌が 0 CFU/ml の試料ではブラウン緩和が起こりにくく,磁 化反転し難くなった為だと考えられる.

<u>謝辞</u> 本研究の一部は JST COI TOHOKU プロジェ クトの研究成果である.本研究の一部は JST ASTEP の成果である.

参考文献

1) M. Lu, S. Xuan, Z. Wang, *Food Science and Human Wellness*, 8 (1), 8–15 (2019).

2) S. Takahashi *et al.*, Technical Meeting on Mag. IEE Japan, MAG-19-233 (2019).





抗体を直接吸着させた磁性ナノ粒子の抗原抗体反応の評価

 米山 毅,村山 徹*,トンタット ロイ,桑波田 晃弘,薮上 信, 佐藤 佑哉**,寺村 裕治***,大坪 和香子,小川 智之
 (東北大学,*東北学院大学,**東京大学,***産業技術総合研究所)

Evaluation of antigen-antibody reaction of magnetic nanoparticles with directly adsorbed antibodies

Tsuyoshi Yoneyama, Toru Murayama^{*}, Loi Tonthat, Akihiro Kuwahata, Shin Yabukami

Yuya Sato**, Yuji Teramura***, Wakako Ohtsubo, Tomoyuki Ogawa,

(Tohoku Univ., *Tohoku Gakuin Univ., **The University of Tokyo,

****National Institute of Advanced Industrial Science and Technology)

1.はじめに

磁性ナノ粒子⁽¹⁾ (Magnetic nanoparticles, 以下 MNP と略する)を用いた低コスト微生物検知システムを 実現するために,タンパク質で被覆されていない MNP 表面に直接抗体を吸着させ抗原と反応させる ことを目指し, MNP 表面にビフィズス菌抗体を直接 吸着させ抗原抗体反応が起こることを評価した.

<u>2. 実験方法</u>

MNPは、界面活性剤にオレイルアミンを用い熱分 解法で合成したマグネタイト(Fe₃O₄)ナノ粒子(平 均粒径 4 nm)である.抗体は、ビフィズス菌抗体

(Anti-B. longum)を含むウサギ抗血清(抗体濃度 90 mg/mL) である. PBS を用いて, MNP の濃度条件を 1,0.5,0.1 mg/mL,抗体の濃度条件を 10,1,0.1 mg/mL として合計 9 サンプルを作製した. 抗体と MNP を 結合させるために、ロータリーシェーカーを用いて 30 分間反応させた. MNP を遠心分離(3000 rpm, 5 min)し、磁気スタンド上で上清を除去、PBS で洗浄 した. MNP に吸着した抗体量を定量するために Micro BCA 法を用いた. 96 穴マイクロプレートにサ ンプルおよび BCA 試薬 (Dual-Range BCA Protein Assay Kit, VISUAL PROTEIN) を入れて反応させ、マ イクロプレートリーダー (MULTISKAN FC, Thermo Scientific) で吸光度(波長 560 nm)を測定し抗体量 を算出した.抗原抗体反応が起こることを確認する ために,抗体が吸着した各サンプル100 μL と, ビフ ィズス菌 (B. longum, 10⁶ CFU/mL) 100 µL を混合し ロータリーシェーカーを用いて 30 分間反応させた. 磁気スタンドで MNP を集めて上清を除去し, PBS で 洗浄した. サンプルに DAPI 溶液を 50 µL 混合し, ビフィズス菌の DNA を染色し, 倒立顕微鏡 (CKX53, OLYMPUS) で観察した.

<u>3. 結果</u>

コントロール (MNP のみ) との吸光度の差分から, 各サンプルの抗体吸着量を MNP 1 mg あたりに規格 化した結果を Fig. 1 に示す.全てのサンプルにおい て,15 μg/mg の抗体が MNP に結合していることを 確認した.1サンプル (0.1/10) を除いて,抗体の吸 着量は MNP の濃度に大きく依存しないと考えられ る.Fig.2 は,ビフィズス菌染色後の抗体-MNP を倒 立顕微鏡で撮影した画像である.96 穴マイクロプレ



Fig. 1. Antibody adsorption amount for each sample.



Fig. 2. Inverted microscope image (x400) of antibodymagnetic nanoparticles after staining *B. longum*.

ートに各サンプルを 200 μL ずつ入れ, 紫外線を照射 し観察した. ビフィズス菌の DNA と結合した DAPI の蛍光発色が見られ, ビフィズス菌が抗体-MNP と 結合していることが確認できた.

<u>4. まとめ</u>

MNP の表面にビフィズス菌抗体を直接吸着させ, 抗原が結合していることを観測した. 今後,抗体-MNP と抗原の結合量を定量するため,その測定方法 を検討中である.

<u>謝辞</u>

本研究は JST COI, JST ASTEP, 科研費基盤 C (21K04090) の研究成果である.

参考文献

(1) Y. Teramura, Y. Arima, H. Iwata, *Analytical Biochemistry* 357 (2006) 208-215.

History and progress of biomagnetic measurement

Yoshinori Uchikawa

Division of Electronic Engineering, School of Science and Engineering, Tokyo Denki University, Saitama 350-0394, Japan

This review paper focuses on history and progress of biomagnetic measurement including SQUID system. There are two ways of generating magnetic field from human body. One is generated by ionic current with action potential in electrical excitation of neuron and cardiac cell etc., knowing as magnetoencephalography (MEG) and magnetocardiography (MCG). Other is generated by small magnets which is magnetized magnetic particles inhaling and accumulating in the lungs, knowing magnetopneumography (MPG).

Magnitudes of MEG and MCG are extremely so weak and ranges of a few femto-tesla $(10^{-15}T)$ to pico-tesla $(10^{-12}T)$ that are measured with SQUID magnetometer. MPG is in micro-tesla $(10^{-6}T)$ and is measured by fluxgate magnetometer and/or SQUID magnetometer.

The first measurement of MCG was carried out by M.Baule and R.McFee in 1963¹⁾ with induction coils wound two million turns. The first measurement of biomagnetic field with a SQUID magnetometer which is point-contact type was carried out by D. Cohen in 1970²⁾. He became the first user of SQUID magnetometer in study of biomagnetic field from human body. It was the start of modern biomagnetic study not only development of SQUID devices but also signal processing technology at aiming for clinical use and brain study seeing the present. This presentation, based on above historical measurement, will be composed as followings;

Firstly, an introduction of milestones of the beginnings of biomagnetic study, Secondly, progress of SQUID magnetometer and signal processing for source estimation, Thirdly, prospective of biomagnetic measurement including application for human adaptive mechatronics (HAM).

References

- 1) G.M.Baule, R. McFee, Am. Heart J., 55, (1963) 95
- 2) D.Cohen, et al., Appl. Phys. Letters, 16, (1970) 278

Magnetocardiography predictors of premature ventricular contractions

origin in LVOT vs. RVOT

Wenxu Sun¹, Morio Iwai², Koichiro Kobayashi² ¹Department of Engineering, Kinki University, Hirosima 739-2116, Japan ¹Faculty of Science and Engineering, Iwate University, Iwate 020-8551, Japan

It is important to estimate premature ventricular contractions (PVC) origin in left or right outflow ventricular tract (LVOT or RVOT) in prior of catheter ablation. This study developed a Magnetocardiography (MCG) based method for discriminating LVOT from RVOT origin. MCG current arrow maps (CAMs) during QRS complex in 48 patients who were successfully ablated in RVOT (n = 30) or LVOT (n = 18) were analyzed. We focused on the PVC excitation propagation procedure captured by a 64-channel MCG system during QRS complex and found that rotation angle and displacement of maximum current arrow between two time-instants should be an effective way to discriminate LVOT from RVOT.

This study comprised 48 patients (14 men and 33 women; mean age 48 ± 18 years) who were successfully ablated for PVC origin in outflow tracts between April 2012 and October 2018. All patients had a normal ECG during sinus rhythm and no structural diseases found by physical examinations. We used a 64-channel MCG system (MC-6400, Hitachi High-Technologies Ltd., Tokyo, Japan) with highly sensitive superconducting quantum interference device (SQUID) sensors arranged in an 8×8 matrix with 2.5 cm pitch and 17.5×17.5 cm measurement area. MCG examination was carried in the resting supine position from the frontal planes in a magnetically shielded room. The MCG signals were acquired at a sampling frequency of 1 kHz and passed through band-pass $(0.1 \sim 100 \text{ Hz})$ and power-line noise filters. To detect the PVC waveforms, we simultaneously measured the Lead II ECG signals.

To visualize the direction of excitation propagation during QRS complex, QRS duration was divided equally into 10 segments. Fig.1 shows the mean orientations of maximum current arrow of LVOT and RVOT origin estimated by averaging the selected time instants ($0.1 \sim 0.9$ *QRS) from 48 patients. It can be found that LVOT and RVOT origin show clockwise and counterclockwise during QRS complex, respectively. Fig.2 shows the mean positions of maximum current arrow during QRS complex. The rotation angle and displacement are defineded as the orientation variation and position variation of maximum current arrow from a time instant to another, respectively. In this study, it is found that rotation angle from 0.1*QRS to 0.7*QRS has the best performance analyzed by area under the curve (AUC). Additionally, it is also found that the displacement of maximum current arrow from 0.1*QRS to 0.9*QRS is an effective way to discriminate LVOT from RVOT.

References

- Yoko Ito et al., Heart Rhythm 2014; 11(9), 1605–1612. 1)
- 2) Yoshida N et al., Heart Rhythm. 2011; 8(3): 349-56.







Fig.1 Mean orientations of maximum current arrows during QRS complex.

Fig.2 Mean positions of maximum current arrows during QRS complex. and TZ score of ECG.

Fig.3 ROC curve of MCG parameters

Novel functional imaging methods by Magnetospinography and Magnetoneurography

Taishi Watanabe¹, Shigenori Kawabata^{2, 3}, Yoshiaki Adachi⁴, Jun Hashimoto³, Kensuke Sekihara², Miho Akaza⁵, Yuki Miyano¹, Yoshinori Okada¹, Atsushi Okawa³

1. RICOH Futures BU, RICOH Company, Ltd.

2. Department of Advanced Technology in medicine, Graduate School of Tokyo Medical and Dental University

Department of Orthopedic Surgery, Graduate School of Tokyo Medical and Dental University
 Applied Electronics Laboratory, Kanazawa Institute of Technology

5. Respiratory and Nervous System Science, Biomedical Laboratory Science, Graduate School of Medical and Dental Sciences, Tokyo Medical and Dental University

For the diagnosis of local conduction disturbances in nerves, it is useful to measure stimulation-induced nerve action potentials with electrodes attached to the body surface along with the nerve's travel. However, because the electric potential measurement method is strongly affected by the electrical resistance of the tissues surrounding the nerve, it could be effective only in the area where the nerve is close to the body surface. When we measure the action potential of the nerve located deep below the body surface, it is required to place electrodes adjacent to the nerve during surgery.

On the other hand, since the magnetic field generated by the electrical activity of nerves is not affected by biological tissues, the magnetoneurography (MNG) / magnetospinography (MSG) methods are considered to be innovative examination methods that enables the functional evaluation of nerves at depth, which has been difficult to evaluate noninvasively with conventional methods.

We are collaborating with Kanazawa Institute of Technology, Tokyo Medical and Dental University, and Kansai Medical University on the development and clinical research of MNG / MSG system¹⁾ (Fig. 1). Recent system development and clinical research have made it possible to visualize and evaluate the activity of the entire human spinal cord from the cervical to the lumbar spine (Fig. 2), as well as peripheral nerves.

In this lecture, we will introduce some of the technologies used in the system, as well as basic knowledge of methods for evaluating neural functions and the latest clinical research results with examples of clinical applications of the MSG / MSG system.

Reference

1) Adachi Y, et al. Recent advancements in the SQUID magnetospinogram system. Supercond Sci Technology. 2017;30(6):063001.



Fig. 1 Appearance of MNG system.



Fig. 2 Visualized nerve action current of entire spinal cord.

Usefulness and prospects of magnetic materials and magnetic probes in surgery of breast cancer.

K. Taruno¹, M. Sekino², A. Kuwahata^{2.3}, S. Nakamura¹, K. Enokido¹, T. Kurita⁴, H. Takei⁴,

M. Kusakabe^{5.6}

 Depertment of Breast Surgical Oncology, Showa University School of Medicine, Tokyo 142-8555, Japan
 Department of Electrical Engineering and Information Systems, Graduate School of Engineering, The University of Tokyo, Tokyo 113-8654, Japan

Department of Electrical Engineering, Graduate School of Engineering, Tohoku University, Miyagi, 980-8579, Japan
 Department of Breast Surgery, Nippon, Medical School Hospital, Tokyo, Japan

5. Research Center for Food Safety, Graduate School of Agricultural and Life Sciences, The University of Tokyo, Tokyo, Japan

6. Department of Medical Device, Matrix Cell Research Institute Inc, Ushiku, Ibaraki, Japan

Sentinel lymph node biopsy (SLNB) is a standard surgical formula for breast cancer surgery. SLNB is important for determining treatment policies and position that greatly affects the patient's QOL. As a method, methods using radioactive isotopes are mainstream in Japan. SLNB using magnetic nanoparticles/magnetic probes without radioactive isotopes has been reported overseas using Sienna+® as magnetic nanoparticles and Sentimag® as magnetic probes, indicating its non-inferiority to RI method. As part of the Japan Agency for Medical Research and Development (AMED), the Medical Device and System R&D Project for Future Medicine, and the Minimally Invasive Cancer Treatment Equipment Research and Development Project (2015-2019), we conducted using a magnetic probe [1] and a SLNB using felcarbotran (risobist[®]), which is a magnetic particle that can be used in Japan, and compared with the conventional method (RI method). 210 cases were registered, and the identification rate of SLNB was 94.8% in the magnetic method (199/210 cases, 95% CI 91.6-98.0), and 98.1% in the RI method, and the identification rate of the magnetic method exceeded 90%, indicating non-inferiority compared to the conventional method. [2] By establishing these methods, it is expected that SLNB can be performed more reliably even in facilities without radioactive control areas, and that simple and safe SLNB can be performed without using radioactive isotopes. In addition, as a development of the use of magnetic probes for SLNB, we developed the Wire guided localization method (WGL method), which is a method for resection of non-palpable lesions in the mammary gland. As a marker, the guiding marker system [®] is used to search for them with a magnetic probe and perform non-palpable lesion resection. By these, it is considered that the approach of the non-palpable lesion can be made more reliably and safely compared with the usual WGL method. With the progress of breast cancer screening and preoperational chemotherapy, non-palpable-detecting lesions of breast cancer are increasing, and this method is a very high-need method for breast surgeons, and it is expected to spread rapidly in the future.

It is expected that safe and effective technologies will be widely used in both these patients and those who use magnetic force, and that the usability will be improved, and the spread will spread further. In addition, we hope that we will continue to develop new medical devices using magnetism in cooperation with developers and surgeons to realize better medical care.

Reference

1.Sekino, M., et al., Handheld magnetic probe with permanent magnet and Hall sensor for identifying sentinel lymph nodes in breast cancer patients. Sci Rep, 2018. 8(1): p. 1195.

2. Taruno, K., et al., Multicenter clinical trial on sentinel lymph node biopsy using superparamagnetic iron oxide nanoparticles and a novel handheld magnetic probe. J Surg Oncol, 2019. 120(8): p. 1391-1396.

Hyperthermia using functional magnetic nanoparticles

Akira Ito

(Department of Chemical Systems Engineering, School of Engineering, Nagoya University, Nagoya 464-8603, Japan)

Magnetic nanoparticles including magnetite (Fe_3O_4) nanoparticles have unique features, and the development of a variety of medical applications has been possible.¹⁾ The most unique feature of magnetic nanoparticles is their reaction to a magnetic force, and magnetic labeling of target cells with magnetite nanoparticles enables the manipulation of cells and also the control of cell functions by applying an external magnetic field.²⁾ On the other hand, because magnetite nanoparticles generate heat under an alternating magnetic field, magnetite nanoparticles have been used for cancer thermotherapy (hyperthermia)^{3,4)}. We have developed a various type of functional magnetite nanoparticles, such as magnetite cationic liposomes and antibody-conjugated magnetoliposomes, by using techniques for drug delivery system (DDS). Magnetite nanoparticle-mediated hyperthermia has the potential to achieve tumor-targeted heating without serious side effects if magnetite nanoparticles can be accumulated only in the tumor tissue. The technique consists of targeting magnetite nanoparticles to the tumor tissue by DDS and then applying an external alternating magnetic field (AMF) to induce heat generation by the magnetite nanoparticles (Figure 1). The magnetite nanoparticle-mediated hyperthermia is also applicable to cancer diagnosis using magnetic resonance imaging (MRI), which enables theranostics for cancer patients. Recent years have seen the remarkable advances in magnetite nanoparticle-mediated hyperthermia; both functional magnetite nanoparticles and alternating magnetic field generators have been developed. Currently, some researchers are attempting to begin clinical trials, suggesting that time may have come for clinical applications.

References

- 1) A. Ito et al. J. Biosci. Bioeng., 100 (2005) 1.
- 2) A. Ito et al. J. Biosci. Bioeng., 128 (2019) 355.
- 3) A. Ito et al. Thermal. Med., 24 (2008) 113.
- 4) A. Ito et al. Nanomedicine (Lond), 8 (2013) 891.



Fig. 1 Hyperthermia using functional magnetite nanoparticles.

トポロジカル絶縁体/磁性絶縁体二層膜における磁気特性の電圧制御

千葉貴裕¹, Alejandro O. Leon², 小峰啓史³ (¹福島高専,²チリメトロポリタン工科大学,³茨城大学) Voltage-control of magnetic properties in topological-insulator/magnetic-insulator bilayers T. Chiba¹, A. O. Leon², and T. Komine³

(National Inst. of Tech., Fukushima Coll., Metropolitan Tech. Univ., Ibaraki Univ.)

はじめに

近年注目を集めるトポロジカル絶縁体(TI)は、物質内部は絶縁体であるが、その表面は低散逸で電気を 流すことができる特殊な伝導特性をもっている。さらに注目すべき特性として、スピン運動量ロッキングと 呼ばれる性質があり、表面に電流を流すことで高効率にスピンを生成できる。そのため、磁性体との界面で は、巨大なスピン軌道トルクの発生が期待されている¹⁾。一方でスピン運動量ロッキングの性質は磁気異方 性にも影響を及ぼすことが指摘されている。しかしながら、これまでの研究では、TI表面/界面における「ス ピン軌道トルク」、「磁気異方性」、さらに「磁化ダンピング」は独立に扱われていて、特にその同時電圧制御 に関する知見は得られていなかった。そこで本研究では、TI表面/界面に由来した上記3つの磁気特性に対す る電界効果を理論的に解明することを目指した。

モデル

電子の運動を記述する有効ハミルトニアンに基づき、まず TI/磁性絶縁体二層膜の表面/界面における「ス ピン軌道トルク」、「磁気異方性エネルギー」、「磁化ダンピング」をフェルミエネルギーの関数として定式化 した^{1),2)}。またゲート電圧を想定し、フェルミエネルギーを電圧の関数として求めることで、上記3つの磁気 特性に対する電界効果を理論的に扱った。さらに定式化に基づいて、電圧制御磁気異方性による磁化反転の シミュレーション、および電圧制御磁化ダンピングによるマグノン輸送のスイッチングを評価した。これら 2つの計算には、磁化の運動を記述するランダウ-リフシッツ-ギルバート(LLG)方程式を用いた。また具体 的な系として、磁化反転のシミュレーションには磁性不純物をドープした TI である Cr-dopoed BiSbTe、マグ ノン輸送のスイッチングには BiSbTeSe(TI)/Y₃Fe₅O₁₂を想定した。

計算結果

磁気特性の電圧制御: Cr-dopoed BiSbTe において、スピン軌道トルクに対する電界効果が比較的小さい一方で、磁気異方性エネルギーは数ボルトの電圧により 0~数 kJ/m³の範囲で変調できることがわかった¹⁾。ま

た Y₃Fe₅O₁₂の垂直磁化膜の場合には、数ボルトの電圧により磁化 ダンピングをオーダーで変調できることがわかった²⁾。磁化反転 <u>およびマグノン輸送</u>: Figure 1 のような Cr-dopoed BiSbTe 膜の磁化 反転をシミュレーションしたところ、20K において従来の強磁性 体よりも一桁小さい電力(~1 fJ/bit)で磁化反転できることがわかっ た¹⁾。また BiSbTeSe/Y₃Fe₅O₁₂におけるマグノン輸送の電界効果を 評価したところ、室温において On/Off 比 10²にてスイッチングで きることがわかった²⁾。これにより TI/磁性絶縁体二層膜という単 純な構造を基にした電圧制御磁気デバイスへの応用が期待される。

参考文献

- 1) M. Mogi et al., Nat. Commun. 12, 1404 (2021).
- 2) T. Chiba and T. Komine, Phys. Rev. Appl. 14, 034031 (2020).
- 3) T. Chiba, A. O. Leon, and T. Komine, Appl. Phys. Lett. **118**, 252402 (2021).



Fig.1 Schematic geometry (side view) of field-effect transistor (FET)-like device. **m** denotes the magnetization vector.

トポロジカル絶縁体 BiSb を接合した磁性細線における磁区の電流駆動

中谷 真規¹、髙橋 真央¹、小倉 渓¹、石井 紀彦¹、Pham Nam Hai^{2,3}、宮本 泰敬^{1,3} (¹NHK 放送技術研究所、²東京工業大学、³JST CREST)

Current-driven magnetic domain motion in magnetic nanowire with topological insulator BiSb Naoki Nakatani¹, Mao Takahashi¹, Kei Ogura¹, Norihiko Ishii¹, Pham Nam Hai^{2,3}, Yasuyoshi Miyamoto^{1,3}

(¹NHK Science & Technology Research Labs. ²Tokyo Institute of Technology, ³ JST CREST)

はじめに

将来の立体映像用ストレージの実現を目指して、大容量かつ超高速転送が可能な磁性細線メモリーの研究 を進めており、[Co/Tb]積層膜からなる磁性細線における電流磁壁駆動現象の検証を進めてきた¹⁾。一方、巨 大なスピンホール角 θ_{SH} を示すトポロジカル絶縁体 BiSb を磁性細線に接合することにより、磁区を 7×10⁵ A/cm²程度の低電流で駆動できる可能性がある²⁾。そこで、BiSb を接合した磁性細線メモリー素子を初めて 試作し、磁気光学顕微鏡により磁区の電流駆動を評価したので報告する。

実験方法と結果

Fig.1 に示す磁性細線メモリー素子を、イオンビームスパッタ、レーザー描画により表面熱酸化 Si ウェハ 上に試作した。磁性細線は表面より BiSb(10)/Pt(0.5)/[Co(0.3)/Tb(0.55)]₃ (単位 nm) の積層構造とし、4 μ m 幅、60 μ m 長に加工した。さらに絶縁層 SiO₂(20)/Si₃N₄(5)を介して、上部に磁区を記録するための金属線(記 録素子)を配置し、メモリー動作を検証した。BiSb を接合しない Pt/[Co/Tb]積層膜からなる磁性細線では、 磁区駆動に必要な電流密度は 2.5×10⁷ A/cm² であったが ³⁰、BiSb を接合することによって必要な電流密度は 約 1/5 となる 5.0×10⁶ A/cm² まで低減でき、BiSb によるスピントルクが一定の磁区駆動の低電流化に寄与し ている結果が得られた。ただし、想定ほど低電流化を実現できなかったため、その原因について検証を進め た。Fig.2 に BiSb の接合の有無に対する Pt/[Co/Tb]磁性細線の磁気光学カー特性の違いを示す。磁性細線自 体の保磁力は BiSb を接合することで若干低くなるものの、カー回転角は 0.24°から 0.007°まで減少し、磁 性細線の磁気特性が大幅に劣化していた。Fig.3 に BiSb の接合有無の磁性細線表面の原子間力顕微鏡像の違 いを示す。BiSb を接合しない場合、表面粗さ R_a は 0.63 nm であったが、BiSb の接合によって 3.27 nm ま で増大し、表面平坦性の劣化は BiSb の粒成長によることが判明した。これらの結果は、磁性細線の微細加 エプロセスにおけるレジストベイク時の加温(150℃)で BiSb の粒成長が促進されたほか、BiSb は飽和蒸気密 度が小さく Co/Tb 層への層間拡散が起きた可能性を示している。当日は、BiSb の製膜条件や磁性細線構造 を調整し、Pt/[Co/Tb]の磁気特性劣化を抑制した場合の磁区の電流駆動についても報告する予定である。



Fig.1 Fabricated magnetic nanowire memory element 参考文献

Fig.2 Magneto-optical properties of magnetic nanowires



Fig.3 Surface AFM images of nanowire (a) without & (b) with BiSb

- 1) Y. Hori et al., MMM, R1-02 (2020)
- 2) N.H.D. Khang et al., Sci Rep 10, 12185 (2020)
- 3) 堀ほか, 第43回日本磁気学会学術講演会, 26aPS-21(2019)

Co₂MnSi/Pt におけるレーザー励起磁化歳差ダイナミクスと

スピンミキシングコンダクタンス

佐々木悠太¹,高橋有紀子¹, 葛西伸哉^{1,2} (¹物材機構,²JST さきがけ)

Laser pulse induced spin precessional dynamics and spin mixing conductance in Co₂MnSi/Pt

Y. Sasaki¹, Y. K. Takahashi¹, and S. Kasai^{1,2}

(¹NIMS, ²JST-PRESTO)

はじめに

強磁性金属層(FM層)と非磁性重金属層(NHM層)を積層させたヘテロ構造は、スピン流を利用することで熱 電材料やテラヘルツ波エミッタなどへの応用が検討されている.[1] FM 層から NHM 層へのスピン流注入の効 率を調べる手法として spin-pumping 法がある. spin-pumping 法では、強磁性共鳴下における磁化歳差ダイナミ クスによってスピン流を NHM 層へと注入し、NHM 層における逆スピンホール効果によってスピン流を面内 方向の電流へと変換する. 注入されるスピン流の大きさは FM/NHM 界面のスピンミキシングコンダクタンス g_{eff} ¹¹に比例するため、大きな g_{eff} ¹¹を有する積層構造や強磁性材料を探索する必要がある. 一方で、最近 Co₂MnSi/Pt において spin-pumping 法によって大きな逆スピンホール電圧が観測された.[2] この大きな逆スピ ンホール電圧から、Fe, CoFe/Pt と比較して 3 倍大きな g_{eff} ¹¹が示唆されたが、 g_{eff} ¹¹の測定は未だ行われていない.

本発表では,異なるキャップ層を有する単結晶 Co₂MnSi/Pt, MgO における磁化歳差ダイナミクスを全光学 的手法によって調べ,その緩和過程からダンピング定数 α を求めた.得られた α から g_{eff}¹を見積もり,その規 則度依存性を調べた.

実験方法および実験結果

MgO(001)基板上に超高真空マグネトロンスパッタ法を用いて試料を作製した. 薄膜構成は基板側から, MgO(20)/Co₂MnSi (7)/Pt(2) (膜厚単位 nm)である. また,参照試料として Pt キャップ層を MgO(5)/Ta(2)に置換 した試料についても作製した. 試料の規則度を変化させるために熱処理温度を T_a=300~600°C と様々に変化さ せた. 磁化歳差ダイナミクスの測定には全光学的ポンプ・プローブ法による 時間分解分光法(TRMOKE)を用 いた. 光源には中心波長 1030 nm,繰り返し周波数 10 kHz,パルス幅 230 fs の Yb:KGW レーザーを用いた. ポ ンプ光を 365 Hz に変調し,ウォラストンプリズムを用いた差動方式でプローブ光のカー回転角 Δφκ を測定し た. 測定時には膜面垂直方向から 35°の角度で外部磁場 μ0H を印加した.

キャップ層の異なる $T_a=500^{\circ}$ C の Co₂MnSi 薄膜に対して様々な $\mu_0 H$ で測定した歳差シグナルをFig.1(a), (b)にそれぞれ示す. 歳差 周波数はキャップ層によらず同じであった. 一方で, 歳差シグ ナルの緩和時間は Co₂MnSi/MgO よりも Co₂MnSi/Pt の方が短い ことが分かった. α の値は MgO, Pt キャップ層を有する試料に対 してそれぞれ 0.002, 0.008 であった. これらの値から見積もられ た g_{eff} ¹¹の値は 7.3×10¹⁹ m²であった. この結果から, Co₂MnSi/Pt の g_{eff} ¹¹が CoFe や Fe と比較して 3 倍程度大きいことが分かった. 発 表では実験の詳細や規則度依存性について議論する.

本研究は JSPS 科研費 21K14218 および 18H03787 の助成を受けて行われた.

参考文献

[1] T. Seifert, et al., Nature Photon. 10, 483 (2016).

[2) Y. Sasaki, et al., AIP Advances 10, 085311 (2020).



Fig.1 TRMOKE signal $\Delta \varphi_{\rm K}$ in (a)Co₂MnSi / MgO and (b)Co₂MnSi/Pt films with annealing temperature of 500°C. Solid lines are fitting results.

Magnetization switching driven by spin-orbit torque from a Co₂MnGa magnetic Weyl semimetal thin film

K. Tang^{1,2}, Z.C. Wen¹, Y.-C. Lau^{3,4}, H. Sukegawa¹, T. Seki^{3,4}, 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

Magnetization switching driven by spin-orbit torques (SOTs) is crucial to realize ultrafast and energy-efficient spintronic memory devices. SOTs generated from ferromagnetic materials (FMs) are of great scientific and technological interest because the spin polarization orientations of spin currents in FMs can be controlled by their magnetization directions, and some of them, such as $L1_0$ -FePt,¹⁾ exhibit large charge-to-spin conversion efficiency. Recently, a remarkable anomalous Hall effect was observed in the ferromagnetic semimetal Co₂MnGa owing to the topological Weyl state in its band structure,^{2,3)} which may contribute to the SOT. For example, the efficient SOT magnetization switching has been reported using nonmagnetic Weyl semimetal WTe₂.⁴⁾ Thus, studying the spin transport properties of magnetic Weyl semimetal (MWS) combining FM and Weyl state is a promising step towards novel spintronic devices. In this work, we investigated the spin current generation and SOT-driven magnetization switching in Co₂MnGa-based MWS thin films.⁵⁾

Co₂MnGa-based heterostructures were deposited by magnetron sputtering. The films were characterized by reflection high-energy electron diffraction, atomic force microscopy, X-ray fluorescence and X-ray diffractometry. The magnetic properties were measured by a vibrating sample magnetometer. Furthermore, the samples were microfabricated into Hall bar structures by UV lithography. The transport properties of the films were characterized by harmonic Hall measurements in a physical property measurement system.

Epitaxial Co₂MnGa (001) films with flat surface morphology and highly *B*2-ordered structures were grown on MgO (001) substrates. The spin Hall efficiency ζ_{SH} was evaluated to be -7.8% in a 1.3-nm-thick Co₂MnGa film. The SOT-induced magnetization switching of a perpendicularly magnetized CoFeB layer was demonstrated in a SOT device with the core structure of Co₂MnGa/Ti/CoFeB. The Hall resistance change after electric current application suggests almost all the magnetic moments of the CoFeB film were reversed by the applied electrical current. Then we studied the mechanisms of spin current generation in this trilayer structure. The second harmonic Hall signal shows a non-zero value when the magnetization of Co₂MnGa is parallel to the electrical field. The Co₂MnGa thickness (t_{CMG}) dependence of $|\zeta_{SH}|$ shows the amplitude of ζ_{SH} slightly decreases with increasing t_{CMG} . The shift of anomalous Hall effect loops with applied current is nearly negligible. Those results suggest that the spin–orbit filtering effect at the Co₂MnGa/Ti interface and/or magnetization-independent spin Hall effect in Co₂MnGa may account for the spin current generation in the Co₂MnGa/Ti/CoFeB heterostructure. This work not only provides contributions to the understanding of the mechanisms of spin-current generation from MWS-based heterostructures but also open a way for the applications of MWS in spintronics.

This work was partially supported by the KAKENHI (Nos. JP20K04569, JP20H00299, JP16H06332, and JP20K15156) from the Japan Society for the Promotion of Science (JSPS), the Inter University Cooperative Research Program of the Institute for Materials Research, Tohoku University (No. 20K0058).

References

- 1) T. Seki et al., Phys. Rev. B, 100, 144427 (2019).
- 2) A. Sakai et al., Nat. Phys., 14, 1119 (2018).
- 3) Q. Wang et al., Appl. Phys. Lett., 115, 252401 (2019).
- 4) S. Shi et al., Nat. Nanotechnol., 14, 945–949 (2019).
- 5) K. Tang et al., Appl. Phys. Lett., 118, 062402 (2021).

Fe100-xRhx合金における異常ネルンスト効果の組成依存性

山内友喜¹、濱田勇樹¹、黒川雄一郎¹、湯浅裕美¹ (¹九州大学) Anomalous Nernst effect dependence on composition in Fe_{100-x}Rh_x alloys T. Yamauchi¹, Y. Hamada¹, Y. Kurokawa¹, H. Yuasa¹ (¹ Kyushu Univ.)

<u>はじめに</u>

異常ネルンスト効果は磁性体に熱流が流れるときに、磁化と熱流の外積方向に起電力を生じる。起電力を 向上して活用すべく研究され、従来から知られていた強磁性に加えて、ノンコリニア反強磁性でも発現する こと、局所的な有効磁場が重要であることが報告されている^[1-3]。本報告では、反強磁性から強磁性に一次 磁気相転移する FeRh 合金において、相転移点の磁気フラストレーションが異常ネルンスト効果に与える影 響を調べるべく、FeRh 合金の組成を変化させて異常ネルンスト効果を測定することで、磁性状態と異常ネ ルンスト効果の関係を調べた。

<u>実験方法</u>

Fe_{100-x}Rh_x (50nm) / SiN (5nm)を Fe と Rh のコスッパタリングで熱酸化シリコン基板上に成膜し、等原子組成付近で X = 45, 48, 50, 52, 54, 60 のように変化させた。成膜された Fe_{100-x}Rh_x 合金を規則化させるために、 真空中で 1 時間、750℃でアニールした。その後、X-Ray Diffraction : XRD (θ -2 θ)で Fe_{100-x}Rh_x 膜の結晶構造を 同定し、出来た膜について磁化測定、異常ネルンスト効果の測定を行った。

<u>実験結果</u>

Fig. 1 に XRD の結果を示す。全ての組成において CsCl 型規則相 FeRh (100) (110) の回折ピークを得るこ とができた。しかし、*X* = 50~60 では、規則相と共に 不規則 fcc 相も検出された。

次に、異常ネルンスト起電力を測定し、異常ネルン スト係数 N:N=(ΔV/ΔT)·(t/l)を算出し、飽和磁化 と共に Fig. 2 に示す。CsCl 相かつ強磁性 FeRh である 組成 X=45,48 では、Fe 単体に比べ約 10 倍の異常ネル ンスト係数が得られた。しかしながら、異常ネルンス ト係数と磁化の大きさは Fe を除いて同じ組成依存性を 示し、これは従来から知られている磁化と異常ネルン スト係数の関係であることから、磁気相転移に特有の 増大では無いと推測される。一方、Fe に対して約 10 倍の Nを示した理由については、異常ネルンスト角の 測定などを踏まえて議論する予定である。

参考文献

[1] A. Sakai et al., Nature 581, 53-57 (2020).

[2] M. Mizuguchi *et al.*, Sci, Technol. Adv. Mater. **20**, 264 (2019).

[3] M. Ikhlas et al., Nature Physics 13, 1085 (2017).



Fig. 1 XRD profiles for $Fe_{100-X}Rh_X$ (X = 45, 48, 50, 52, 54 and 60)



Fig. 2 Composition dependence of anomalous Nernst coefficient and magnetization.

半導体/強磁性体積層構造による横ゼーベック係数の増大

北浦 怜旺奈¹, 石部 貴史¹, Sharma Himanshu², 水口 将輝^{2,3}, 中村 芳明¹ (阪大院基礎工¹, 東北大金研², 名大未来研³)

Enhancement of transverse Seebeck coefficient using semiconductor/ ferromagnetic metal multilayer Reona Kitaura, Takafumi Ishibe, Himanshu Sharma, Masaki Mizuguchi, Yoshiaki Nakamura

(Osaka Univ.¹, Tohoku Univ.², Nagoya Univ.³)

<u>はじめに</u>

熱から電気へ直接変換可能な熱電変換は、異常ネルンスト効果を利用したものとゼーベック効果を利 用したものが多く研究されている。同じ無次元性能指数 ZT が得られた場合、異常ネルンスト効果を用 いた熱電変換デバイスは、ゼーベック効果を用いたデバイスよりも熱電変換効率の最大値が高いことが 理論的に提唱され、注目を集めている[1]。近年、強磁性金属/常磁性金属積層構造において、界面効果 により異常ネルンスト効果の大きさの指標の一つである横ゼーベック係数が増大することが報告され た[2]。しかし、一般に金属材料の熱伝導率は高いため、ZT は低い値に留まる。このため、横ゼーベッ ク係数の増大と同時に熱伝導率の低減が可能な材料が求められる。一方で、ゼーベック効果を用いた熱 電変換では、半導体ナノ構造の導入による熱伝導率の低減[3,4,5]、アモルファス半導体を用いることで 劇的に低い熱伝導率をもつ材料が多く報告されている[6]。そこで我々は、熱伝導率低減と横ゼーベック 係数増大の同時実現を目指して、低熱伝導率なアモルファス半導体層と強磁性金属層からなる積層構造 を提案する。本研究では、特に横ゼーベック係数増大に注目して、半導体 Si/強磁性金属 Co 積層構造を 作製し、界面効果による横ゼーベック係数増大の観測を目的とした。

実験方法

電子線蒸着装置を用いて、Si (001)基板上にCo,Siをそれぞれ同じ膜厚(20 nm)で交互に積層した(基 板温度:室温)。比較用試料として、室温でCo単層膜を作製した。構造評価には、走査型電子顕微鏡法 (SEM)、X線回析法、ラマン分光法を用いた。横ゼーベック係数評価には、物理特性測定装置 (PPMS) を、熱伝導率測定には2ω法を用いた。

実験結果

Si/Co 積層構造の SEM 像を確認したところ、各層 20 nm で均一に積層されていることが分かった。 横ゼーベック係数を測定したところ、この Si/Co 積層構造は、参照用の Co 単層膜よりも 2.4 倍程度高 い横ゼーベック係数を示した。これより、従来、強磁性金属/常磁性金属積層構造においてのみ観測され てきた横ゼーベック係数増大効果が、半導体 Si/強磁性金属 Co 積層構造においても発現することが明ら かとなった。本講演で詳細を報告する。

参考文献

[1] M. Mizuguchi, et al, *Sci. Technol. Adv. Mater.* 20, 262 (2019). [2] K. Uchida, et al., *Appl. Phys. Lett.* 114, 113902 (2019). [3] Y. Nakamura, et al, *Nano Energy* 12, 845 (2015). [4] T. Taniguchi, et al, *ACS Appl. Mater. Interface* 12, 25428 (2020). [5] Y. Nakamura *Sci. Technol. Adv. Mater. Interface* 19, 31 (2018). [6] S. Kwon, et al, *ACS Nano* 11, 2470 (2017).

(111)配向磁気トンネル接合の理論研究

増田啓介¹, 伊藤博介², 園部義明¹, 介川裕章¹, 三谷誠司¹, 三浦良雄¹ (物質・材料研究機構¹、関西大システム理工²) Theoretical study for unconventional (111)-oriented magnetic tunnel junctions K. Masuda¹, H. Itoh², Y. Sonobe¹, H. Sukegawa¹, S. Mitani¹, and Y. Miura¹ (NIMS¹, Kansai Univ.²)

<u>はじめに</u>

磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) への応用のため、磁気トンネル接合 (MTJ) は高いトンネル磁気抵抗比 (TMR比) に加えて大きな垂直磁気異方性 (PMA) を有する必要がある.このような必要条件を満足させるため、これまで bcc 構造を持つ Co(Fe)と MgO バリアによる(001)配向 MTJ が広く研究され、Δ₁ コヒーレントトンネル効果による高い TMR 比と界面電子状態由来の PMA が報告されてきた [Fig. 1(a)]. その一方で、MTJ 電極に用いる強磁性体を fcc 構造のものにまで拡張できれば、バルク電子状態由来の PMA を利用することができ、MTJ研究の幅を大きく広げることができると期待される.fcc 構造の最密面は(111)面であるため、fcc 強磁性体を用いた MTJ の自然な配向方向は[111]方向となる.以上のような理由で、本研究では様々な fcc 強磁性体を用いた(111)配向 MTJ の TMR 比と磁気異方性を理論的に解析した.

<u>解析方法・結果</u>

TMR 比,磁気異方性の計算とも密度汎関数法による 第一原理計算を用いて行った [1,2]. TMR 比の計算では バリスティック伝導を仮定して Landauer 公式を用い, 磁気異方性の計算では Force theorem を利用した.

まず(111)配向 MTJ の TMR 比について基本的な知見 を得るため,最も簡単な fcc Co,Ni と MgO による MTJ を考え,これらの系の TMR 比を計算した [1]. その結果, Co/MgO/Co(111)が 2000%を超える高い TMR 比を持つこ とがわかった.電子状態に関する解析の結果,このよう な高 TMR 比は Co-d 状態と O-p 状態の反結合によって 形成される界面電子状態が MTJ の両界面間でトンネル する界面共鳴トンネル効果によるものであることがわ かった [1].

続いて強磁性電極として fcc 構造を持つ *L*1₁合金 (FeNi, CoNi, *X*Pt, *X*Pd; *X* = Fe, Co, Ni) を考え, これらを 用いた MTJ の TMR 比と磁気異方性を評価した [2]. ま ず磁気異方性については, 大きな PMA が CoNi, CoPt, CoPd を含む多くの系で得られた. 続いて TMR 比につい て解析を行った結果, 界面に Co 層を含む CoNi, CoPt, CoPd の MTJ で 2000%を超える高い TMR 比が得られた。



(001)-oriented MTJs and (b) novel (111)-oriented MTJs.

これは上記のシンプルな fcc Co の場合と同様に, 界面共鳴トンネル効果由来の高 TMR 比であることが確認で きた [2]. 以上のような結果から, 我々は今回の(111)配向 MTJ が, 従来とは異なる機構で高 TMR, 巨大 PMA を実現しうる系であることを提案する [Fig. 1(b)].

<u>参考文献</u>

- 1) K. Masuda, H. Itoh, and Y. Miura, Phys. Rev. B 101, 144404 (2020).
- 2) K. Masuda, H. Itoh, Y. Sonobe, H. Sukegawa, S. Mitani, and Y. Miura, Phys. Rev. B 103, 064427 (2021).

Fe/MgO/Fe(001): 室温 400%・低温 900%を超える トンネル磁気抵抗比の観測

Thomas Scheike, Qingyi Xiang, Zhenchao Wen, ○<u>介川裕章</u>, 大久保忠勝, 宝野和博, 三谷誠司 (物材機構) Fe/MgO/Fe(001): Observation of tunnel magnetoresistance exceeding 400% at room temperature and 900% at low temperature Thomas Scheike, Qingyi Xiang, Zhenchao Wen, ○<u>Hiroaki Sukegawa</u>, Tadakatsu Ohkubo,

Kazuhiro Hono, and Seiji Mitani

(NIMS)

はじめに

2004年にFe/MgO/Fe(001)構造の強磁性トンネル接合(MTJ)において室温180%の巨大トンネル磁気抵抗 (TMR)効果が報告されたのち、スピントロニクス応用は飛躍的な進化を遂げた¹⁾。それまでのアモルファ スバリアを用いたMTJより数倍大きい値が容易に得られるようになり、素子電気出力増大の恩恵によって新 デバイス創成に大きく寄与してきた。一方、理論計算によるとFe/MgO/Feは1,000%を優に超えるTMR比が 予測されており²⁾、室温180~220%(低温290~370%)の実験値とは大きな乖離がある。本研究ではその理由 の一端を明らかにするためFe/MgO/Feに改めて着目した。単結晶成長法の改善の結果、素子の高品質化を達 成し、室温で400%以上、低温では理論値に迫る900%を超える非常に大きな値が得られたので報告する³⁾。

実験方法

マグネトロンスパッタ装置を用いて MgO(001)単結晶基板上に、Cr バッファー、Fe/Mg/MgO/Fe/IrMn/Ru キャップ構造の MTJ 多層膜を作製した。MgO 層作製には電子線蒸着を用い、基板処理、バッファー層、上下 Fe 層、Mg 層、MgO 層、各層熱処理、後酸化の各プロセスの最適化を行った。多層膜成膜後、磁場中熱処理を 行い、面内電流トンネル(CIPT)法による TMR 特性の評価を行った。その後、µm サイズの MTJ 素子に微細加工を行い、直流4端子法によって素子の磁気伝導特性評価を室温及び低温(5 K)において行った。

実験結果

各層の最適化に伴い TMR 比の増大がみられ、磁化平行時の微分コンダクタンス曲線にも特徴的な極小構造が 大きく発達することが確認された。最終的に室温で最大 417%(CIPT: 405%)、5 K において 914%の値を観 測した(TMR 曲線: Fig. 1)。また CoFe 層を MgO 下側界面に挿入することで、496%への室温 TMR 比増大が みられた。この結果、TMR 比の MgO 膜厚に対し振動する現象も非常に大きくなり Fe/MgO/Fe 報告値¹⁾の数 倍の振動振幅が観測された(振動幅~80%、室温)。TMR 比の大幅な増大が Fe/MgO/Fe という単純な構造で

も観測できたことから、作製法のさらなる改善や強磁性層・バリ ア層への新材料の導入によって今後さらに巨大な室温 TMR 比の 実現につながることが期待される。本研究の一部は佐橋 ImPACT により、科学技術振興機構を通して委託されて行われた。また、 JSPS 科研費(16H06332、21H01750)の支援により行われた。新 エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)の委託業務(No. JPNP16007)の結果得られたものを含む。

参考文献

- 1) S. Yuasa et al., Nat. Mater. 3, 868 (2004).
- W. Butler *et al.*, Phys. Rev. B **63**, 054416 (2001);
 J. Mathon and A. Umerski, Phys. Rev. B **63**, 220403(R) (2001).
- 3) T. Scheike et al., Appl. Phys. Lett. 118, 042411 (2021).



Fig 1. TMR ratio vs. magnetic field H of an Fe/MgO/Fe(001) MTJ at 300 and 5 K.

MgO と MgAl₂O₄ を用いた 3 層型バリアによる磁気抵抗効果の バイアス電圧依存性の改善

名和憲嗣^{1,2}, 増田啓介², 三浦良雄² (三重大院工¹, 物質・材料研究機構²)

Improved bias-voltage dependence of magnetoresistance by tri-layered tunnel barrier of MgO and MgAl₂O₄

K. Nawa^{1,2}, K. Masuda², and Y. Miura²

(Mie Univ.¹, NIMS²)

<u>はじめに</u>

巨大トンネル磁気抵抗効果(TMR)の実現に向け、MgOバリアを用いた磁気トンネル接合(MTJ)は精力的 に研究され、近年では極低温でのTMRがCoFeB電極系で1144%¹⁾、Fe電極系で914%²⁾と理論予測値(~1000%) に匹敵するにまで至っている。一方、バイアス電圧の印加によりTMRは急激に減少するため、情報読出し時 の出力電圧信号が小さくなる点が課題である。MgAl₂O₄(MAO)に代表されるスピネル酸化物は、種々の強 磁性体と格子整合性が良く、MgOと比較してTMRのバイアス電圧依存性が大幅改善されることから、次世 代バリア材料として期待される³⁾。第一原理計算から、例えばFe/MAO/Fe MTJの優れたバイアス電圧依存性 は、MAOの面内格子定数がFeより2倍大きいことから生じるFe電極のバンド折り畳み効果が起源とされ る⁴⁾。しかし、Fe/MAO/FeのTMRはFe/MgO/Feよりも低い。従って、高いTMRと優れたバイアス電圧依存 性を両立するバリア材料の開発が急務である。この課題解決に向け、我々は、MgO及びMAOで構成される 3層型 MgO/MAO/MgOバリア型MTJのTMRとそのバイアス電圧依存性を第一原理計算により調べた。

計算方法と結果

典型的な Fe 電極を用い、単原子層の MgO を Fe/MAO 両界面に挿入した MgO/MAO/MgO バリア(3 層型) MTJ、及び比較対象として MAO バリア (単層型) MTJ に対し、非平衡 Green 関数法に基づく第一原理計算を実 施した。TMRのバイアス電圧(Vb)依存性を図1(a)に示す。Vb=0Vのと き、単層型 MTJ では低い TMR (125%) が得られた。これは上述のバン ド折り畳み効果に起因する少数スピン状態における伝導性チャネルの出 現によることを確認した。一方、3 層型 MTJ の TMR は 1184%と巨大な値 を得た。次に、バイアス電圧を印加すると、例えば 仏=1V 以下の領域で は、3 層型 MTJ の TMR の変化は小さく一定の値を保った。これは、単層 型 MTJ と同様の傾向である。図 1(b, c)に、各モデルに対する電流--K 依存 性を示す。Vb=1V以下の領域の反平行(AP)磁化での電流について、3 層型 MTJ では電流値は極めて小さいが、単層型 MTJ では Kの上昇に伴 い電流値も大きくなった。波数空間におけるスピン透過率の解析から、3 層型 MTJ では MgO 層を挿入したことでバンド折り畳み効果による AP 磁 化でのトンネル電子が抑制されていることが明らかになった。平行磁化 では、いずれの MTJ モデルでもおおよそ単調増加し、大きな差は見られ なかった。以上の結果から、3 層バリア型の MgO/MAO/MgO-MTJ が、高



FIG. 1 Bias-voltage dependences of (a) TMR ratio and (b, c) current for the MTJs with tri-layered MgO/MAO/MgO and single MAO barriers, respectively.

い TMR と優れたバイアス電圧依存性を両立する可能性が示唆された⁵⁾。本研究の一部は TDK 株式会社及び JSPS 科研費(JP16H06332, JP17H06152, JP20H02190, JP20K14782)の助成により行われた。

参考文献

1) S. Ikeda *et al.*, APL 93, 082508 (2008). 2) T. Scheike *et al.*, APL **118**, 042411 (2021). 3) H. Sukegawa *et al.*, APL **96**, 212505 (2010). 4) K. Masuda *et al.*, PRB **96**, 054428 (2017). 5) K. Nawa *et al.* (submitted).

格子整合 MgAl₂O₄ バリアトンネル磁気抵抗素子の絶縁破壊特性

<u>介川裕章</u>¹, Zhenchao Wen¹, 葛西伸哉¹, Ashutosh Kumar¹, 大久保忠勝¹, 宝野和博¹, 三谷誠司¹, 市川心人², 中田勝之² (1 物材機構、2 TDK)

Dielectric breakdown characteristics of lattice-matched MgAl₂O₄-based magnetic tunnel junctions <u>Hiroaki Sukegawa¹</u>, Zhenchao Wen¹, Shinya Kasai¹, Ashutosh Kumar¹, Tadakatsu Ohkubo¹,

Kazuhiro Hono¹, Seiji Mitani¹, Shinto Ichikawa², Katsuyuki Nakada²

(1 NIMS, 2 TDK)

はじめに

スピントルク駆動型磁気メモリ(STT-MRAM)などの応用では高い絶縁破壊耐電圧を持つ強磁性トンネル接合(MTJ)の実現が望まれる。MTJバリア層として MgO が広く用いられているが、その膜厚は 1 nm 程度と 非常に薄くその耐電圧の確保が大きな課題である。MTJの耐電圧はバリア層界面近傍の結晶品位や原子欠陥 と密接に関係していることが知られている。CoFe(B)磁性層と格子不整合が非常に小さく¹⁾、界面欠陥の抑制 が容易な MgAl₂O₄スピネルバリア MTJでは比較的良好な TDDB(経時破壊)特性を持つことが報告されてい る²⁾。本研究では MgAl₂O₄ バリア MTJ に着目し、その耐電圧について直流(DC)電圧及び 10 ns 程度の短パ ルス電圧を用いて詳細に検討した。この目的のため、数Ω·μm² 程度の面積抵抗(*RA*)を持つ単結晶 CoFe/MgAl₂O₄/CoFe(001)格子整合 MTJ を作製し、同等のトンネル磁気抵抗(TMR)比、*RA*を持つ CoFe/MgO/CoFe 参照試料と電圧破壊特性を比較した。

実験方法

マグネトロンスパッタ装置を用い、MgO(001)単結晶基板上に[(Cr/Fe)下地]/CoFe/MgAl₂O₄ (0.9-1.2 nm)/CoFe/Fe/IrMn/Ruを基本構造とする面内磁化型 MTJ を作製し

た。低 *RA* 領域において高品位 $MgAl_2O_4$ バリア層を得るため、 Mg、Mg-Al 成膜と後酸化を繰り返す 2 段階酸化法 ³⁾を採用した。 多層膜は CIPT 法による TMR 比 $\cdot RA$ の評価を行ったのち、 250×100 nm²程度のサイズの MTJ ピラーに微細加工を行い、DC 電圧及びパルスジェネレーターによる ns オーダーのパルス電圧 を用いて破壊電圧を 2 端子法で評価した。

実験結果

まず $RA < 10 \Omega$ ·µm²領域において MgAl₂O₄ バリア作製最適化を行った結果を Fig. 1 に示した。3~10 Ω·µm²の領域で 180%以上の良好な TMR 比が実現されている。次にバリア膜厚を固定し素子の耐電圧を評価した。Fig. 2 に $RA = 4.9 \Omega$ ·µm²の DC 破壊テスト (25素子)の結果例を示している。抵抗が急激に低下する電圧(耐電圧)のばらつきは比較的小さく、平均して 1.0 V 程度と見積もられた。また 10 ns の電圧パルスでは耐電圧 1.5 V 程度が得られた。これらは MgO バリア参照試料で得られた耐電圧 (DC:0.8 V、10 ns パルス:1.2 V)に比べ有意に大きく、MgAl₂O₄によるバリア界面微細構造の改善効果が考えられる。

<u>参考文献</u>

- 1) Ikhtiar et al., Appl. Phys. Lett. 112, 022408 (2018).
- 2) C.M. Choi et al., Electronics Lett. 53, 119 (2016).
- 3) S. Ichikawa et al., Appl. Phys. Lett. 117, 122409 (2020).



Fig 1. TMR ratio vs. *RA* of CoFe/MgAl₂O₄ /CoFe MTJs prepared by the 2-step process.²)



Fig. 2. DC breakdown test results of CoFe/ MgAl₂O₄/CoFe MTJs with $RA = 4.9 \ \Omega \cdot \mu m^2$.

偶関数型抵抗-磁界特性を示すトンネル磁気抵抗素子の作製

中谷友也, Prabhanjan D. Kulkarni, 岩崎仁志, 桜庭裕弥 (物質・材料研究機構)

Fabrication of tunnel magnetoresistance devices with even-function type resistance-field response T. Nakatani, P. D. Kulkarni, H. Iwasaki, Y. Sakuraba (National Institute for Materials Science)

<u>はじめに</u>

生体磁気など微弱な低周波磁界の検出を目指し、磁気抵抗センサの研究が盛んに進められている.およそ 1 kHz 以下の周波数帯域では、磁気抵抗素子の 1/f ノイズが磁界分解能を決定するため、1/f ノイズの低減が重 要課題である.最近、巨大磁気抵抗(GMR)センサに対し交流磁界を印加し、センサの動作周波数を高周波側 にシフトすることで、1/f ノイズが低減されることが示された[1].この方法を用いるためには、外部磁界の正 負に対して対称な抵抗-磁界(*R*-*H*)特性を示すセンサが必要である.GMR の場合、スペーサー層を介した磁気 結合や短冊状素子の形状磁気異方性により、自由層を平行磁化状態に安定化させ、外部磁界を自由層の困難 軸方向に印加することで、偶関数型の *R*-*H* 特性が得られる.一方、トンネル磁気抵抗(TMR)の場合、Slonczewski の式[2]で表されるように、素子抵抗は強磁性電極間の磁化角度 $\theta = \pi/2$ に対し非対称な θ 依存性を示すため、高い感度(dR/dH)を得るためには、TMR センサを反平行磁化状態付近で用いることが重要である.

<u>実験方法</u>

図 1(a)に示すように, 基板/電極/Ta (2)/Ru (2)/IrMn (6)/CoFe (2)/AgSn (2-3)/CoFe (1)/CoFeBTa (20)/Ta (0.3)/CoFeB (3)/MgO (2)/CoFeB (2.5)/Ta (0.3)/CoFe (1)/Ru (0.75)/CoFe (3)/IrMn (8)/Ru (8) (膜厚は nm) スピンバルブ構造を作製した. MgO バリアの基板側が自由層であり, 軟磁性アモルファス CoFeBTa 層を有する. 自由層は, AgSn スペーサーを介した固定層 1 との強磁性的な orange-peel 結合により微弱にピニングされており, ゼロ磁界で MgO バリアをはさんだ CoFeB 電極間の磁化配列は反平行となる.

実験結果

図 1(b)に自由層に対するピニング強度(H_{shift})の AgSn スペーサー層膜厚依存性を示す.スペーサー層膜厚の 調整により、H_{shift}を1mT以下の微弱な領域で精密に制御することができる.また、AgSn は Ag や Cu に比べ 平坦性に優れ、orange-peel 結合強度すなわち H_{shift}の微調整に適している.図 1(c)に R-H 曲線を示す.外部磁 界をピニング方向に対し垂直(困難軸)方向に印加し、素子の形状を工夫することで、ほとんどヒステリシ スのない偶関数 R-H 特性が得られる.H_{shift}を小さくすることで感度 1/R_{min}·dR/dH は増大し、最大で 100 %/mT 程度の感度が得られた.講演ではこれらの TMR 素子のノイズ特性についても議論する.

参考文献 [1] Shirotori et al. IEEE Trans. Magn. 57, 4000305 (2021). [2] Slonczewski, Phys. Rev. B 39, 6995 (1989).





高 T_c/低 T_cハイブリッド層を用いた熱アシスト STT 磁化反転における

界面高 Tc層の影響

趙望臻, 加藤剛志, 大島大輝, 岩田聡*

(名古屋大学,*名古屋産業科学研究所)

Effect of high $T_{\rm C}$ interface layer on the thermally assisted STT switching of high $T_{\rm C}$ / low $T_{\rm C}$ hybrid memory layer

W. Zhao, T. Kato, D. Oshima, S. Iwata*

(Nagoya Univ., * Nagoya Industrial Science Research Institute)

1. はじめに

熱アシスト(TA)スピントランスファートルク(STT)磁化反転方式は10 Gbit クラス磁気ランダムアクセスメ モリ(MRAM)を実現できる書き込み方式として期待されている。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層を用い、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]。前回、スピン偏極電流による磁化反転トルクが作用する高 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、臨界電流密度(J_c)の温度 依存性を報告した[4]。今回、時間分解磁気光学 Kerr 効果(TRMOKE)を用い、ハイブリッドメモリ層のダンピング 定数(α)を測定し、界面層の膜厚比と STT 磁化反転の関係を調べた。

2. 実験方法

前回の報告と同様, リファレンス層 / Cu(2.5) /ハイブリッド層 (層厚の単 位は nm) という CPP-GMR 構造を作製し, 微細加工した。ハイブリッド層 は高 T_{c} [Co(x) / Pd(1.6-x)]₁ ML/低 T_{c} [Co₄₈Pd₅₂(0.4) / Pd(1.2)]₂ ML で構成されて いる。パルス幅 τ = 10 µs - 100 ms の電流パルスを CPP-GMR 素子に印加し, STT 磁化反転臨界電流を測定し, そのパルス幅依存性を τ = 1 ns まで外挿す ることで, 臨界反転電流密度 J_{c0} を見積もった。また, α の測定には, Ta(5) / Pd(5) /ハイブリッド層/Ta(2) と Ta(5) / Pd(5) /高 T_{c} 界面層 / Ta(2)をスパッタ 成膜し, TRMOKE により磁化ダイナミクスを測定した。TRMOKE は、中心 波長 1040 nm, パルス幅 500 fsec、繰り返し周波数 100 kHz のファイバーレ ーザを光源とし, Pump 光として波長 1040 nm, Probe 光として二次高調波の 520 nm のレーザ光を試料に入射した。測定の際, 14 kOe の外部磁界を膜面 法線方向から 40°~85°の範囲で印加した。測定した磁化の歳差運動を減衰振 動関数 exp(- τ /t)sin(ω t)でフィッティングし,緩和時間 τ の角周波数 ω 依存 性から α を算出した。

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を有する CPP-GMR 素 子の J_{c0} の温度依存性を示している。 J_{c0} は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。Fig. 2 はハイブリッド層と界面高 T_{c} 層のみの α を示してい る。ハイブリッド層の α は Co の膜厚を増加すると共に減少しているが, Co の膜厚が 0.6 を超えると大きく減少する。これは Pd 膜厚の減少により高 T_{c} 低 T_{c} 層間の交換結合が強くなるためと考えられる。この α の減少が Fig. 1 で示した室温における x = 0.8 の J_{c0} の減少を説明すると考えられる。また、









 J_{c0} の温度依存性は x = 0.8 で最も小さくなっているが、これもハイブリッド層の α の減少、すなわち高 T_c /低 T_c 層間の交換結合が強くなることと関係していると考えられる。以上から、高 T_c /低 T_c 層間の交換結合が、ハイブリッドメモリ層の室温での J_{c0} およびその熱アシスト効果に大きく影響を与えていると考えられる。

4.参考文献

- [1] Machida et al., IEEE Trans. Magn., 53, 2002205 (2017).
- [2] W. Zhao et al., IEEE Trans. Magn., 54, 3450405 (2018).
- [3] W. Zhao et al., J. Magn. Magn. Mater., 493, 165749 (2020).
- [4] 日本磁気学会第 44 回講演会, 15pC-7(2020)

微細素子における AFC 構造効果のシミュレーション II 木村大貴、仲谷栄伸 (電通大情報理工) Computer simulation of AFC structure effect for small MTJ II

Hiroki Kimura, Yoshinobu Nakatani

(Univ. of Electro-Comm.)

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の微細化が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時における 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) した 2 層構造を用いることにより、反転電流密度が低減可能であることを示した [4]。本研究では、 直径をより小さく、膜厚をより大きくした素子形状について AFC 構造の有用性を調べ、素子微細化の限界について 調査した。

計算条件

今回は反強磁性交換結合 (AFC) した 2 層構造の自由層を計算 対象とした。材料定数は CoFeB の値を用い、異方性定数 $K_u =$ 3.48 Merg/cm^3 、飽和磁化 $M_s = 600 \text{ emu/cm}^3$ 、交換スティッフネス定 数 $A = 1.0 \times 10^{-6} \text{ erg/cm}$ 、磁気回転比 $\gamma = 1.76 \times 10^7 \text{ rad/(Oe} \cdot s)$ 、ス ピン分極率 P = 1.0 とした。ここで、異方性定数は直径 d = 30 nm、膜厚 h = 2 nm の単層構造 (SL) が熱安定性指数 $\Delta = 60 \text{ となる異方性定数を用}$ いた。また、スピン電流のパルス幅 $t_p = 1.0 \text{ ns}$ とし、直径 d、及び上層の 膜厚 h_1 をそれぞれ 1 $\sim 30 \text{ nm}$ にて変化させ、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), 1/2(2 層構造: AFC) となる形状を考えた。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_{sw} を調べた。

結果

まず、SL における形状による熱安定性指数の変化を Fig.1 に示す。図 より、熱安定性指数 Δ が 60 以上となっている点を反転電流密度の調査 対象とした。微細素子に対する AFC 構造の有用性を調べるため、直径 d = 10 nm、上層の膜厚 $h_1 = 10$ nm(Pat. 1)、及び直径 d = 5 nm、上層の 膜厚 $h_1 = 29$ nm(Pat. 2) に対して、損失定数 α による反転電流密度 j_{sw} の変化を求めた。結果を Fig.2 に示す。図より、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。以前の報告 [4] では、直径 d = 30 nm、上層の膜厚 $h_1 = 2$ nm の形状に対して、AFC 構造による反転 電流密度の低減率は 50 %程度となることが示されていた。ここで、Pat. 1





の AFC 構造による反転電流密度の低減率は最大 51 %であったのに対し、Pat. 2 における低減率は最大 36 %であった。よって、直径 d = 10 nm においては以前の報告にて示された程度の低減率が得られたが、それ以下の直径においては低減率が減少していることが確認できた。このことから、AFC 構造を利用した素子の微細化には限界があることがわかった。

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. 510, (2018).
- [4] K. Yamada, et al., J. Appl. Phys., 127, 133906 (2020).

無磁界スピントルク発振素子の開発

常木澄人^{1,2}、薬師寺啓¹、福島章雄¹、湯浅新治¹、久保田均¹ (¹産総研,²JST-さきがけ) Development of zero field spin torque oscillator Sumito Tsunegi^{1,2}, Kay Yakushiji¹, Akio Fukushima¹, Shiji Yuasa¹, and Hitoshi Kubota¹ (¹AIST, ²JST-RESTO)

はじめに

スピントルク発振素子(STO)はナノメートルサイズの自励発振素子であり、次世代通信の信号源や磁界セン サーなどの応用を目指した研究開発が行われてきた。近年では、人工ニューラルネットワークの人工ニュー ロンとして STO を利用する演算器の開発研究も進められている¹⁾。これらの応用では高い発振出力と高い Q 値を両立することが望まれる。これらの要求に加えてシステムの低消費電力化や小型化のために、無磁界下 で STO の発振を励起することは必須となる。しかしながら、これまでの STO では、無磁界下で1µW を超 える高い発振出力および 1000 を超える高い Q 値を両立した報告は皆無である。本研究では、高い発振出力 が期待される FeB を自由層、および、Co/Ni 多層膜からなる垂直磁化スピン注入層を用いることにより²、 無磁界で高い出力と高い Q 値を両立する STO の開発を行った。

実験方法

本研究で用いた磁気渦型 STO の膜構成を図 1(a)に示す。自由層 FeB 膜厚は 6 nm とし、Co/Ni 多層膜は Co 0.2 nm と Ni 0.5 nm の交互積層を 7 回繰り返し作製した。多層膜作製後、1T の磁界を膜面平行方向に印加 し、330℃のアニール処理を行った。その後、膜面垂直方向に磁界を印加し磁気特性を評価した。また、直 径 400 nm の STO を EB リソグラフィおよび Ar イオンミリングにより作製した。膜面垂直方向の磁界およ び直流電圧 V_{DC} を印加し、STO から出力される高周波信号をスペクトラムアナライザーで評価した。

実験結果

図 1(b)に多層膜の磁化曲線を示す。無磁界で有限の磁化を持つことから、Co/Ni 多層膜が垂直磁化していることが確認された。図 1(c)は無磁界、V_{DC}=290 mV で得られた発振スペクトルである。無磁界にて 1 µ W を超える高い出力と 1000 を超える高い Q 値を得ることに成功した。高い出力と狭い線幅を両立するこの無磁界発振素子は演算器などの応用に非常に有望であると期待される。



図 1(a)STO の素子構造。(b) 垂直磁界下での多層膜の磁化曲線。(c)無磁界における発振スペクトル。

<謝辞>本研究は、JST 、さきがけ、JPMJPR20M5の支援を受けたものです。

<u>参考文献</u>

- 1) J. Torejon et al., Nature 547, 428 (2017)
- 2) A. Dussaux et al., Appl. Phys. Lett. 105, 022404 (2014)

マイクロ波磁界印加による injection locking を利用した スピントルク発振素子の磁化ダイナミクス解析

首藤 浩文¹, N. Asam¹, 田丸 慎吾², H. Sepehri-Amin¹, A. Bolyachkin¹,
 周 偉男¹, 中谷 友也¹, 久保田 均², 桜庭 裕弥¹
 (¹物材機構,²産総研)

Analysis of a spin-torque oscillator using injection locking to a microwave magnetic field H. Suto¹, N. Asam¹, S. Tamaru², H. Sepehri-Amin¹, A. Bolyachkin¹,

W. Zhou¹, T. Nakatani¹, H. Kubota², and Y. Sakuraba¹

 $(^{1}NIMS, ^{2}AIST)$

本研究の背景、本研究で提案した解析手法の原理

スピントルク発振素子(STO)は、直流電流を通電することにより磁化の歳差運動を励起できるナノデバ イスであり、マイクロ波アシスト磁気記録におけるマイクロ波磁界発生源などの応用が注目されている。こ れまで、STOの磁化ダイナミクスの解析にはSTOから発生する高周波電気信号(STO信号)が利用されてき た。しかしながら、この手法には、①磁化振動の軌道が対称的な場合、高周波電気信号が生じないため使用 できない、②実際の磁化振動の周波数に対応しない周波数成分が生じ、磁化振動に対応した周波数成分との 分離が困難、といった問題があった[1]。この問題を解決するため、外部マイクロ波磁界をSTOに印加した際 の injection locking を用いた新たな解析手法を考案し実験的に実証を行った[2,3]。新規手法は injection locking によって磁化の軌道が変化した際のSTOのDC抵抗変化を利用する。この原理のため、①高周波信号が発生 しない場合にも解析が可能、②実際の磁化振動の周波数のみが検出可能、という利点がある。

実験セットアップ

Fig.1に実験セットアップを示す。all-in-plane 型の STOの上部にマイクロ波磁界発生用のアンテナ線路 を作製した。このアンテナ線路に、信号発生器から1 MHz でパルス変調した高周波信号を導入し、変調に 同期した STO 抵抗の変化(Fig.1 IF 成分)をロックイ ン検出した。1 MHz は STOの磁化発振の周波数より 十分低いため、injection locking によって生じる STO の DC 抵抗の変化が検出される。また、このセットア ップでは従来手法である STO 信号(Fig.1 HF 成分) をスペクトラムアナライザによって測定できる。

実験結果

Fig. 2(a)に、従来手法により測定した STO 信号のス ペクトルを示す。32 GHz 付近にピークがあらわれて いるが、STO の磁化発振が実際にこの周波数で起き ていること直接示しているわけではない。Fig. 2(b) に、新規手法を用い、信号発生器の周波数をスィープ して測定した STO 抵抗の変化を示す。STO 信号のピ ークに対応した周波数において、injection locking に よる磁化軌道の変化を反映した抵抗の変化があらわ





れた。また、信号発生器のパワーを増加させてマイクロ波磁界強度を上昇させた場合、磁化軌道の変化も大 きくなるため抵抗変化も増大した。このように、新規手法では、STO 信号を測定することなく STO の磁化発 振の解析が可能である。さらに、injection locking は実際の磁化振動の周波数でのみ生じることを考慮すると、 新規手法の測定結果は STO の磁化発振が 32 GHz で起きていることを示している。

本研究は情報ストレージ研究推進機構 (ASRC)、JSPS 科研費 17H06152、19K05257 の支援、助成を受けた。

参考文献 1) W. Zhou, et al., APL. 114, 172403 (2019). 2) H. Suto, et al., APEX 14, 053001 (2021). 3) N. Asam, et al., APL(submitted).

高磁気抵抗率と低閾電流密度の両立を目指す

CoFeB/Tb-Fe 垂直磁化細線の電流誘起磁化反転の観察

藤本真大、上穂木有樂、黒川雄一郎、湯浅裕美 (九州大学)

Investigation of current-induced magnetization switching in CoFeB/Tb-Fe wire for both high magnetoresistance and low operating current density Masahiro Fujimoto, Uraku Kamihoki, Yuichiro Kurokawa, Hiromi Yuasa (Kyushu Univ.)

<u>はじめに</u>

重金属/強磁性体界面で発生するスピンオービットトルク(SOT)は電流による磁化反転を利用した Magnetic Random Access Memory (MRAM)などに応用が可能であり、注目されている。我々がこれまでに研究を行ってきた希土類フェリ磁性合金は、垂直磁気異方性と低い飽和磁化を有し、それにより低い閾電流密度での電流誘起磁化反転が可能である [1]。一方で、MRAM 応用を考えた場合、素子の磁気抵抗率が十分に大きくなければならず、希土類磁性合金は磁気抵抗率が低いため、応用を見据えると十分ではなかった。そこで今回、希土類磁性合金 Tb-Fe と高磁気抵抗率材料として一般的に用いられる CoFeB を磁気結合させ、高磁気抵抗率と低閾電流密度の両立を狙った。

<u>実験方法</u>

熱酸化Si基板上にTa/MgO/CoFeB/Tb-Fe/Pt多層膜をスパッタにより 成膜した。多層膜の模式図をFig.1に示す。SOTを注入するための 重金属層としては Pt を用いた。試料はフォトリソグラフィにより パターニングを行い、リフトオフ法によりホールバー状に加工した。 また CoFeB に垂直磁気異方性を持たせるために、素子作製後に細 線を 200℃15 分で熱処理した。試料の磁気特性は振動試料型磁力計

(VSM)を用いて行った。電流誘起磁化反転の観察は一定面内磁場中 で電流を印加し、ホール電圧の変化を観察する事で行った。

<u>実験結果</u>

まず、作製した多層膜の垂直磁場中でのVSM測定を行ったところ、 分裂のない一つのヒステリシスが得られ、垂直磁気異方性が得ら れていること、かつ CoFeB と Tb-Fe が磁気的に結合していること が分かった。次に、一定面内磁場を印加してホール電圧の変化を 観察したところ、Fig.2 の様に闌電流密度で急峻なホール電圧の変 化が観察され、Pt 層からの SOT によって磁化反転が起こっている ことがわかった。結果を解析したところ、CoFeB /Tb-Fe 細線で は閾電流密度(J_{tb})は約 10.0×10¹⁰A/m²だった。一方、磁化反転層が CoFeB のみの場合、 J_{tb} は約 21.1×10¹⁰A/m²であることが報告され ており [2]、今回の試料ではより低い閾電流密度が得られているこ とが分かった。

参考文献

[1] M. Wakae et al., Jpn. J. Appl. Phys. 58, SBBI02 (2019), [2] H.-Y. Lee et al., APL Mater. 7, 3 (2018)









Ni-Fe 単層膜におけるスピン軌道トルク

関剛斎^{1,2}、ラウヨンチャン^{1,2}、飯浜賢志^{2,3,4}、高梨弘毅^{1,2,5} (¹東北大金研、²東北大 CSRN、³東北大学際研、⁴東北大 WPI-AIMR、⁵東北大 CSIS) Spin-orbit torque in a Ni-Fe single layer

T. Seki^{1,2}, Y.-C. Lau^{1,2}, S. Iihama^{2,3,4}, and K. Takanashi^{1,2,5}

(¹IMR, Tohoku Univ., ²CSRN, Tohoku Univ., ³FRIS, Tohoku Univ., ⁴WPI-AIMR, Tohoku Univ.,

⁵CSIS, Tohoku Univ.)

はじめに スピンホール効果(SHE)に代表される電流-スピン流の変換現象を利用すると、非磁性体(NM)/強磁性体(FM)の2層構造において NM でスピン流を生成し FM の磁化にトルクを生じさせることができる。 これは、スピン軌道相互作用を起源としたスピン流が作り出す量子力学的トルクということで、スピン軌道 トルク(SOT)と呼ばれる。これまでは主に NM 層の材料に注目してスピン変換の研究が進められてきたが、 最近になって FM 層においてもスピン流を生成できること^{1:2)}、FM 層で生成したスピン流が FM 自身の磁化 に SOT を作用させること^{3:6)}が報告されるようになった。さらにこの自己誘導的な SOT を用いて、Ni-Fe(パ ーマロイ; Py)単層からなるナノコンタクトデバイスにおいて、SOT 誘起と考えられるスピントルク発振も観 測されている⁷⁰。これは SOT を動作原理とするスピントロニクスデバイスの新しい可能性を示唆する結果で あるが、自己誘導的な SOT の発生メカニズムは現在のところ統一的な理解が得られていない。そこで本研究 では、SOT の実験で広く用いられている Py の自己誘導的 SOT に着目し、Py 単層膜におけるスピントルク 強磁性共鳴(ST-FMR)を測定し、ダンピングライクトルクおよびフィールドライクトルクの Py 膜厚依存性を 系統的に調べた。

実験結果 イオンビームスパッタリング法を用いて熱酸化シリコン基板上に薄膜試料を作製した。本研究では「非対称構造の Py (Asym-Py)」と「対称構造の Py (Sym-Py)」の2種類の構造の試料を準備した。Asym-Py は Si-Ox 基板 // Py (t nm) / Al-O (5 nm)の積層構造からなり、Sym-Py は Si-Ox 基板 // Al-O (5 nm) / Py (t nm) / Al-O (5 nm)の積層構造を持つ。Py 層の層厚 t は 1.5 nm から 10 nm の範囲で変化させ、成膜温度は全て室温とした。量子干渉素子磁束計を用いて磁気特性を評価した。作製した薄膜をフォトリソグラフィーおよびイオンミリングによりコプレーナ導波路形状へと加工した。信号発生器を用いて高周波電力をコプレーナ導波路素子へと印加し、整流効果によって現れる直流電圧をロックインアンプにより検出することでST-FMR を測定した。

Asym-Py と Sym-Py の両構造において、フィールドライクトルクが検出された。一方で、ダンピングライ クトルクは $t \leq 3$ nm の Asym-Py のみで観測され、膜面垂直方向への構造対称性の急峻な変化がスピン流の 発生に寄与していることが示唆された。これらの結果をもとに、強磁性単層における ST-FMR のモデルを提 案し、ダンピングライクトルク効率の定量評価を行った。講演時には、得られたダンピングライクトルク効 率を先行研究と比較することで、自己誘導的 SOT の発生メカニズムについて議論する。

参考文献 1) B. F. Miao et al., Phys. Rev. Lett. 111, 066602 (2013). 2) T. Seki et al., Appl. Phys. Lett. 107, 092401 (2015). 3) L. Liu, Phys. Rev. B 101, 220402(R) (2020). 4) M. Tang et al., Adv. Mater. 32, 2002607 (2020). 5) L. Zhu et al., Adv. Funct. Mater. 30, 2005201 (2020). 6) W. Wang et al., Nat. Nanotechnol. 14, 819 (2019). 7) M. Haidar et al., Nat. Commun. 10, 2362 (2019).

面内空間反転対称性の破れた Pt/Co/Ir/Co/Pt 構造における

反対称層間交換相互作用

増田啓人¹、関剛斎^{1,2,3}、山根結太^{4,5}、モダックラージクマール²、内田健一^{1,2,3}、 家田淳一⁶、ラウヨンチャン^{1,3}、深見俊輔^{3,5,7,8}、高梨弘毅^{1,3,8}

(¹ 東北大金研、²物材機構、³ 東北大 CSRN、⁴ 東北大学際研、⁵ 東北大通研、⁶ 原子力機構先端基礎、 ⁷ 東北大 WPI-AIMR、⁸ 東北大 CSIS)

Antisymmetric interlayer exchange interaction in Pt/Co/Ir/Co/Pt with in-plane spatial inversion breaking

H. Masuda¹, T. Seki^{1,2,3}, Y. Yamane^{4,5}, R. Modak², K. Uchida^{1,2,3}, J. Ieda⁶, Y.-C. Lau^{1,3}, S. Fukami^{3,5,7,8},

and K. Takanashi^{1,3,8}

(¹IMR, Tohoku Univ., ²NIMS, ³CSRN, Tohoku Univ., ⁴FRIS, Tohoku Univ., ⁵RIEC, Tohoku Univ., ⁶ASRC, JAEA, ⁷WPI-AIMR, Tohoku Univ., ⁸CSIS, Tohoku Univ.)

はじめに Co/Cu/Co や Co/Ir/Co などの金属人工格子は層間交換結合を示すことが知られており、1980~1990 年代に盛んに研究されてきた[1]。この金属人工格子は近年再び注目を集めており、特にスピン軌道トルクと 反強磁性磁気構造を系統的に調べる研究対象として有用であることが明らかになっている [2]。また、強磁性 的あるいは反強磁性的結合といった対称の交換相互作用だけでなく、スピン軌道相互作用の大きな非磁性金 属を有する系ではジャロシンスキー・守谷相互作用といった反対称交換相互作用も誘起される。これまで反 対称交換相互作用は強磁性層/非磁性層の界面近傍においてのみ発現すると考えられてきたが、金属人工格子 の面内構造の空間反転対称性を破ることにより、非磁性層を介した 2 つの強磁性層の間に長距離の反対称交 換相互作用(反対称層間交換相互作用)が働くことが近年報告された[3-6]。しかしながら、反対称層間交換相 互作用の発現機構については理解が十分に進んでおらず、構造の非対称性を人工設計した系を用いた系統的 な実験が不可欠である。本研究では、層厚を傾斜させた Pt/Co/Ir/Co/Pt 金属人工格子を用いて面内構造の非対 称性を設計し、対称及び反対称の層間交換相互作用が誘起する磁気構造を明らかにすることを試みた。

実験結果 リニアシャッターを有するマグネトロンスパッタ装置を用いて、熱酸化 Si 基板上に Co 層厚 (t_{co}) と Ir 層厚 (t_{tr})を傾斜させたダブルウェッジ形状の Ta(1 nm)/Pt(2 nm)/Co(t_{co})/Ir(t_{tr})/Co(0.5 nm)/Pt(2 nm)/Ta(1 nm) を成膜した。9 nm 角の薄膜の内、下部 Co 層厚を 0.6 nm から 1.6 nm まで傾斜させ、下部 Co 層の傾斜方向から 90°回転させた方向に Ir 層厚を 0 から 1.5 nm まで傾斜させた。作製した層厚傾斜膜を微細加工法により幅 5~20 µm のホールバー形状へと加工し、異常ホール効果を利用して磁気特性を調べた。 t_{r} に対する飽和磁場 ($\mu_{0}H_{s}$)の周期的な変化が観測され、 t_{r} に依存した Co/Ir/Co の強磁性あるいは反強磁性的な層間交換結合が 確認された。 $t_{r} \sim 0.27$ nm、 $t_{co} \sim 0.80$ nm のデバイスについて、50 mT の面内磁場を重畳させて異常ホール効果 曲線を測定したところ、反対称層間交換相互作用の存在を示唆する非対称なヒステリシスループのシフトが 観測された。面内磁場を電流方向から-60 deg.の方向に印加した場合と 120 deg.の方向に印加した場合とのシフト量の差 ($\Delta\mu_{0}H_{sw}$) は 14.8 mT と見積もられ、これまでの報告値 (0.7~1.7 mT [4, 6]) と比べて 1 桁大きな 値のシフトが得られた。 $\Delta\mu_{0}H_{sw}$ の t_{r} 依存性を調べたところ、 $\Delta\mu_{0}H_{sw}$ は $t_{r} \sim 0.87$ nm より厚くなると増加する傾向が見られた。これは反対称層間交換相互作用の大きさが t_{r} に対して周期的に変化することを示唆している。また、 $t_{r} \sim 0.87$ nm で極小値をとる傾向は $\mu_{0}H_{s}$ の方 がっからでいる。講演時には、反対称層間交換相互作用が見たの間で換相互作用の間に相関性があることを示唆している。講演時には、反対称層間交換相互作用がスピン軌道トルク磁化反転に与える影響についても議論する予定でいる。

参考文献 1) M. D. Stiles, *J. Magn. Magn. Mater.* **200**, 322-337 (1999). 2) H. Masuda *et al.*, *Phys. Rev. B* **101**, 224413 (2020). 3) E. Y. Vedmedenko *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 257202 (2019). 4) D.-S. Han *et al.*, *Nat. Mater.* **18**, 703 (2019). 5) A. Fernández-Pacheco *et al.*, *Nat. Mater.* **18**, 679 (2019). 6) K. Wang *et al.*, *Commun. Phys.* **4**, 10 (2021).

LiNbO3単結晶基板上の2層構造 Py/Pt における 面内一軸磁気異方性によるスピン軌道トルクの変化

伊藤将慶¹,山口明啓²,大島大輝³,加藤剛志³,嶋睦宏¹,山田啓介¹ (岐阜大院自¹,兵庫県大²,名古屋大³)
M. Ito¹, A. Yamaguchi², D. Oshima³, T. Kato³, M. Shima¹, K. Yamada¹ (Gifu Univ.¹, Univ. of Hyogo², Nagoya Univ.³)

【緒言】近年、不揮発性磁気メモリ(MRAM)の書き込み速度のさらなる向上や省電力化に向けて、 強磁性/非磁性薄膜においてスピン軌道トルク(SOT)¹¹による磁化反転に関する研究が盛んに行わ れている。本研究では、LiNbO₃単結晶(LNO)基板上に Ni₈₀Fe₂₀合金(パーマロイ: Py)/Pt をスパッタ 蒸着し、ハーモニック測定法^[2]を用いて LNO 基板/Py に誘起された面内一軸磁気異方性(K_u)と SOT の相関を明らかにすることを目的とした。

【実験方法】フォトリソグラフィによる微細加工とマグネトロンスパッタを用いて、LNO 基板上に2層構造 Py/Pt のホールバーデバイスを作製した。試料構造は、LNO 基板/Py(4 nm)/ Pt(t nm)として Pt の膜厚を変化させた。また、LNO 基板の(01.2)面に対してデバイスのパターニング角度(χ)を変えて作製することで、Kuと SOT の相関を評価した。VSM により磁気特性を、ハーモニック測定法により SOT を定量化し、有効スピンホール角を評価した。

【結果と考察】図1はLNO 基板/Py(4)/Pt(4)の試料薄膜における磁化曲線の印加磁場方向(χ)依存性 を示した結果である。図1より $\chi'(K_u$ 方向)による磁化曲線の変化を確認することができた。各 χ' に おける磁化曲線の飽和磁場の値から、LNO 基板/Py 界面に誘起された K_u の大きさは~580 J/m³ と見 積もった。図2には、パターニング角度 χ における、ダンピングライクの SOT 効率(ξ_{DL})の Pt 膜厚 依存性の結果を示す。図2 の実線に示すフィッティング解析から、有効スピンホール角の数を算出 した。解析結果より、 χ が小さくなるにつれて**6** は減少する傾向が得られ、 $\chi = 0^\circ$, 90°の場合で は、**6** = 0.073, 0.123 となり、約1.7 倍の差が生じた。この結果は、LNO 基板/Py の界面による面 内一軸磁気異方性が、磁化の面内方向の歳差運動に影響を与え、SOT に影響を及ぼすためと考えら れる。



Si/Py(4)/Pt(t_p) samples.

[参考文献] [1] I. M. Miron, et al., *Nature*. 476, 189 (2011). [2] C. O. Avci, et al., *PRB*. 90, 224427 (2014). [謝辞] 本研究の一部は、名古屋大未来材料・システム研究所の共同利用・共同研究の助成を受けて行われた。 名古屋大学の岩田聡教授、熊澤正幸氏と、ハーモニック測定の技術的助言をいただいた大阪大学理学研究科 の上田浩平助教に心より感謝申し上げます。

トランス結合型透磁率測定装置の広帯域化のための改良

田丸 慎吾 (産総研 新原理コンピューティング研究センター) Modification of transformer coupled permeameter for wider bandwidth Shingo Tamaru (AIST, Research Center for Emerging Computing Technologies)

はじめに

インバータやコンバータなどのパワーエレクトロニクスモジュールは、脱炭素社会実現に向けた中核技術の ーつとして、その重要性が益々高まっている。一般にパワエレモジュールは、スイッチング周波数が高いほ ど小型化できるため有利であるが、現時点ではインダクタコアの損失が周波数の上昇に従い急激に増加し、 高周波化の阻害要因となっている。従って、コアに用いられる軟磁性材料の高周波特性の向上、具体的には 数 100kHz から数 10MHz の帯域における損失のメカニズム解明及びその低減は喫緊の課題となっている。 この帯域をカバーする従来の透磁率測定装置は、トロイダル形状の試料にコイルを巻き、その自己ないしは 相互インダクタンスを測ることにより、試料の透磁率を得ていた。しかしながらこの方法は 1)最終的なトロ イダル形状にするまで測定できない、2)外部磁場が印可できないといった問題があった。最終形状に固める 前の粉末状態の単一磁性粒子の高周波透磁率を、外部磁場を印可しつつ測定できれば、特性を理解する上で 極めて有利である。この目的のため、我々は単一磁性粒子を、短絡終端された平面導波路(CPW)で挟み、電 磁石に挿入して測定する「トランス結合型透磁率測定装置」(以下 TC-Perm)を開発し、横幅が約 100µm 程度、 厚さが 1µm 以下のセンダストやパーマロイ単一粒子の透磁率を、10MHz-20GHz という広帯域に渡って高感 度で測定できることを示した¹。その後当該装置の帯域をさらに広げるため、以下に示す改良を行った。

装置の概要

従来の TC-Perm では、高周波側は治具内で起こる反射により 22GHz 近傍に現れるノッチによって、低周波側 は使用するベクターネットワークアナライザ(VNA)の帯域によって制限されていた。これらの問題を解決す るため、治具を図1、装置構成を図2に示すように改良した。治具は裏面 GND と、表面に形成された CPW の GND との間にビアを通すことにより、スロットモードを抑え、メインの伝搬モードだけが励起されるよう に設計変更した。装置構成については、VNA を 100kHz-44GHz をカバーするモデルに置き換え、また 100MHz より低域では低雑音アンプ(LNA)で信号を増幅する回路を付加した。これらの結果、治具は 40GHz 付近まで 反射がなくスムーズな伝送特性を示すようになった。また低周波側も図3に示す通り、低周波での雑音が約 1/40 と大幅に減少した。改良後の装置を用いて 300µm×600µm、厚さ 100nm のパーマロイ標準試料の透磁率 を、200mT の磁場下で測定したところ、300kHz-40GHz という広帯域に渡り高感度で測定できることが確認 された。本発表ではこれらの改良の詳細及び、得られた TC-Perm の測定性能について解説する。 (謝辞)本研究開発は総務省 SCOPE(受付番号 JP195003002)の受託を受けたものです。

参考文献

1) S. Tamaru et. al, J. Magn. Magn. Mater. 501, 166434(2020).



図 1、新設計した TC-Perm 治具写真



図 2、低周波(<100MHz)において LNA を 入れた TC-Perm 装置の回路構成



図 3、LNA 有無によるパーマロイ 標準試料測定結果の比較

ノイズ抑制シートにおける bimodal 型

複素透磁率スペクトルメカニズム

五十嵐利行、田丸慎吾*、菊池伸明**、吉田栄吉**、岡本聡** ((株)トーキン、*産総研、**東北大)

Physical mechanism of bimodal complex permeability spectrum of a noise-suppression sheet

T. Igarashi, S. Tamaru*, N. Kikuchi**, S. Yoshida**, and S. Okamoto**

(TOKIN Corp., *AIST, **Tohoku Univ.)

はじめに

ノイズ抑制シート(NSS)は電子機器内部での不要電磁波吸収を目的に、1995年に(株)トーキンより BUSTERAID[®]として上市され、携帯移動端末をはじめとして幅広く利用されている。NSSの構成は、表皮深 さ以下に薄くした軟磁性扁平磁粉を有機バインダーと混錬し、シート状に加工したものとなっている。その 開発当初から bimodal 型の複素透磁率スペクトルを示すことが知られていたが、これまでは定性的な解釈に 留まっており、その起源に関する理解は十分ではなかった。本研究では、シート試料とその構成要素である 単一扁平磁粉の複素透磁率スペクトルがほぼ同一であることを明らかにし、さらにその挙動が磁気 Vortex 理 論で説明できることを示したので^り、その結果をまとめて報告する。

<u>実験方法</u>

NSS の特性について広く調べることを目的として、一般的に製品に用いているセンダストに加えて Fe_{74.8}Al_{25.2}と Fe_{50.2}Co_{47.6}V_{2.2}、ならびに純 Fe を用いて、シート試料および単一扁平粒子での複素透磁率測定を 行った。シート試料はシールディドループコイル法、単一粒子はトランス結合型透磁率測定法(TC-Perm)²⁾を 用いた。

<u>結果</u>

Fig. 1 に代表例として Fe を用いた場合のシート試料と単一扁平粒子の複素透磁率スペクトルを示す。これ

まで広く知られてきたセンダストを用いた NSS と同様に、 Fe でも bimodal 型の複素透磁率スペクトルが得られた。さ らに、単一粒子でも、ほぼ同様の結果となっていることが 確認された。この結果は、NSS の bimodal 型の複素透磁率 スペクトルが個々の粒子特性に起因したものであること を明瞭に示している。さらに他の材料系でもほぼ同様の結 果であり、bimodal 型の複素透磁率スペクトルは材料に依 らない扁平磁粉ならびに NSS のユニバーサルな特徴であ ることが分かった。その起源について詳細な検討を行った 結果、扁平微粒子内に磁気 Vortex の磁化状態が形成されて おり、低周波ピークは磁気 Vortex コアの共鳴で、高周波ピ ークは磁気 Vortex の flux closure 状態での共鳴でそれぞれ 定量的によく説明できることが分かった。

本研究開発は総務省 SCOPE(受付番号 195003002) の受 託を受けたものです。

参考文献

- 1) 五十嵐利行, 東北大学博士論文(2021)
- S. Tamaru et al., J. Magn. Magn. Mater. 501, 166434, (2020).



Fig. 1 Complex permeability spectra of (a) sheet sample and (b) single flake of Fe.

Fe 単一扁平粒子の透磁率スペクトルの粒径依存性

大沼智幸、五十嵐利行*、田丸慎吾**、菊池伸明、吉田栄吉、岡本聡 (東北大、*(株)トーキン、**産総研) Size dependence of complex permeability spectrum of Fe single flakes T. Onuma, T. Igarashi, S. Tamaru, N. Kikuchi, S. Yoshida, and S. Okamoto (Tohoku Univ., *TOKIN Corp., **AIST)

はじめに

近年、スマートフォンなどの小型端末において、その内部の高集積化された部品間の電磁干渉が問題視さ れており、その対策としてノイズ抑制シート(NSS)が広く用いられている。NSS は金属磁性扁平粒子の集合組 織であり、bimodal 型の透磁率スペクトルを示すことが広く知られている。われわれは単一粒子においても bimodal 型の透磁率スペクトルが得られ、詳細な検討の結果、扁平粒子内に生じる磁気 Vortex の理論で説明で きることを示した^{1,2}。今回、Fe単一扁平粒子の透磁率の粒子径依存性を調べた結果を報告する。

実験方法

Fe 単一粒子の透磁率測定にはトランス結合型透磁率測定法(以下 TC-Perm)³⁾を用いた。この測定法は短絡 終端された2つのコプレーナウェーブガイドを重ねて構成した誘導結合トランスに被測定単一磁性粒子を挿 入し、ベクトルネットワークアナライザで透過係数 Sn を測定することにより、磁性粒子の複素透磁率を測定 するものである。試料は、厚み 0.9μm、直径 50μm、100μm、200μm の三種類の純 Fe 扁平粒子を用いた。 実験結果

Fig.1 に TC-Perm により測定した直径 200µm の Fe 扁平粒子の複素透磁率の虚部 µ"の周波数スペクトルの 一例を示す。これまでに知られていた bimodal 型ではなく、三つの共鳴ピークが存在していることが確認で きた。Fig.2 に Fe 扁平粒子の各直径に対するそれぞれ三つの共鳴ピーク周波数の変化を示す。最も高い共鳴 周波数 High および最も低い共鳴周波数 Low のピークは扁平粒子の直径によらずほぼ一定の値をとり、中間

の共鳴周波数 Middle は直径が大きいほど周波数が低下する 傾向が観測された。

ここで High のピークが磁気 Vortex の flux closure 状態で の共鳴に起因し、Low のピークが Vortex コアの共鳴に起因 すると仮定し、理論値との比較を行った。その結果、High とLowの共鳴周波数は磁気 Vortex 理論で定量的に説明でき、 さらに磁気 Vortex 径は Fe 扁平粒子の直径に依存せず、80~ 100µm 程度のサイズであることが示唆された。これらのこ とから、High および Low の共鳴は磁性粒子内に存在するひ とつまたは複数の磁気 Vortex に起因するものと判断される。 Middle のピークの要因については考察中である。 謝辞



Fig.1 Permeability spectrum of an Fe particle. (d=200µm) (imaginary part µ")



Fig.2 Particle size dependence of Resonance frequency.

本研究は総務省 SCOPE (受付番号 195003002)の研究助成 によるものである。

参考文献

- 五十嵐利行, 東北大学博士論文(2021) 1)
- 五十嵐利行他,第45回日本磁気学会学術講演会講演 2) 概要(2021)
- S. Tamaru, N. Kikuchi, T. Igarashi, S. Okamoto, H. Kubota 3) and S. Yoshida, J. Magn. Magn. Mater, vol. 501, p. 166434, 2020.

伝送線路内の RF 電流集中によるシート状磁性体の共鳴周波数シフト

山口正洋 宮澤安範

(東北大学)

FMR frequency shift of a magnetic sheet caused by RF current crowding in transmission line

M. Yamaguchi, Y. Miyazawa

(Tohoku Univ.)

1. はじめに ノイズ抑制体の伝送減衰率等の測定¹⁾では、磁界源となる信号線の幅が有限のため、反磁界 が影響して FMR 周波数が高周波側にシフトすることがある^{2),3)}。これでは説明できない高周波シフトが観測 された⁴ため、本研究ではマイクロストリップ線路(MSL)を電磁界解析し、まず信号線の幅方向の端部へ 電流が集中し、信号線の周囲磁界が局在化することを定量的に示した。この信号線の上にノイズ抑制シート や磁性薄膜等を置くと、強い反磁界が生じ、共鳴周波数は更に高周波側にシフトしうることを示す。

2. MSL の電流および磁界解析 Fig.1 に MSL の電磁界解析モデル(Ansvs 社、HFSS Ver 14.0)を示す。 導体の材料は Cu、厚さは 18 μm とし、誘電体の比誘電率は ε_r=2.17 とした。信号線幅 Wsig を 95~4740 μm の範囲で変化させ、特性インピーダンス Zoをほぼ 50 Ωを保つよう誘電体厚を変化させた。代表的解析結果 として、Fig. 2は f=2 GHz における信号線断面内の電流分布を示す。Cuの表皮厚δは1.4μであり。導体厚よ り十分薄い。このため、表皮効果と近接効果によって信号線の幅方向の端部へ電流が著しく集中している。 このため、周囲磁界も局在化する。Fig.3は、信号線が幅広であると磁性体は信号線端部の上空でのみ局所的 に励磁される。その幅は信号線より狭いため反磁界が強く、FMR 周波数は高くなる。信号線と磁性体との垂 直距離(Fig.1中のh)が広がれば、影響は低減される。これを示唆する実験結果が得られている⁵。高透磁 率材料では漏洩磁束に関する特性長のが長いので影響は限定的と思われ、検討中である。 なお、電流分布が一様のとき、信号線幅が十分広ければ反磁界を無視できるので、傾向は逆となる。

謝辞 ご討論頂いた東北大学 薮上 信教授、岩崎千里氏に感謝します。本研究は、総務省電波資源拡大のた めの研究開発「不要電波の高分解能計測・解析技術を活用したノイズ抑制技術の研究開発」(JPJ000254)の 成果である。

参考<u>文献</u>

IEC 62333-2:2006, 2006. 2) S. Muroga et al., IEEE Trans. Magn., 49, 7, 4032, 2013. 1)

- S. Muroga et al, J. Electronic Materials, 48, 3, 1342-1346, 2018. 3)
- 4) M. Yamaguchi et al, EMC Sapporo & APEMC 2019, MonPM2C.6, 2019.
- 高木、他、マイクロストリップ型プローブにおける測定誤差の検討、本学術講演会発表予定,2021. 5)
- R. E. Jones, IEEE Trans Magn., MAG- 14, 509-511, 1978. 6)



Fig. 2 Simulated current crowding (wsig=4,700 µm)

Fig. 3 Simulated magnetic field intensity above signal line

sub-100MHz 向け新規磁性多層 EMI シールド膜

喜々津哲、黒崎義成、白鳥聡志、藤田篤史*、西垣寿*、松中繁樹* ((株)東芝、*芝浦メカトロニクス(株))

New EMI Shielding Layer with Magnetic Multilayer for sub-100MHz Frequency Range

A. Kikitsu, Y. Kurosaki, S. Shirotori, A. Fujita, H. Nishigaki, S. Matsunaka

(Toshiba Corp., *Shibaura Mechatronics Corp.)

はじめに

半導体素子が高密度に実装された機器における電磁波干渉(EMI)対策として、素子のモールド上にシールド 膜を直接成膜する direct-on-chip シールドが検討されている¹⁾。著者らは、磁性層/金属層界面での電磁波の多 重反射を利用した多層シールド膜の提案²⁾に基づき検討した結果、Cu/NiFeCu/Cu 多層膜において 300-600 MHz の帯域で Cu よりも高いシールド性能が得られ、さらに[Cu(100 nm)/ NiFeCuMo(100 nm)]₁₀の構成の多層膜が、 100 kHz~100 MHz の周波数帯域において高いシールド性能を示すことを見出した³⁾。しかしながら、これら の磁性多層膜は大きな凹凸のある樹脂モールド上では軟磁性が劣化し十分なシールド特性が得られていない。 また、磁気異方性もあるため direct-on-chip シールド膜として用いるには課題が残る。

本研究では、後者の積層構造に着目し、軟磁性層との積層構成を検討した結果、樹脂基板上でもガラス基 板上でも100MHz以下で高いシールド性能を持ち、かつ磁気異方性が小さいものを見出したので報告する。

実験方法

多層膜サンプルは、前回³と同様に Cu と NiFeCuMo 合 金ターゲットを用いて、芝浦メカトロニクス製スパッタ 装置 CCS-2800 により成膜した。基板にはガラスおよび数 um の凹凸を有する 2.5cm 角の樹脂モールドを用いた。シ ールド性能は過去の文献²⁾と同様の手法を用い、基板の二 つの辺に沿った方向で測定した。シールド効果 MSE (dB) を-20log(透過パワー/投入パワー)で定義し、ネットワーク アナライザを用いて周波数依存性を調べた。

結果および検討

Fig.1、2 にガラス基板、樹脂基板上に成膜した、 [Cu(100)/NiFeCuMo(100)]₁₀/ [Ta(5)/NiFeCuMo(50)]₅₅/

[Ta(5)/NiFeCuMo(300)]₁₀積層膜のシールド特性を示す。リファレンスとして Cu 3um の特性も示す。樹脂基板であってもガラス基板と同様に、30-50 MHz にピークを持つ特性が得られた。さらに方向依存性も小さく、等方的な特性となっている。多層膜を構成する 3 種の各磁性層の役割はまだよくわかっていないが、ヒステリシスループが軟磁性層単層のような振る舞いを示すことから、各層が静磁気相互作用によって[Cu/NiFeCuMo]₁₀層の磁壁共鳴をエンハンスしていることが想定される。

<u>参考文献</u>

- 1) M. Yamaguchi, et al.: IEEE Trans. Magn., 46, 2450 (2010)
- 2) K. Yamada et al.: 2011 IEEE International Symposium on EMC, p.432
- 3) A. Kikitsu: 第44回日本磁気学会学術講演概要集 14aD-10(2020), abstract of JEMS2020, 3238 (2020)



Fig.1 Shield effect of the multilayer sample on a glass substrate



Fig.2 Shield effect of the multilayer on a mold substrate

逆磁歪効果型歪センサの高周波振動特性の評価

高野凌、石山和志(東北大学)、星貴之(ピクシーダストテクノロジーズ)

Evaluation of high frequency vibration characteristics of inverse magnetostrictive effect type strain sensor

R. Takano, K. Ishiyama (Tohoku Univ.), T. Hoshi (Pixie Dust Technologies)

はじめに

これまで我々は、振動センサとして磁歪膜と導体 膜の積層構造からなる逆磁歪効果を用いた歪セン サを応用する研究を行ってきた。先行研究において は2kHzまでの振動周波数を検知できるセンサとし ての特性を測定した¹⁾。しかし,我々のセンサは検 出回路のキャリア周波数が高く, さらに薄膜であり 渦電流損が小さいことから,更に高い振動周波数帯 域でも特性を損なわず数 ppm オーダーの歪を検出 することが可能だと推測される。先行研究において センサ自体をカンチレバー構造とすることで振動検 知特性を測定していたが、自由振動させていたため 機械的共振周波数以上の測定が困難であった。そこ で,100kHz 程度までの振動検知特性を評価する装置 の構築に取り組んだ。本稿では、下記に示すように センサを振動子で直接振動させることで高周波を印 加することを試みた。振動源として 20kHz 近傍を共 振周波数とするランジュバン型振動子を採用した実 験装置を用いた検討結果を述べる。

実験方法

Fig. 1 に片持ち梁構造を用いた振動印加実験の模 式図を示す。振動子を固定治具によって一定の高さ に保持している。振動子に交流電圧を与えることで 固定部分に対して上面が振動(変位)する。センサの 片端は振動子の上面に接着されており、もう一片端 はステージに固定されている。これよりセンサには 振動子の変位により歪が生じる。歪の印加によりセ ンサが伸び縮みすることで逆磁歪効果によりセンサ 素子の透磁率が変化し、インピーダンスの変化へ変 換される。このインピーダンス変化を検出回路にお いて検出することで歪検知を行った。

実験結果及び考察

Fig. 2 に実際に 20kHz の振動を印加し、振動子の 先端を 14µm_{p-p}で振動させ、センサ表面に 15ppm の 歪を印加した時の出力を示す。このデータから、セ ンサ出力波形が印加した振動周波数である 20kHz の 波形として出力された。このことからセンサへ正確 に高周波歪を印加できており、高周波領域における センサの評価ができると言える。この結果から得ら れたセンサの歪み感度の評価については学術講演会 で報告する。



Fig. 1 Design of vibration testing equipment.



Fig. 2 Output from 20kHz-vibrated sensor.

参考文献

 1) 曽良, 枦, 石山, 日本磁気学会論文特集号, 4, 41 (2020).

磁性薄帯用磁気ひずみ測定システムの評価

森 修, 佐藤茂行, 内海 良一, 遠藤 恭* (東栄科学産業,*東北大学)

Evaluation of Measurement System for Magnetostriction of Magnetics Alloy Ribbons O. Mori, S. Sato, R. Utsumi, Y. Endo* (Toei Scientific Industrial co., ltd, *Tohoku University)

はじめに 従来、磁性合金薄帯の磁気ひずみ評価には容量変化法やひずみゲージといった評価法が幅広く利 用されている。これらの評価法は薄帯に電磁気的な変化を誘導して機械的な変化を引き起こし、物理的な変 化を検出することによって磁気ひずみ定数を算出する簡便な方法である
¹⁾。その一方で、薄帯を何枚も重ね た試料の作製や試料サイズを大きくする必要があるなどの欠点も抱えている。これに対して昨年、我々は磁 性合金薄帯に異なる応力を付与し、そのときのインダクタンスの外部磁界依存性(電磁気的変化)をコイル により検出することによって薄帯の磁気ひずみを評価することのできる新たな方法を検証し、報告した²⁾。 本研究では、この磁性薄帯用磁気ひずみ評価法を用いて市販の Fe 系アモルファス薄帯 2605SA1(日立金 属)の磁気ひずみの熱処理による変化を評価した。

実験方法 Fig.1 は、本実験における測定システム図である。本評価法では、幅8mm の細長い薄帯の中央部 を検出コイル内部に挿入して薄帯の両端を治具で固定した状態で電磁石のギャップ部に設置する。固定した 薄帯両端のうちの一端にフォースゲージを取り付けて薄薄帯の長手方向に引張応力を付与する。このとき、 薄帯内部の異方性磁界が変化する。したがって、薄帯に一定の応力(σ_ℓ)を付与しながら薄帯幅方向に 0~300 mT の直流磁界 (H_{ac})を印加し、薄帯が挿入された検出コイルのインダクタンス (L) を LCR メータにより 測定する。得られたインダクタンスの逆数($1/(L-L_{0})$)(L_{0} :空心コイルのインダクタンス)と H_{dc} との関係 を、300g~700gの応力に対してまとめる。得られた結果をもとにして、同じ1/(L-L₀)値において、H_{dc}の 応力の違いによる変化量($\Delta H = H_{dc1}$ — H_{dc2})を導出し、 $\Delta H = 3 \lambda_s (\sigma //1 - \sigma //2) / M$ (M:薄帯の磁化)(*)にあて はめて薄帯の磁気ひずみ (λ) を評価する。

実験結果 Fig.2 は異なる応力を付与したときの Fe系 アモルファス薄帯における 1/(L-L₀)と H_{dc}の関係を熱 処理前後で比較したものである。熱処理の有無に関係 なく 80~100 mT の H_{dc} では、いずれの 1/(L-L₀)も直 線的に増加した。また、応力の増加にともない、同じ $1/(L-L_0)$ 値に対して H_{dc} が増加した。このときの ΔH と応力の変化量を、(*) 式にあてはめてそれぞれのλ。 を算出した。その結果、λs 値は熱処理前が 27ppm で、 公称値と同じ値が得られた。これに対し、熱処理後の λs は 11ppm となった。この結果から、磁性薄帯を熱 処理したことにより、薄帯内部のひずみが緩和され、 λ。が低下することを確認できた。今後はナノ結晶材料 の磁性薄帯を用いて同様に熱処理前後のんの比較を行 う予定である。

参考文献

1) 荒井賢一, 津屋昇, 日本応用磁気学会 2,5(1978). 2) 遠藤恭, 島田寛, 森修, 佐藤茂行, 内海良一, 第 44 回日本応用磁気学会学術講演、14aD-5.



Fig.2 磁性薄帯の熱処理前後の 1/(L-Lo)の磁場依存性

External Magnetic Field, Hay [mT]

700g

100

20

18

マイクロストリップ型プローブにおける測定誤差の検討 高木薫,石原知弥,沖田和彦,岩崎千里,薮上信,山口正洋,茶谷健一* (東北大学,*株式会社トーキン)

Study of measurement error of ferromagnetic resonance frequency using Microstrip Line-Type Probe

K. Takagi, S. Ishihara, K. Okita, C. Iwasaki, S. Yabukami, M. Yamaguchi, K. Chatani*

(Tohoku Univ., *TOKIN Corporation)

<u>1. はじめに</u>

著者らはフレキシブルマイクロストリップ線路型 プローブを開発し,透磁率計測を報告した¹⁾.この 計測法では反磁界の影響による強磁性共鳴周波数の 高周波へのシフトが課題である.本稿ではマイクロ ストリップ導体幅およびサンプルと導体との距離を 変えて透磁率を計測し,反磁界の影響を検討した.

<u>2. 実験方法</u>

Fig.1 に測定系の概要図を示す.システムのセッ トアップは、以前の研究 いで使用されたものと同様 である.プローブはマイクロストリップ導体幅 0.36 mm¹⁾と 1.2 mm の二種類のプローブを用いた. ヘル ムホルツコイルを用いて,2T中でスルーキャリブレ ーションを行った。線幅 0.36 mm のプローブでは直 流磁界を RF 磁界に垂直な方向へ印加した.線幅 1.2 mmのプローブでは RF 磁界と平行方向へ印加した. キャリブレーション後、2Tの強磁界を除いて、磁性 体の寄与分のみが反映された透過係数 S21 を測定し, 磁性体のインピーダンス Z=2Z₀(1-S₂₁)/S₂₁に換算す る¹⁾.2次元有限要素法磁場解析を用いてインダクタ ンスと比透磁率実部µr'の関係から複素透磁率µrを 求める ¹⁾. サンプルと信号線との距離をアクリルシ ートおよびアクリル板を用いて 0.1 mm から 2 mm ま で変化させて測定した.

<u>3. 測定結果</u>

測定試料はトーキンの NiZn ferrite sheet(10 mm× 10 mm, 0.1 mm thick)²⁾とした. Fig. 2 に線幅 1.2 mm のプローブでサンプルと信号線の距離を 2 mm とし たときの複素透磁率を Nicolson-Ross-Wier (NRW)法 ³⁾及び Shielded Loop Coil 法⁴⁾との比較結果を示した. 強磁性共鳴周波数が約 1 GHz となり他測定方法とほ ぼ一致した. Fig. 3 に 2 種類のプローブを用いてサ ンプルとマイクロストリップ導体との距離を変化さ せた際の強磁性共鳴周波数の測定値を示した. サン プルと導体の距離を離すと,強磁性共鳴周波数が 1 GHz に近づいた. これは距離が離れると磁性体への 励磁範囲が拡がり,局所的な反磁界の影響が低減し たためと考えられる⁵⁾. 概ね距離 0.4 mm 以上で強磁 性共鳴周波数はほぼ一定となり,反磁界の影響が抑 えられたと考えられる.

<u>謝辞</u>

本研究の一部はビジネス・インキュベーション・ プログラムの研究成果である.本研究の一部は総務 省電波資源拡大のための研究開発及び異システム間 の周波数共用技術の高度化に関する研究開発「不要 電波の高分解能計測・解析技術を活用したノイズ抑 制技術の研究開発」(JPJ000254)の成果である.



Fig. 1 Schematic of measurement system.



Fig. 2 Relative permeability of NiZn ferrite sheet.



Fig. 3 Resonance frequency as a function of offset between conductor and sample.

参考文献

- (1) S. Yabukami et al., IEEE Trans. Magn., 57 (2021, in press).
- (2) JFE TECHNICAL REPORT, 26, 77 (2010).
- (3) A. M. Nicolson and G. F. Ross, *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, 19, 377 (1970).
- (4) M.Yamaguchi et al., IEEE Trans. Magn., 32, 4941(1996).
- (5) Sho Muroga et al., IEEE Trans. Magn., 49, 4032 (2013).

磁性膜を配置した MSL の磁気回路解析による回路定数の推定

三上 貴大, 室賀 翔, 田中 元志 (秋田大学大学院理工学研究科)

Circuit parameter estimation of MSL with magnetic film using magnetic circuit analysis

Takahiro MIKAMI, Sho MURUGA, Motoshi TANAKA

(Graduate School of Engineering Science, Akita University)

1. **はじめに** 電子機器に磁性体を用いた電磁ノイズ抑制体 (NSS) を実装するための設計指針の確立が 求められている.筆者らは,NSS を配置したマイクロストリップ線路 (MSL) 断面を磁気回路解析し, 等価電気回路を推定する方法を提案した¹⁾.しかし,磁気回路の構築のためには,MSL 断面の磁束密度 分布を電磁界シミュレーションにより算出する必要があった.そこで,NSS の例として Co-Zr-Nb 膜を 配置した MSL 断面の磁束密度の解析的な算出を試みた²⁾が,その計算過程の一部に誤りがあった.その 誤りを修正した結果,解析的な導出のためには近似等を用いた計算過程の簡単化が必要であることが明 らかになった.そこで,磁気回路の磁束が主に流れる枝路の磁気抵抗のみを用いた推定を試みた.

2. 特性長の解析的導出 解析対象¹⁾は、比誘電率9.8 のアルミナ基板上に試作した単線 MSL とした. MSL は、線路長 10 mm,幅 95 µm である. Co-Zr-Nb 膜は、 低周波で比透磁率約 700,材料固有の強磁性共鳴(FMR) 周波数約 1 GHz,抵抗率 120 µΩcm である. Co-Zr-Nb 膜 を配置した MSL をネットワークアナライザ(NA5224A, Keysight)を接続して伝送特性を測定し、電磁界シミュ レータ(Ansys® HFSS™, Ansys Inc.)を用いて解析した. 図 1 に Co-Zr-Nb 膜を配置した MSL 断面の磁束経路 および磁気回路を示す²⁾. φ₀は全磁束,φ_mは磁性体内 を流れる磁束を表す.また,w_mは、磁性膜内の磁束密 度の値が、信号線端部直上の磁性膜内の磁束密度の値 の約 37% (=1/e,e はネイピア数)以上である範囲を示し、 磁気回路構築に必要である. Co-Zr-Nb 膜内の磁束密度 に関する微分方程式³⁾より、w_mを算出した.

$$w_{\rm m} = \sqrt{\frac{g}{1/\mu_{r1}h + a/\mu_r t}} \tag{1}$$

ただし, μ_{r1} は真空中の比透磁率($\mu_r = 1$), μ_r は Co-Zr-Nb 膜の比透磁率,gは誘電体と磁性体の距離($g = t_s + t_d$), $a = \Phi_m / \Phi_0$ である.磁気回路を用いると、aは(2)式で表 せる²⁾.

$$a = \frac{\Phi_{\rm m}}{\Phi_{\rm o}} = \frac{\mathcal{R}_{\rm a}\mathcal{R}_{\rm d}}{\mathcal{R}_{\rm a}\mathcal{R}_{\rm d} + \mathcal{R}_{\rm a}\mathcal{R}_{\rm m} + \mathcal{R}_{\rm d}\mathcal{R}_{\rm m}}$$

(2)



図1 MSL 断面の磁束経路および磁気回路



図2 インダクタンスの推定

ここで、各磁気抵抗は各磁束 ϕ_a 、 ϕ_m 、 ϕ_d が通る断面積とその磁路から計算した^{1,4)}. なお、磁性膜内で 発生する渦電流によって磁性膜上部に漏れ出す磁束量は、他の枝路を流れる磁束量と比較して小さいと 考え、 \mathcal{R}_a の枝路の一部を無視して計算した.

3. インダクタンスの推定 磁気回路解析より推定したインダクタンスを実験値と比較して図2に示す. 推定値は実験値とおおよそ一致し,2.7 GHz 付近の実効的な FMR 周波数で低下し,極小となった後に 徐々に一定値に漸近した.この周波数特性は,Co-Zr-Nb 膜が局所的に励磁されることによる形状異方性 (反磁界)の影響を考慮した実効的な比透磁率の実部の影響と考えられる.なお,6 GHz 付近以上の周波 数帯域では負の値を示すのは,波長共振の影響と考えられる.

4. おわりに Co-Zr-Nb 膜を配置した MSL のインダクタンスを解析的に推定可能であることを示した. 今後,必要な周波数帯で十分なノイズ抑制効果を得るための設計指針の構築を検討する.

謝辞 本研究の一部は,科研費 20K04497,東北大学電気通信研究所共同プロジェクト研究の助成を受けた.

参考文献 1) Mikami et al., *IEEE Trans. Magn. Early access*, 2021. 2) 三上他, 第44 回磁気学会学術講演会, 14aD-11, 2020. 3) R.Jones, *IEEE Trans. Magn.*, 14(5), p.509, 1978. 4) TDK, "磁気回路設計ガイド", As of June 22, 2021.

小型化した単層薄膜磁気インピーダンス素子の変化率 ^{谷井雅, 菊池弘昭} (岩手大学) Impedance change ratio of miniaturized single layer thin film MI element M. Tanii, H. Kikuchi

(Iwate Univ.)

1. はじめに

磁気インピーダンス素子は、高透磁率磁性体に高周波電流を通電した場合に外部磁場により、その透磁率が 変化し、それに伴い表皮効果、強磁性共鳴を介してインピーダンスが変化する現象であり、磁気センサに応用 されている. 生体磁気応用を見据えた高感度化の検討が中心的であるが、局所的な非破壊評価応用等への展開 を見据えて、我々は小型化を目指して磁性薄膜による研究を行なってきた¹⁾. これまで大きなインピーダンス 変化が報告されている薄膜素子は 2-10 mm の素子長で多層構造である. 本研究では薄膜で単純構造の単層を 用いて、これまで報告例の少ない1 mm以下の磁気インピーダンス素子において数 100%の変化率の実現につ いて検討した.

2. 実験方法

薄膜磁気インピーダンス素子には Co₈₅Nb₁₂Zr₃ アモルファ ス薄膜を用いた. 膜厚 1-5 μmの薄膜をスパッタ・リフトオフ 法により素子長 1 mm,素子幅 10-80 μmの矩形素子に微細加 工した. 成膜後に磁性体部は磁界中熱処理を行い,各素子の容 易軸を幅方向に制御した. 1 MHz から 3 GHz の周波数範囲に おいて素子のインピーダンスをネットワークアナライザによ り測定した. 測定の際にはヘルムホルツコイルを用いて外部 磁界を素子の長手方向に印加した.

3. 実験結果

Fig. 1 は幅 40 μm, 厚さ 5μm の素子におけるインピーダン スの周波数依存性を示した図である.この素子は全長 1.4 mm の矩形状素子であり,反磁界分布低減のため中央 1mm の部分 に通電を行っている.印加磁界 0 でのインピーダンスは約 8 Ω一定で,100 MHz 以上で表皮効果によりわずかに増加する. 外部磁界を印加した場合,数 100 MHz 帯域でのインピーダン ス変化の増大が顕著になり,1 GHz 付近でピークを取る.Fig. 2 は同一素子における 1~1.5 GHz でのインピーダンスの外部 磁界依存性を示した図である.周波数 1.1 GHz でのインピー ダンス変化率は 400%が得られており,一連の検討の中で最大 の変化率となっている.センサの動作原理としては 100 MHz



Fig. 1 Frequency dependence of impedance Z for $40 \,\mu\text{m}$ wide and $5 \,\mu\text{m}$ thickness element.



Fig. 2 Field dependence of impedance Z from 1.0 GHz to 1.5 GHz.

低周波から側で数 100 MHz 領域においては表皮効果による抵抗増加があり, GHz 帯付近では強磁性共鳴が関 与している. バイアス磁化率の理論やマクスウェルの方程式に基づくインピーダンスの計算の結果, 膜厚が大 きくなるにつれてインピーダンス変化は大きくなるが, ピークをとる周波数は共鳴周波数に依存して膜厚に よる変化しない結果が得られた. 実験においても素子幅, 膜厚によらずインピーダンスのピークはおよそ 1 GHz 付近で得られており, 強磁性共鳴の寄与が支配的となり最大変化率が得られていると考えられる. 解析結 果も含めて詳細は会議にて報告する.

<u>参考文献</u>

1) H. Kikuchi, et. al., IEEE Magnetics Letters, vol. 10, #8107205, pp. 1-5, 2019.

高安定 MI センサによる車両通行計測と車種推定アルゴリズムの検

計

姚睿軒、内山剛 (名古屋大学)

Vehicle Traffic Measurement and Vehicle Type Estimation Algorithm Using Highly Stable MI Sensor

R. Yao, T. Uchiyama

(Nagoya University)

はじめに

5年一回実施している一般交通量調査は、全国の道路の交通量などの基礎資料を得ることを目的に実施 したものである。調査方法については、主に交通量常時観測装置、簡易型トラフィックカウンタ、人手によ り観測する方法などである。磁気センサを用いた車両通行計測装置は、設置しやすい、低消費電力、即時で 計測できるなどの利点があるため、コストの削減、作業サイクルの短縮などことに役立つ。さらに、最も一 般的な計測方法—画像処理法と比べて、厳しい気象条件での検出が可能であり高精度に電気自動車を検知す ることも期待できる。我々はこれまでに、MI センサを道路横に設置した車両通行計測実験により、車両の 台数、速度の計測が可能なことを報告している。今回は、直流磁界から安定に磁界を計測できる MI センサ を用いた車両通行計測装置の性能評価と車種推定アルゴリズムについて検討した結果を報告する。

実験方法

電池(単電源 0~5V)で動作する MI センサ(動作周波数 DC~500Hz)を試作し、計測装置として性能 を評価するために、感度、環境ノイズ、フィルタについて調べた。実際の道路に計測装置を設置し、対照と して、スピードガン、カメラによる速度測定を同時に行って、得たデータを処理してセンサの性能を評価し た。また、理論モデルに基づいたシミュレーションにより車種推定アルゴリズムに関して検討を行った。

実験結果

試作センサは、±20μTの範囲内は優秀なリニアリティ(線性度)を示した。また、車両通過に伴う変 動磁場の計測結果により、車両通行計測に必要な周波数帯域は 0.1~10Hz で、磁場変動は、μT レベルであ

ることを確認した。さらに、実験環境で測定したσノイズは 約 10nT (DC~500Hz)、信号雑音比 (SNR) は 59.04dB であ る。帯域を制限するために、カットオフ周波数 26.1Hz のロー パスフィルタを利用すると、3σ磁場は4.94nTとなり、ノイ ズが正規分布している場合、それ以上の信号の検出確率は 99.7%となる。

Fig.1は、車両通行に伴う変動磁場分布を車種別にまとめ た結果を示す。変動磁場の大きさは 0.1~数 10 μ T の範囲で あった。各車種で測定した変動磁場分布は概ね同じ範囲内で、 車体が大きいほど変動磁場が大きくなる傾向はみら 45 🕞 40 れなかった。 35

Fig.2 は大型車両(トラック)の波形例を示 す。大型車両の波形には多ピークを発見した。これ は大型車両の特徴的な波形であると考えられる。

波形の最初と最後のピーク間の時間を Tpp とし て定義する。車長と Tpp の関係を検証のため、 車両通行の理論モデルを分析し、シミュレーシ ョンした。車両通過に伴う変動磁場波形が、対



Fig.1 Magnetic field distribution of different types



称の場合のみを分析した。Fig.3は、バス及び普通乗用車の実測した波形と calculation values シミュレーションによる計算値である。普通乗用車の実測波形と計算波形は類似しており、Tpp と車長は線 形関係であることが検証できる。つまり、車体上の磁化分布が単純な場合は、Tpp だけでも小型車両と大型 車両を分けられる。実際には磁化分布が複雑な車両が含まれるため、小型車両と大型車両の車種を判別する ためには、変動磁場の波形とTppの条件を組み合わせるアルゴリズムを考える必要がある。

25

コプレーナ型薄膜磁界センサの電磁界解析

石原 知弥,植竹 宏明*,岩崎 千里,薮上 信,山口 正洋 (東北大学,*電磁材料研究所)

Analysis of coplanar line type thin film magnetic field sensor by electromagnetic field simulation

Tomoya Ishihara, Hiroaki Uetake*, Chisato Iwasaki, Shin Yabukami, Masahiro Yamaguchi

(Tohoku University, *Research Institute for Electric and Magnetic Material)

<u>1. はじめに</u>

筆者らは、伝送線路と磁性薄膜を一体化した薄膜 磁界センサ¹⁾を研究してきた.このセンサについて 電磁界解析を行い、バイアス磁界によるSパラメー タの変化の傾向が実測値とおおむね対応したため報 告する.

2. 実験方法および計算方法

Fig. 1にセンサ素子の写真を示す. センサ素子は ガラス基板(25 mm×25 mm, 1 mm 厚)上にアモルフ ァス CoNbZr 薄膜(1 mm×1.15 mm, 1 µm 厚)を RF マ グネトロンスパッタにより成膜し、回転磁界中処理 (300°C,2時間,0.3T)の後,静磁界中熱処理(200°C, 1時間)を施して、コプレーナの幅方向へ磁気異方性 を付与した.次に,SrTiO 薄膜(膜厚 3 µm)を基板加 熱しながら成膜し, 最上層には Cu 薄膜によるコプ レーナ線路(450 µm 幅, ギャップ 32 µm, 膜厚 1.6 μm)をリフトオフにより作成した. これは導体のみ で特性インピーダンスがほぼ 50 Ωとなる寸法であ る. コプレーナ線路には高周波キャリアが通電され, キャリアに CoNbZr 薄膜の磁化容易軸方向の透磁率 が反映される. センサの測定はネットワークアナラ イザ(HP8722ES)の透過法測定により S₂₁のゲインと 位相の周波数特性を求めた. ネットワークアナライ ザの周波数範囲は 50 MHz-40.05 GHz(801 点)とし、 バンド幅は1kHz, 平均化回数は16回とした. セン サへの接続には GSG プローブを使用し,バイアス磁 界の印加には電磁石を用いた.解析には ANSYS Electronics Desktop 2020 R1 (ANSYS 社)の三次元有限 要素法電磁界解析ソフト HFSS を用いた. CoNbZr に はシールデッドループコイル法 2)により測定した複 素透磁率を解析周波数ごとに入力した. 導電率は 8×10⁵ siemens/m とした. SrTiO の比誘電率は7とし た. 各解析周波数でメッシュの最適化を行った. 3. 結果

Fig. 2 は S₂₁の実数部および虚数部を実測値と理 論値で比較したものである. それぞれの S₂₁ はレフ ァレンス($\mu_r \approx 1$ に相当)に対する相対的な変化分と して表記した. 印加磁界は 25 Oe とした. S₂₁の実数 部は約 2.5 GHz で実測値,解析値ともに極小値をと るという傾向でおおむね対応した. これは,約 2.5 GHz で強磁性共鳴により,複素透磁率の虚数部が最 大となり損失が増大したためと考えられる. また, S₂₁の虚数部は約 2.5 GHz で実測値,解析値ともに 0 に近づき,約 2.5 GHz で強磁性共鳴により複素透磁率 の実数部が急峻に減少して負になるためと考えられる.この結果から、複素透磁率の変化によるS21の変化を解析可能であると考えられる.よって、複素透磁率の測定値と三次元有限要素法電磁界解析を用いてセンサ動作の解析が可能なことを示した. 謝辞

電磁界解析にご支援いただいた東北大学学術研究 員宮澤安範様に感謝いたします.本研究の一部は科 研費(16H04378),JSPS「二国間交流事業共同研究」 (JPJSBP120197704),総務省電波資源拡大のための 研究開発「不要電波の高分解能計測・解析技術を活 用したノイズ抑制技術の研究開発」(JPJ000254)の研 究成果である.



Fig.1. Schematic view of sensor.



参考文献

- H. Kudo, H. Uetake, H. Onodera, L. Tonthat, K. Okita, S.yabukami, J. Hayasaka, K. I. Arai, *T. Magn. Soc. Jpn.*, 4, 32-36(2020).
- M. Yamaguchi, S. Yabukami, K. I. Arai, *IEEE Trans. Magn.*, 32,4941-4943(1996).

アモルファスワイヤを用いた磁気センサにおいて励磁パルス電流の 立下り時間が出力電圧に及ぼす影響

金子陽美,赤城文子

(工学院大)

Effects of fall time of excitation pulse current on output voltage for magnetic sensor with amorphous wire T.Kaneko, F.Akagi (Kogakuin Univ.)

はじめに

近年,磁気センサは生体磁気信号検出などの目的から,超高感度化とマイクロサイズ化が求められている. アモルファス磁性ワイヤを用いた磁気センサ(磁気インピーダンスセンサ)は、高周波パルス電流をワイヤ に通電することで、ワイヤに巻いたピックアップコイルに生じる誘導起電力を出力電圧として磁界を検出す る.本研究では、マイクロマグネティクスシミュレーションにより、FeCoSiB アモルファスワイヤを用いた 磁気センサに GHz オーダーのパルス電流を流した時の出力電圧の外部磁界依存性と、センサ内部の磁化挙動 を検討したのでその結果について報告する.

計算手法と計算モデル及び計算条件

磁性体の磁化挙動は、渦電流の効果を取り込んだ Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式を用いて計算した.計算モデルは Fig.1 に示す、ワイヤ径 10 µm、長さ 200 µm(ただし、実際のワイヤ長は mm オーダーとして軸方向

の静磁界は0と仮定した),セルサイズ 0.2×0.2×100 μm の円柱モデ ルとした.磁気特性は、飽和磁化 1.0 T,異方性定数 250 J/m³,セル間 の交換定数は面内 1.0×10⁻¹¹ J/m, z 軸方向 2.0×10⁻¹¹ J/m とした.出力 電圧は、励磁パルス電流の立下り時におけるピーク電圧とした. FeCoSiB ワイヤは、作製過程で超急冷されることにより、圧縮応力が 発生するため、表層部は円周方向に磁気異方性がつく[1].従って、表

発生するため,表層部は円周方向に磁気異方性がつく[1].従って,表 層 0.75 μm の領域は面内,それ以外の領域では軸方向に磁化容易軸を 仮定した.

計算結果

Fig.2 に,立下り出力の外部磁界依存性を示す.この結果は,立下り時間 1.0 ns において実測と同様の傾向を示している.立下り時間によらず,ある磁界強度をピークに出力は減少し,立下り時間が短いほど出力がピークとなる外部磁界強度は高くなる.また,外部磁界が高くなるにつれ,立下り時間が短いほど出力が高くなる.立下り時間が短いほど、外部磁界への応答が速くなるため,出力が高くなると考えられる.

立下り出力時の磁化挙動を確認したところ,立下り時間 0.385 ns で はワイヤ表層の磁化回転のみ,立下り時間 5.0 ns ではワイヤ表層の磁 化回転に加えてワイヤ内部の磁壁移動が生じていた.今回検討したセ ンサはワイヤ表層の高速な磁化回転により高出力が得られるが,立下 り時間が長いと磁壁移動も生じるため出力が低下すると考えられる.







Fig.2 Relationship between peak voltage and magnetic field when the fall time is used as a parameter

参考文献

1) 川島克裕 他, アモルファス磁性ワイヤの Matteucci 効果の発生機構, 日本応用磁気学会誌, 16, p.560-565

高周波磁界により励磁した Wiegand ワイヤのパルス出力特性

 衞藤風馬,山田努,竹村泰司 (横浜国立大学)
 Output pulse voltage of Wiegand wire excited by AC magnetic field at high frequency Fuma Eto, Tsutomu Yamada, Yasushi Takemura (Yokohama National Univ)

<u>はじめに</u>

熱ひねり加工を施したWiegand ワイヤは、高速な磁壁移動によって大バルクハウゼンジャンプと呼ばれる急峻な磁化反転を生じ、この周りに検出コイルを設置することでこの磁化反転に伴う誘導起電力が得られる。これは、Wiegand 効果と呼ばれる¹²⁾。Wiegand 効果の特徴は、低速で変化する磁界に対してその変化速度にほぼ無依存なパルスを出力することであり、実用的に有用なものである。他方、高速で変化する磁界に対して、パルス出力がどのように変化するかは明らかにされていなかった。本稿では、周波数を 50 Hz から 50 kHz と変化させたときに、パルス出力がどのように変化するかについて測定及び考察をしたので報告する。

実験方法

1 mm 長、200 turn の検出コイルを作製し、11 mm 長の Wiegand ワイヤ中央の外周部に設置した。ソ レノイドコイルによりワイヤ長に対してほぼ一様な交流磁界を印加した。以下では励磁磁界の強度を 8.0 mT/µ₀、周波数を 50~50 kHz としたときに、Wiegand ワイヤに誘起されるパルス出力(開放電圧) を測定した。

実験結果

Fig.1 には、f = 50 Hz の交流磁界で励磁させたときの検出コイルに誘起されるパルス電圧波形を示 す。Fig.2 には、f = 50 Hz、500 Hz、5 kHz、50 kHz と変化させたときのパルス電圧波形を示す。Fig.2 は、パルスの正の半周期のみを周波数ごとに重ねて表示しており、縦軸はパルス電圧の波高値で規格 化している。Fig.2 を見ると、f = 50 Hz~5 kHz のときのパルス波形は半値幅が 10 µs 程度と殆ど変化 が見られないが、f = 50 kHz のときのパルス出力は、他周波数での出力に対して幅が狭くなった。こ のとき交流磁界の半周期は 10 µs とパルス幅と同程度になり、またワイヤ内部の磁壁移動速度は 500 m/s 程度と考えられており、半周期で磁壁はワイヤ長より短い 5 mm 移動することになる。 詳細なデータや考察について当日、報告する。

<u>参考文献</u>

- 1) Wiegand and Velinsky, U.S. Patent 3, 820, 090, 1974.
- 2) Takemura et al., IEEE Trans. Magn., 53, 4002706, 2017.







Fig. 2 Output waveforms of Wiegand wire under excitation AC magnetic field of various frequency.

01pC - 6

Wiegand ワイヤと高透磁率材料をコアに用いる受電コイルの比較

川添駿平、川手祐理、山田努、竹村泰司 (横浜国立大学) Receiving coils with cores using Wiegand wire and high permeability material

Shumpei Kawazoe, Yuri Kawade, Tsutomu Yamada, Yasushi Takemura

(Yokohama National University)

はじめに

Wiegand ワイヤに外部磁界を印加すると、大バルクハウゼンジャンプと呼ばれる急峻な磁化反転を生じる ため、この周りに設置した検出コイルにはパルス電圧が生じる¹⁾。この出力は外部磁界の変化速度に依存し ないという特徴があり、発電型エンコーダなどに利用されている。また、体内インプラントへのワイヤレス 給電のような励磁コイルと受電コイルが離れる場合には、高周波磁界を発生させることが難しい場合が想定 され、Wiegand ワイヤの特性を利用した低周波のワイヤレス給電が検討されている²⁾。ここで、一般的なワイ ヤレス給電では受電コイルのコアに高透磁率フェライトが使用されているが、誘導起電力を発生させる原理 および誘導される電圧波形が異なるため、それぞれの特性が優位となる条件を比較することは難しい。本研 究では Wiegand ワイヤと MnZn フェライトを用いたコアコイルの比較を、後段の整流・平滑回路を含め詳細 に検討した。

実験方法

Fig.1 に示すように、4500 turn の給電用検出コイ ルのコアに Wiegand ワイヤ(ϕ :0.25 mm, length:11 mm)³⁾および MnZn フェライト(ϕ :0.44 mm, length:11 mm)を使用し、正弦波交流磁界 μ_0 H = 5 mT で一様に 励磁した。検出コイル後段には、ダイオードブリッ ジ整流回路及び平滑コンデンサを接続し、負荷で得 られる電力を測定した。

実験結果

Fig. 2 に励磁周波数 f = 100 Hz, 1 kHz, 10 kHz とし た場合に、負荷で得られる 1 周期当たりのエネルギ ーの負荷特性を示す。ただし、負荷電圧を各コアの 断面積で規格化した値から算出した。この実験条件 においては、いずれの周波数においても、Wiegand ワ イヤをコアとする出力増幅が優位であることが確認 できた。低周波条件下でも高い波高値をもつ Wiegand パルスやダイオードでの損失の違いが寄与 していると考えられる。詳細は当日報告する。

参考文献

- 1) J. R. Wiegand and M. Velinsky, U.S. Patent 3, 820, 090, 1974.
- 2) Takahashi et al., J. Mag. Soc. Jpn. 42, 49, 2018.
- 3) Takemura et al., IEEE Trans. Magn. 53, 4002706, 2017.



Fig. 1 Configuration of measurement.



Fig. 2 Energy per cycle in the load resistance.

改良された2ステップ法で作製された Nd-Fe-B 磁石膜の異方化に与える堆積温度効果

仲嶋飛向(M1)¹、古澤皐平¹,内田徳之助¹,小池邦博¹、加藤宏朗¹、稲葉信幸¹, 板倉 賢²、齋藤 佑³、大久保晋³、太田 仁³

山形大院理工¹、九大総理工²、神戸大分子フォトセ³

Effect of deposition temperature on anisotropy of Nd-Fe-B magnet films made by modified two-step process

H. Nakajima (M1)¹, K. Furusawa (M2)¹, T. Uchida (M2)¹, K. Koike¹, H. Kato¹, N. Inaba¹,

M. Itakura², Y. Saito³, S. Okubo³, H. Ota³

Yamagata Univ.¹, Kyushu Univ.², Kobe Univ.³

<u>はじめに</u> 永久磁石では大きな最大エネルギー積(*BH*)_{max} が要求されている。この要請に対してハード磁性相の Nd₂Fe₁₄B 相とソフト磁性相の Fe 基合金相をナノスケールで交換結合させたナノコンポジット磁石^[1]が知られている. 我々は急峻な界面を得るために低温基板で堆積した後に UHV 環境で熱処理する2ステップアニール法を用いた Nd₂Fe₁₄B/Mo/Fe 系積層型ナノコンポジット磁石膜の研究^[2]を行っているが, *c* 軸の配向状態に乱れがあることが課題となっていた. 古澤等は、2 ステップ法による 150 nm 厚の Nd-Fe-B 磁石膜の作製において、3D シード層の導入と Nd-Fe-B 磁石膜の堆積温度 T_s の上昇(高温堆積温度: HDT)によって、Nd₂Fe₁₄B 粒子の *c* 軸の垂直配向状態を改善による垂直方向の保磁力の増大を報告している^[3]. 断面 TEM 観察から、この膜は 50 nm 程度の Nd₂Fe₁₄B 粒子から構成されており、基板側のシード層上に接した Nd₂Fe₁₄B 粒子の一部には *c* 軸が垂直配向したテクスチャが確認されているが、その上部の粒子の *c* 軸配向状態に乱れがあり、課題となっていた.本研究では、断面 TEM で観察された Nd₂Fe₁₄B 粒子サイズに近い 50 nm の膜厚の Nd-Fe-B 磁石膜を2 ステップ法で作製し、その *c* 軸配向状態と磁気特性に与える Nd-Fe-B 膜の堆積温度効果を評価する.

<u>実験方法</u> Mo(20 nm)/Nd-Fe-B(1 nm)/Nd-Fe-B(50 nm)/Mo(10 nm)薄膜は UHV スパッタ装置を用いて MgO(001)基板上に堆積した. Nd-Fe-B シードを 1 nm 厚として基板温度 660°Cで Mo 下地層上に形成 後, 堆積温度 $T_s = 300^{\circ}$ C (LDT と呼ぶ)または 450°C (HDT と呼ぶ)として Nd-Fe-B 層を結晶化しない 状態で堆積し, 室温で Mo 層で保護した. この試料を結晶化させるために赤外レーザーアニール装置^[4]を用いた. アニール温度 T_a の範囲は, 400°C $\leq T_a \leq 800^{\circ}$ C とした. 磁化曲線を SQUID と VSM を用いて測定した. 結晶構造を XRD で評価し, 膜表面形態を AFM で観察した.

<u>実験結果</u> Fig. 1 に $T_a = 700^{\circ}$ Cでアニールした LDT 膜と HDT 膜について 100 kOe 着磁して測定した 膜面直(OOP)と膜面内(IP)の減磁曲線を示す. それぞれの試料の OOP と IP 方向の残留磁化の差 ΔM_r は, LDT 膜では–6emu/cc であり, HDT 膜では+440 emu/cc と違いが見られた. また, XRD 測定で は LDT 膜に比べて HDT 膜の Nd₂Fe₁₄B (004)ピークの強度がわずかに大きくなっていた. よって堆積

温度を上昇させた HDT 効果として c 軸の垂直配向 分布が改善され,垂直磁気異方性の増大に寄与す ることが明らかとなった.

参考文献

[1] R. Skomski and J. M. D. Coey, Phys. Rev. B, 48, (1993) 15812.

[2] K. Kobayashi et al., J. Phys: Conf. Ser., 903, (2017) 012015.

[3] K. Furusawa *et al.*, Presented at JIM Autumn meeting, September 15, 2020.

[4] T. Uchida *et al.*, Presented at JIM Autumn meeting, September 15, 2020.



Fig.1 Demagnetization curves of (a) LDT and (b) HDT films annealed at 700°C. Directions of external magnetic field are out of plane of film (OOP) and in plane of film (IP).

Nd-Fe-B系焼結磁石の加熱・加圧の複合効果による磁区構造変化

田村 紘大, 江口 徳彦, 森本 祐治, 竹澤 昌晃, 松本 紀久* (九工大、*三菱電機)

Change in magnetic domain structure of Nd-Fe-B sintered magnets due to combined effect of heating and compressive stress

K. Tamura, N. Eguchi, Y. Morimoto, M. Takezawa, N. Matsumoto*

(Kyushu Inst. Tech., *Mitsubishi Electric Co.)

はじめに

本研究では、応力、熱、およびその複合負荷が Nd-Fe-B 系焼結磁石の結晶粒の磁区構造に与える影響 を明らかにするため、加熱と加圧を同時に行うこと のできる治具¹⁾を用いて、加熱のみによる変化箇所 と加熱と加圧の複合による変化箇所を比較した。

実験方法

観察した試料を Table.1 に示す。寸法は 3 mm 角で ある。表面を鏡面研磨し保護膜として Ta 膜を 5 nm、 反射防止膜として SiO₂ 膜を 409 nm(光源波長λの 3λ/4)成膜し、磁気 Kerr 効果顕微鏡を用いて試料表面 中央部を観察した。熱のみと、熱と応力の複合の 2 種類の負荷について、50 kOe でのパルス着磁後と負 荷の印加中、負荷からの解放後に磁区観察を行い、 その変化を比較した。加圧は磁化容易軸と平行に 55 MPa の圧縮応力をかけて行い、加熱は試料下部から 観察面が 100 ℃になるように制御した。

なお、加熱実験により試料表面の磁石特性の劣化 が起こることが分かったので、2 種類の負荷での観 察は同仕様の異なる磁石を用いて行った。

実験結果と考察

Fig.1 が加熱のみ、Fig.2 が加熱と加圧の複合効果 によって磁区構造が変化した結晶粒を示した磁区写 真である。赤で塗りつぶした箇所は、熱や応力の負 荷をかけたことにより磁化反転が起こり、減磁して いる結晶粒を示している。加熱のみによって磁区構 造が変化した箇所数に対して、加熱と加圧の複合に よって磁区構造が変化した箇所が多くなっているの が分かる。以上の結果をもとに次式で減磁率の評価 を行なった。

減磁率(%) = $100 \times \frac{$ 変化箇所のピクセル数×2 全体ピクセル数-傷ピクセル数

各負荷実験から撮影した計 12 視野の磁区画像から減磁率の平均値を算出したところ、熱のみによる 負荷では 0.48 %、熱と応力による複合負荷では 2.77 %であった。 2 つの負荷実験結果を比較すると、加熱負荷と加 圧負荷の複合効果によって減磁率が大きくなってい る。ただし、負荷によって減磁する結晶粒の個数は 観察視野によって異なるため、統計的に十分な観察 視野数とする必要がある。最適な観察視野数につい て、現在検討中である。

Table.1 観察した試料

残留磁束密度	保磁力	備考
<i>B</i> _r (T)	H _{cj} (kA/m)	
1.40~1.47	$875 \sim$	Dy 添加なし



(視野 1)

(視野 2)

Fig.1 加熱のみによる変化箇所の例



Fig.2 加熱と加圧の複合による変化箇所の例

謝辞

この成果は国立研究開発法人新エネルギー・産業 技術総合開発機構(NEDO)の委託事業未来開拓プロ グラム「次世代自動車向け高効率モーター用磁性材 料開発(JPNP14015)」の結果得られたものです。

参考文献

 M. Takezawa, K. Fukushima, K. Morimoto, and N. Matsumoto: The 21st International Conference on Magnetism (ICM 2018), N8-06 (2018)

Nd-La-Ce-Fe-B 系 *d*-HDDR 異方性磁石粉末における 結晶粒のコアシェル構造と保磁力

○新保 遼、山崎 理央、三嶋 千里 (愛知製鋼)

Core-shell grain structure and coercivity in Nd-La-Ce-Fe-B magnetic powders prepared by d-HDDR process \bigcirc R. Shimbo, M. Yamazaki, C. Mishima

(Aichi Steel Corp.)

緒言

近年、磁石市場では希土類資源の中国への偏在による資源供給リスクを回避するため、Dy, Tb 等の重希土 類だけでなく、軽希土類の Nd についても脱・省 Nd 化の流れが進んでいる。この市場動向から、Nd を置換 する元素として、資源的リスクが低くかつ地金相場の安い La, Ce が注目されているが、La₂Fe₁₄B 相および Ce₂Fe₁₄B 相の異方性磁場が Nd₂Fe₁₄B 相よりも低いため、保磁力 H_{cl}が低下してしまう。これに対し、Nd の一 部を Ce で置換しつつも、H_{cl}の低下を抑制する技術が報告された¹⁾。当該技術では液体の Nd₇₀Cu₃₀を Nd-Fe-B 系熱間加工磁石に浸透熱処理し、R₂Fe₁₄B 相(R:希土類元素)の結晶粒の中心部(コア)よりも外郭部(シ ェル)で Nd が濃化した組織を形成することによって、結晶粒表面からの磁化反転をしにくくし、H_{cl}の低下 を抑制している(コアシェル技術)。一方、我々は Nd-Fe-B 系合金に対し、高温・減圧水素雰囲気下での不均 化・再結合反応を利用した d(dynamic)-HDDR 処理²⁾を施すことで、結晶粒子径が 300 nm 程度と微細で、 Nd₂Fe₁₄B 相の c 軸の結晶方位が一方向に揃った集合組織を有する Nd-Fe-B 系異方性磁石粉末を得る技術を確 立しているが、先述のコアシェル技術を用いた省 Nd 化は同磁石粉末にも適用可能と考えられる。そこで本 研究では、d-HDDR 異方性磁石粉末において、コアシェル構造の形成が H_{cl}の低下抑制に及ぼす効果を評価す るために、同磁石粉末の Nd を La, Ce で置換した場合の金属組織および磁気特性について調査した。

実験方法

ストリップキャスト法で作製した Nd_{12.2}Fe_{bal}.B_{6.5}Nb_{0.2} 合金(alloy 1)、お よび、(Nd_{0.6}(La_{0.05} Ce_{0.95})_{0.4})_{12.5}Fe_{bal}.B_{6.5}Nb_{0.2} 合金(alloy 2)の2種類を準備 し、各々に水素解砕処理を行った後、< 212 µm に分級した。次に、そ れぞれの原料粉末を 780–840 °C、水素圧力 20–30 kPa の不均化反応条件 で *d*-HDDR 処理を施した。その後、これらの粉末に 6 wt.%の Nd-Cu-Al 系合金の微粉末を混合したものを 800–875 °C、高真空で浸透熱処理し、 評価用の磁石粉末を作製した。得られた粉末の磁気特性は VSM で、組 織は FE-SEM および STEM-EDX で評価した。

実験結果

Fig. 1 に alloy 2 から作製した浸透熱処理後の粉末断面の EDX 元素マ ッピング像を示す。結晶粒界近傍で Ce 濃度が低く、Nd 濃度が高いこ とから、*d*-HDDR 異方性磁石粉末においても先述のコアシェル構造が 形成可能であることが分かった。Fig. 2 に減磁曲線の比較を示す。 alloy 1 から作製した、La, Ce を含まずコアシェル構造を形成していない粉末 では(a)の減磁曲線が得られた。(a)の減磁曲線および Nd, La, Ce の各 R_2Fe_1AB 相の異方性磁場と飽和磁気分極 ³⁻⁵⁾を元に、alloy 2 の組成とな るよう単純に La, Ce で置換した場合の減磁曲線を見積もると、(b)の減 磁曲線となり磁気特性の低下が予想される。これに対し、alloy 2 から 作製し浸透処理を施した、コアシェル構造を有する試料粉末で得られ た減磁曲線を(c)に示す。(b)と(c)を比較すると、残留磁化 B_r がほぼ一致 している一方で、 H_{cl} は(b)の 1160 kAm⁻¹に対し、(c)では 1260 kAm⁻¹を 示していることから、*d*-HDDR 異方性磁石粉末においてもコアシェル 構造の形成による H_{cl} の低下抑制の効果が期待できることが分かった。

謝辞

本研究の一部は、トヨタ自動車株式会社先端材料技術部による技術支援の下で行われました。

参考文献

- 1) M. Ito et al., AIP Adv., 6 (2016) 056029.
- 2) 三嶋 千里ら, *日本応用磁気学会誌*, **24** (2000) 407.
- 3) R. Grössinger et al., J. Less-Common Met., 136 (1988) 367.
- 4) S. Hirosawa et al., J. Appl. Phys., 59 (1986) 873.
- 5) R. Grössinger et al., J. Less-Common Met., 124 (1986) 165.



Fig. 1. STEM image and EDX elemental maps of magnetic powder after infiltrating process prepared from alloy 2.



Fig. 2. Demagnetization curves of magnetic powder after infiltrating process. (a) Sample prepared from alloy 2. (b) Calculated curve for non-core-shell structure based on the elemental composition of alloy 2 and curve (a). (c) Sample prepared from alloy 1.

Nd-Fe-B 磁石の Dy 置換による保磁力増強効果

---原子論的モデル解析---

西野正理¹、早坂太志¹、宮下精二^{2,1}

(1物材機構、2東大物性研)

Effect of Dy substitution on the coercivity in Nd-Fe-B magnets ---atomistic model analysis---

Masamichi Nishino¹, Hiroshi Hayasaka¹, and Seiji Miyashita^{2,1}

(¹NIMS, ²ISSP, Univ. of Tokyo)

<u>イントロダクション</u>

ネオジム磁石 N-Fe-B は高い保磁力を持ち、モーターや発電機などに利用されている。このネオジム磁石は ジスプロシウム (Dy) 置換することで保磁力が増強されることが知られている。新規磁石材料設計には保磁 力の機構解明が重要であるが、その機構は依然として未解明の部分が多く、Dy 置換による増強効果の機構も よく分かっていない[1]。これら保磁力機構の微視的なスケールからの解明には、原子論に基づくモデル化と そのダイナミクスの解析が必要である。我々は、連続体モデルによるマイクロマグネティクス計算とは異な る方法論、すなわち、結晶格子を反映し、第一原理計算から求めたミクロな磁気相互作用を考慮した原子論 的スピンモデルを用いた方法論による保磁力解析を行ってきた。前回の講演では、表面の Nd 原子の磁気異 方性が変化(修飾) した場合、保磁力に与える影響について報告した[2]。本講演では、表界面の Nd 原子が Dy 置換された時の保磁力に与える効果について発表する。

保磁力における Dy 置換の効果

磁化ダイナミクスを記述する基礎方程式である Landau-Lifshitz-Gilbert(LLG)方程式に熱揺らぎの効果を取 り込んだ方法論(Stochastic LLG法[3])をこの系に適用して解析を行った。原子論的モデルのミクロなパラ メータは、主として第一原理計から見積もった値を用いている。図1のように(001)面の表面 Nd 層の n 層目 までの Nd 原子を Dy 原子に置換した場合に保磁力に与える効果を調べた。真空表面の場合(system A)とソフ ト磁性相と接触した界面が存在する場合(system B)について、Dy 置換した層の深さ(n)および温度の保磁力 への効果を調べた。室温付近では、表界面第一層(n=1)の置換では、保磁力増強は僅かだが、数層の置換では 数割の増強が見られた。n=1 では表面(界面)核生成が起こるが、n が数層の場合は内部からの核生成に変化 するため増強効果が強化されると考えられる。



図1(左)(001)面におけるnの定義、(中)磁化反転の様子、(右)室温付近でのnに対する保磁力の変化。

参考文献

- 1) S. Hirosawa, M. Nishino and S. Miyashita, Adv. Nat. Sci.: Nanosci. Nanotechnol. 8, 013002 (2017).
- 2) M. Nishino, I. E. Uysal, and S. Miyashita, Phys. Rev. B 103, 014418 (2021).
- 3) M. Nishino, I. E. Uysal, T. Hinokihara, and S. Miyashita, Phys. Rev. B 102, 020413(R) (2020)

原子論的モデルによる Nd-Fe-B 磁石の保磁力の角度依存性解析

早坂太志1、西野正理1、宮下精二2,1

(¹物材機構、²東大物性研)

Study on angular dependent coercivity in Nd-Fe-B magnets by an atomistic model approach Hiroshi Hayasaka¹, Masamichi Nishino¹, and Seiji Miyashita^{2,1} (¹NIMS, ²ISSP, Univ. of Tokyo)

<u>イントロダクション</u>

ネオジム磁石 N-Fe-B は重要な永久磁石であり、その高い保磁力のため、モーターや電子部品などに使用さ れている。しかし、保磁力の機構はよく理解されていないため、新規磁石材料設計にはその機構の解明が必 須である。保磁力はグレインおよびグレインバウンダリーの性質に依存するため、表界面での核生成やデピ ニング機構は保磁力発現に本質的である[1]。また、保磁力は外部磁場の角度にも依存するため、その角度依 存性の機構を明らかにすることは重要である。ネオジム磁石などにおいて、角度ゼロ度を基準として規格化 された反転磁場が観察されているが、多くの物質で Stoner-Wohlfarth 型(下に凸)や Kondorsky pinning 型(1/cos θ 型)からずれた角度依存性が示されている。我々は、保磁力機構の微視的なスケールからの解明 をめざして原子論に基づくモデル化とそのダイナミクスの解析を行ってきた。この方法は、連続体モデルに よるマイクロマグネティクス計算とは異なる方法であり、第一原理計算から求めたミクロな磁気相互作用を 考慮し、結晶格子を反映した原子論的スピンモデルを基礎とする。本研究では、この方法論を用いて保磁力 の角度依存性および温度依存性の解析を行った。

<u>角度依存保磁力</u>

原子論的モデルを基礎として Hard-soft-hard 磁石のプロトタイプモデル[2]を構築し(図1)、磁化ダイナミ クスを記述する基礎方程式である Landau-Lifshitz-Gilbert(LLG)方程式に熱揺らぎの効果を取り込んだ方法論 (Stochastic LLG 法[3])を適用して解析を行った。まず、異方的 Heisenberg model に対して、hard 磁石相およ び soft 磁石相の磁気パラメータを様々に変化させて核生成磁場、ピンニング磁場の角度依存性を調べ、その 一般的な性質を解析した。その結果をもとに Nd2Fe14B 磁石の原子論的モデルに対しても臨界磁場の角度依 存性の定量的評価を行った。温度効果により臨界磁場の大きさは減少し、下に凸性が増す傾向がある。ソフ ト磁石相の磁気相互作用や磁化が大きいほど、角度が大きいところで増加率が増える傾向があり、ソフト磁 石相の磁気異方性やソフト磁石相を挟んだ隣のハード磁石相の性質は角度依存性にあまり効かないことなど が分かった(図1)。その詳細について報告する。



図1(左) Hard-soft-hard 磁石のプロトタイプモデル、ピンニング磁場の角度依存性に対する、(中) 異方的 Heisenberg model における温度効果、(右) Nd2Fe14B 磁石モデルにおけるソフト磁石相の磁気相互作用の効果。

参考文献

- 1) S. Hirosawa, M. Nishino and S. Miyashita, Adv. Nat. Sci.: Nanosci. Nanotechnol. 8, 013002 (2017).
- 2) I. E. Uysal, M. Nishino, and S. Miyashita, Phys. Rev. B 101, 094421 (2020).
- 3) M. Nishino and S. Miyashita, Phys. Rev. B 91, 134411 (2015).

六方晶フェライト Ba(Fei-xScx)12O19 で発現する

ヘリカル磁性の回転角に関する研究

丸山健一1,田中誠也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,3一般財団法人総合科学研究機構)

Study on turn angle of helimagnetism appearing in hexagonal ferrite Ba(Fe_{1-x}Sc_x)₁₂O₁₉

K. Maruyama¹, S. Tanaka¹, S. Utsumi¹

R. Kiyanagi², A. Nakao³, K. Moriyama³, Y. Ishikawa³

(¹Suwa Univ. of Sci, ²J-PARC Center, Japan Atomic Energy Agency,

³Comprehensive Research Organization for Science and Society)

<u>はじめに</u>

M型六方晶フェライト 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。我々はこれまでに、中性子回折および磁化測定により Ba(Fe_{1-x}Sc_x)₁₂O₁₉ の温度 *T*-Sc 濃度 *x* の磁気相図を作製した。Ba(Fe_{1-x}Sc_x)₁₂O₁₉のヘリカルの回転角 ϕ_0 は、温度 *T* と Sc 濃度 *x* に 依存して顕著に変化する。本研究の目的は、中性子回折により Ba(Fe_{1-x}Sc_x)₁₂O₁₉で発現するヘリカルの回転角 ϕ_0 の温度 *T*および Sc 濃度 *x* の依存性を明らかにすることである。

<u>実験方法</u>

試料としてフラックス法により育成した Sc 濃度 x=0, 0.0576, 0.704, 0.735, 0.884, 0.112, 0.128, 0.153, 0.189, 0.193 の Ba(Fe_{1-x}Sc_x)₁₂O₁₉単結晶を用いた。J-PARC の材料・生命科学実験施設(MLF)の BL18 に設置 された TOF-Laue 単結晶中性子回折計 SENJU を用いて,様々な温度で中性子回折測定を行った。温度変化は 0.5 K/min の速度で行った。

<u>実験結果</u>

Sc 濃度 x ≥ 0.0704 結晶では、(001) 中性子回折パターンに $l=2(n\pm\delta)$ で指数付けされる磁気衛星反射が観測された。ここで、 δ は磁気 衛星反射の非整合性を表し 0-0.5 である。例えば x=0.153 結晶の 場合、測定温度全体 (<296 K) にわたって磁気衛星反射が観測さ れヘリカル磁性を取ることが示唆された。一方、x=0.193 結晶の 場合、 δ =0.5 の磁気散乱ピークと磁気衛星反射が<296 K で観測さ れた。ヘリカルの回転角 ϕ は、 ϕ =2 $\pi\delta$ の関係から計算できる。Fig.1 に各 Sc 濃度 x 結晶におけるヘリカルの回転角 ϕ の温度依存を示 す。同じ Sc 濃度では温度上昇に伴い ϕ は減少する傾向を示し、 90-110°で 0 になる閾値があることが示唆された。また、同温度で は Sc 濃度が高いほど ϕ は増加し x=0.193 で 180°に到達し、アン チフェロ成分を持つ磁性へと変化することが分かった。



the helix for each x-crystal.

<u>謝辞</u>

中性子回折実験は, J-PARC の 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。

第一原理計算による La-Co 共置換 M 型フェライトの Co サイト選択性の検証

小林龍哉¹、和氣剛¹、太田寛人²、池野豪一³、田畑吉計¹、中村裕之¹ (京都大¹、同志社大²、大阪府立大³)

Verification of Co site preference of La-Co-substituted M-type ferrite by first-principles calculation

R. Kobayashi¹, T. Waki¹, H. Ohta², H. Ikeno³, Y. Tabata¹, H. Nakamura¹

(Kyoto Univ.¹, Doshisha Univ.², Osaka Prefecture Univ.³)

<u>1.緒言</u>

M型フェライト(AFe₁₂O₁₉, A = Sr, Ba, Pb, …)は、その価格的優位性や化学的安定性から一般に広く使われている永久磁石材料である。La-Co共置換M型フェライト($A_{1-x}La_xFe_{12-y}Co_yO_{19}$)は、わずかな置換により保磁力が20%程度向上し¹⁾、高性能フェライト磁石としてモーター用途に用いられている。保磁力の向上は、Co²⁺による母材の一軸磁気異方性の向上によるが、近年の研究において、一軸磁気異方性の向上に寄与するのは5種類のFe³⁺サイト(2a, 2b, $4f_1$, $4f_2$, 12k)のうち、四面体配位の $4f_1$ サイトに入った Co²⁺だけであることが明らかになった²⁾。また、Co置換量が同程度にあるにもかかわらず、Sr-La-Co系よりも Ca-La-Co系の方が、保磁力が大きい³⁾。その違いは、Co²⁺のサイト占有率の違いによるものと考えられる。そこで本研究では、第一原理計算を用いて Co 置換 M型フェライトの Co²⁺置換サイトに依存したエネルギーを比較し、A サイト原子の違いによる Co²⁺のサイト選択性を検証した。

<u>2.計算方法</u>

5 つの Fe³⁺サイトそれぞれについて Co 置換した M 型フェライトの全エネルギーを、密度汎関数法に基づ く第一原理計算により求めた。計算には平面波基底と Projector Augmented Wave 法を用いた第一原理計算コー ド VASP⁴⁾を用いた。 $AFe_{12}O_{19}(A = Sr, Ca)$ の単位胞から 2×2×1 の超構造を作成し、その中の Fe 原子一つを Co 原子に置換したものを置換体とした。Co を 2 価にするために超構造単位胞あたり電子を 1 個追加し、原子位 置のみ構造緩和して計算を行った。k-mesh は 2×2×1、エネルギーカットオフは 400 eV とした。また、交換相 関汎関数は HSE06 を用いた。

<u>3.結果と考察</u>

DFT 計算によると、Co²⁺が 4f₁ サイトを占有する場合が最安定となることが判明した。4f₁ サイトを置換したときのエネルギーとの差 ΔE (= E - E(4f₁))は、2b、4f₂ サイトでは 1000 meV 程度と非常に大きく、Co²⁺はこれらのサイトをほぼ占有しないと考えられ、実験結果とよく符合する。2a、12k サイトでの ΔE は、A =Sr に比べ、A =Caでは上昇しており、同じ Co²⁺濃度において、A =CaではA =Sr よりも多くの Co²⁺が 4f₁ サイトに置換されると示唆される。そのため、同じ Co²⁺濃度で Co²⁺がより多く 4f₁ サイトを占める A =Caの方がA =Sr よりも一軸磁気異方性が向上し、Sr-La-Co系よりもCa-La-Co系の方がより保磁力が大きいことが説明される。

$\Delta E (\mathrm{meV})$	2 <i>a</i>	2 <i>b</i>	$4f_1$	$4f_2$	12 <i>k</i>
A = Sr	29.5	839.5	0	817.9	138.5
A = Ca	43.1	1627.7	0	945.3	173.6

<u>参考文献</u>

- 1) K. Iida et al., J. Magn. Soc. Jan. 23, 1093 (1999)
- 2) H. Nakamura et al., J. Phys.: Mater. 2, 015007 (2019)
- 3) Y. Kobayashi et al., JJSPPM **55**, 541 (2008)
- 4) G. Kresse and J. Furthmuller, Vienna Ab-initio Simulation Package, University of Wien, 2001

XAFS 測定による Cu_xCo_{1-x}Fe₂O₄の局所構造解析

中川貴、久松美佑、藤枝俊、清野智史、山本孝夫 (大阪大学)

Local structure analysis of Cu_xCo_{1-x}Fe₂O₄ by XAFS measurement Takashi Nakagawa, Miyu Hisamatsu, Shun Fujieda, Satoshi Seino, Takao A. Yamamoto (Osaka Univ.)

はじめに

CoFe₂O₄ 薄膜を基板との格子不整合によって歪ませると、磁気弾性効果により保磁力が大きく増大することが知られている¹⁾。そこで我々は Co²⁺を Cu²⁺で部分置換をすれば、ヤン・テラー効果に起因する歪みでバルク体でも保磁力を高められると考え、一般的な固相反応法で Cu_xCo_{1-x}Fe₂O₄ を合成した。その結果、置換量 x が x < 0.6 で立方晶の単相が、x > 0.7 で正方晶の単相が得られ、x = 0.6 ~ 0.7 で二相が共存することがわかった。また、Co を含有する正方晶単相の組成では CoFe₂O₄ よりも高い保磁力を示すことを明らかにした²⁾。しかし、各イオンがどのサイトにどれぐらい占有しているのか、また、イオン周辺の酸素の配置が歪んでいるのかなどは分かってはいない。そこで、単相で得られた Cu_xCo_{1-x}Fe₂O₄ の Cu、Co、Fe の K 吸収端 XAFS 測定を行い、サイト占有率や局所構造を解析した。

実験方法

 α -Fe₂O₃、Cu₂O、CoO を x = 0.0, 0.5, 0.8, 1.0 となるように秤量し、ボールミルで混合後、空気中 950°C で 10 時間焼成した。得られた試料を XRD、VSM で測定し、以前の試料と特性が変わらないことを確認した。得られた Cu_xCo_{1-x}Fe₂O₄の Cu、Co、Fe の K 吸収端 XAFS 測定は、あいちシンクロトロン光センターのビームラ イン BL11S2 で透過法により行った。

実験結果

XANES スペクトルによりどの組成でも Fe は+3 価、Co および Cu は+2 価であることがわかった。EXAFS 解析の結果、Co と Cu ともに A サイトの占有率は低く B サイトを占有する傾向があり、Cu の方がより B サ

イトに入りやすいことがわかった。各金属原子とB サイトの6個の酸素との原子間距離を右図に示す。x =0では、CoもFeもBサイトの酸素は正八面体となっ ている。一方で、x = 0.5の試料はXRDでは立方晶の 単相であり、CoとFeのBサイトは正八面体であっ た。これに対し、Cuの周りの酸素の原子間距離は c 面内の4つとc軸方向の2つとでは異なり、ヤン・テ ラー効果によりc軸方向に伸びた状態であることが わかった。Cuの置換量を0.8にすると、CoもFeも 正八面体がやや変形することが示唆された。すべて Cuで置換した場合(x = 1.0)は、Feの周囲の酸素のう ち c 軸方向の2つとの原子間距離は伸び、Cuと同様 に変形していることがわかった。また、Cuの置換量 が増加するにつれて、Cu周囲の正方晶歪が大きくな っていることが示された。



Fig. Atomic distance from metal to oxygen in B site determined by EXAFS analysis.

<u>参考文献</u>

- 1) H. Onoda, H. Sukegawa, E. Kita, H. Yanagihara, IEEE Trans. Magn. 54 (2018) 2502104.
- 2) M. Hisamatsu, S. Fujieda, S. Seino, T. Nakagawa, T. A. Yamamoto, IEEE Trans. Magn. 57 (2021) 2100804.

Mn_xCoFe_{2-x}O₄のヤーン・テラー効果による結晶歪みと磁気特性の変化

柏木春穂、藤枝俊、清野智史、中川貴 大阪大学 大学院工学研究科

Crystal distortion due to Jahn-Teller effect and change in magnetic properties of Mn_xCoFe_{2-x}O₄ H. Kashiwagi, S. Fujieda, S. Seino, T. Nakagawa Graduate School of Engineering, Osaka University

はじめに

CoFe₂O₄薄膜を基板との格子不整合によって歪ませると、磁気弾性効果により磁気異方性が増大する¹⁾。また、基板を用いずに歪みを導入するため、CoFe₂O₄ 微粒子のCoをMnで部分置換してヤーン・テラー効果に起因する格子歪みを誘起すると磁気異方性が増大し、それに伴って保磁力も増加する²⁾。バルク状態のMn_xCoFe_{2-x}O₄においても同様の効果が期待される。そこで、本研究では、固相法で作製したMn_xCoFe_{2-x}O₄のヤーン・テラー効果に起因する格子歪みと磁気特性の変化を明らかにする。

実験方法

 α -Fe₂O₃、Mn₂O₃およびCoO粉末を出発原料として用いた。 混合粉をペレット化したのち、900 $^{\circ}$ Cの大気雰囲気下で50 時間保持し、固相反応法によりバルク状態のMn_xCoFe_{2-x}O₄ を作製した。結晶構造を調べるため、Cu-Ka線でのX線回 折測定を行った。磁化測定は振動試料型磁力計を用いた。

実験結果

 $Mn_xCoFe_{2-x}O_4$ のX線回折パターンをFig.1に示す。x = 0.0 および 1.0 の試料において立方晶の回折パターンが見られ た。また、x = 2.0の試料においては正方晶の回折パターン が見られた。いずれも単相の試料であった。一方、中間組 成である x = 1.6 の試料において、立方晶および正方晶の回 折パターンが同時に表れた。すべての組成において、立方 晶と正方晶以外の異相は見られなかった。X 線回折パター ンから算出した格子定数のMn置換量依存性をFig.2に示す。 立方晶相において、xの変化による a 軸の格子定数の変化は 小さかった。一方、正方晶相においては a 軸および b 軸が 縮小し、c軸は伸長した。この正方歪み c/a は、立方晶と正 方晶の二相共存状態であるx=1.2より徐々に増大し、x=2.0 で最大値 1.15 を示した。この歪みは Co を Mn で部分置換 したことで生じたヤーン・テラー効果に起因する。また、 磁化測定の結果より、x=1.6の試料は、立方晶単相を示すx =0.0と比較して大きな保磁力を示した。つまり、バルク状 態においても、保磁力の増加はヤーン・テラー効果に起因 する格子歪みと密接に関係することが明らかになった。

参考文献

- 1) H. Onoda et al., IEEE Trans. Magn. 54 (2018) 2502104
- 2) S. Yamada et al., IEEE Trans. Magn. 56 (2020) 6702618



Fig. 1 X-ray diffraction patterns of $Mn_xCoFe_{2-x}O_4$ with x = 0.0, 1.0, 1.6 and 2.0.



Fig. 2 Mn concentration x dependence of lattice constants.

Zr11.5Fe53Si35.5 組成の新規ハード磁性化合物

山本 浩之, 上田 和浩, 北川 功 (日立製作所 研究開発グループ) Novel hard magnetic compound with Zr_{11.5}Fe₅₃Si_{35.5} composition. H. Yamamoto, K. Ueda, and I. Kitagawa (Hitachi, Ltd. Research & Development Group)

研究背景

xEV 等の電動化アプリケーションの拡大に伴い高性能希土類磁石のニーズが高まる中、将来の希土類元素 の供給量不足の懸念から、希土類レス・希土類フリーの新磁石化合物探索も重要な研究である。Zr-Fe-Siの三 元系では多数の三元化合物が報告されており¹⁾、最近では ThMn₁₂構造の ZrFe₁₀Si₂ 相や²⁾、六方晶 Zr(Fe,Si)₂ ラーベス相が高い磁気異方性を有することが報告されている³⁾。本研究ではこのように多元化合物の出現が 期待される Zr-Fe-Si の三元系に着目し、新たな希土類フリー化合物の発見を目的に材料探索実験を行った。

実験方法

本研究では、Fig.1の三元組成プロットに示すように、Fe: 35~80mol%の組成範囲で合計 45 試料を作製し た。合金試料は Ar 雰囲気中のアーク溶解を用いて作製した。得られた合金を管状炉に導入し、200 Pa の Ar ガスフロー雰囲気において 1050℃×24h の熱処理を実施した。熱処理後の合金試料を破砕し、数 mm サイズ の小片を樹脂含侵・研磨した後、SEM と極 Kerr 顕微鏡により組織観察を実施した。また、合金試料を 75µm 以下の粉末状に粉砕し、それを用いて VSM と熱磁気天秤による磁気特性評価および XRD による結晶構造評 価を行った。さらに詳細な結晶構造評価として TEM を用いた電子線回折評価を行った。

実験結果

Fig.2に典型的な試料の特性評価結果を示す。Fig.2(a)(b)より合金中にメイズ状の磁区模様を示す領域が確 認され、Zr:11.5 at%、Fe:53.0 at%、Si:35.5 at% 組成のハード磁性相(相 X)が存在すると判った。この 合金の磁気特性は Fig.2(c)に示すように保磁力のあるヒステリシス曲線を示し、熱磁気天秤の測定から相Xの T。は 260℃であると判った。また、相Xに相当する XRD ピークパターン(Fig.2(d)赤矢印)は、既存データ ベースに登録されている粉末 XRD パターンでは整合できなかった。そこで合金中から FIB で抽出した微小結 晶を電子線回折で分析した結果、相Xは直方晶系と判明し、過去に報告のない新規磁性化合物と結論付けた。 参考文献

7r

(仕込み組成)

- 1) C.P. Wang et. al., Journal of Phase Equilibria and Diffusion, Vol. 34, No.4, 277 (2013).
- 2) A.M. Gabay et. al., Journal of Alloys and Compounds, 657, 5, 133 (2016).
- D. Goll et al, Physica Status Solidi Rapid Research Letter, 12, 1700221 (2017). 3)



Fig.2. 典型試料の(a)極 Kerr 顕微鏡像、(b)BSE 像と EDX 分析、 (c)*M-H*曲線、(d)XRD パター

「磁気と光の研究」の進展と将来

太田憲雄

(筑波大学)

Advance and Future of Magnetics & Optics Research

Norio Ota

(University of Tsukuba)

「磁気と光がクロスする分野」は学会創設以来の主要分野のひとつです。さらに 1991 年 MORIS 国際会議を 設立し 30 年余進展してきました。今回の講演では、今後につながるトピックスをいくつか紹介したいと思い ます。新たなデバイスの創成につながれば幸いです。

1,磁区拡大による再生

磁気デバイスでは、磁区が微小になるにつれ再生 信号が微弱になるが、特別の磁気再生層を付加して 増幅する工夫もありうる。光磁気記録では記録磁区 を再生層に熱転写し、磁区を拡大して大幅に信号を 増幅できた。磁区拡大再生(MAMMOS、図1)で ある¹⁾。今後 MRAM などはもとより磁気ロジック や磁気センサーにも応用できそうである。

2, 超高速磁化反転

磁化が反転する時間は極めて速い。垂直磁化膜の 反転をフェムト秒レーザで観察するとピコ秒よりも 高速だった(図2)²⁾。今後、半導体デバイスと同 等以上の高速素子が実現出来る可能性がある。磁気 なので(演算+記録)の利点も期待できる。

3, 分子磁性と赤外スペクトル

現在の磁気デバイスはいずれ体積密度限界に達す る。将来、磁性をもつ分子が突破口になるかもしれ ない。筆者はここ10年、炭素分子の磁性を探って きた。 炭素5員環を含むグラフェン分子は磁性を もち、分子振動に伴う特有の赤外スペクトルを有す ることを量子化学計算で求めた。さらに意外にも星 間の天文スペクトルと一致することを初めて確かめ た³⁾(図3)。 天文分野でも驚きとなった。将来は スピン状態を用いた量子演算素子も可能かもしれな い。



図1光磁気記録での磁区拡大再生(MAMMOS)。





炭素磁性分子の分子振動と天文スペクトル。

参考文献

図 3

- 1) H. Awano et al.: Appl. Phys. Lett., 69, 4257 (1996).
- 2) J. Hohlfeld et al.: Phys. Rev. B, 65, 012413 (2001).
- 3) N. Ota et al.: J. Magn. Soc. Jpn., 45, 41 (2021)

磁性多層膜,規則合金膜の垂直磁気異方性と記録媒体への応用

岩田 聡

(名古屋産業科学研究所)

Perpendicular Magnetic Anisotropy of Multilayers and Ordered Alloy Films and Their Application to

Recording Media

Satoshi Iwata

(Nagoya Industrial Science Research Institute)

<u>はじめに</u>

学習院大学で開催された第1回の応用磁気学会に修士1年の学生として参加して以来,44年が過ぎようとしているが,筆者はバブルメモリ材料,光磁気記録材料,磁気記録材料,スピントロニクス材料と、用途・目的を変えながら、一貫して垂直磁化膜の研究に関わってきた。本講演では、CoPtなど、貴金属-3d 遷移金属系の多層膜,規則合金膜から近年のL10型 MnAl, MnGa 膜まで,それらの垂直磁気異方性とKr⁺イオン注入によって,規則相を壊すことによるビットパターンの作製について概説する。

磁性多層膜、規則合金膜の垂直磁気異方性

磁性多層膜,人工格子の研究は,1980年代に入ると盛んに行われるようになっていたが,1985年にCo/Pt多層膜が 大きな垂直磁気異方性を示すことが発表されると¹⁾,貴金属と3d遷移金属の多層膜の研究が大きな盛り上がりを見せ た。筆者も真空蒸着装置を改造して,多層膜の作製に取りかかったが,1990年前後からは、3元スパッタ装置とMBE 装置による様々な多層膜,超薄膜,合金膜の作製に取り組んだ。本講演では、それらの中から、いくつかのトピックを 紹介する。MgO 基板上に結晶配向の異なる Co-Pt 膜を MBE 装置で成膜したところ、MgO(111)基板上の CosoPtso 膜 が大きな垂直異方性を示すことが見出された²⁾。この膜は、CoとPtの最密面が1原子層ずつ面直方向に積層したL11 構造であることが X 線による逆格子マップ測定から確かめられた。Cu-Pt 二元合金の相図に存在する L11 相が、非平 衡な Co-Pt 合金膜として得られたのは、たいへん興味深い。新しい光磁気記録材料を探索する過程で、MnPtsとCrPts が大きな磁気光学効果を示すことを見出したが、石英ガラス上の CrPts 膜は、立方晶の L12 相であるにも関わらず垂 直磁化を示した。CrPt3 膜を規則化するために熱処理する過程で、膜に引張応力が働き、磁歪の逆効果により垂直異 方性が誘導されていることが分かった³⁾。

イオン照射によるビットパターン形成

CrPt3 膜は、L12 相ではフェリ磁性の垂直磁化膜であるが、これに Kr⁺などのイオンを打ち込むと、規則配列が壊れて 磁性を失う。CrPt3(20nm)膜に 30 keV の Kr⁺イオンを 2×10¹⁴ ions/cm² 注入すると、磁性を失うことが確認され、これを 利用したビットパターンの作製を行なった。CrPt3 膜上にレジストを塗布し、EB 露光でドットパターンを形成後、イオン 注入装置で Kr⁺イオンを照射することで、100nm 径前後の磁気パターンを作製することができた⁴⁾。次いで、規則相に おいて垂直磁化、不規則相で非磁性となる材料として、L10相の MnAl 膜と MnGa 膜を取り上げ、イオン照射によるビッ トパターンの作製を行なった。また、Si 基板上に(001)配向の L10相の MnGa 膜を成長させるための下地層について 様々な検討を行ない、角形比の良好な垂直磁化膜を得るための条件を明らかにした。

おわりに

過去40年間ほどの間は、貴金属-3d遷移金属の人工格子や超薄膜の垂直異方性の研究から始まって、様々な新し い磁性薄膜材料が次々と開発される大変、ホットな時代であった。このような環境に身を置けたことは、筆者にとって 大変幸運なことであった。今後も磁性材料、スピントロニクスの分野が日本磁気学会とともにますます発展することを願 っています。

参考文献

- 1) P.F. Carcia, A. D. Meinhaldt and A. Suna: Appl.Phys.Lett. 47, 178 (1985).
- 2) S. Iwata, S. Yamashita, and S. Tsunashima : IEEE Trans. Magn., 33, 3670 (1997)
- 3) T. Kato, H. Ito, K. Sugihara, S. Tsunashima, and S. Iwata: J. Magn. Magn. Mat., 272-276, 778 (2004).
- 4) T. Kato, S. Iwata, Y. Yamauchi, S. Tsunashima : J. Appl. Phys., 106, 053908-1 (2009).

研究の三色旗:自由、寛大、洞察

A Tricolor Flag of Research: Freedom, Forgiveness, and Insight

宗片 比呂夫 Hiro Munekata (東工大・未来研 FIRST, Tokyo Institute of Technology)

「III-V 族磁性半導体の創製とスピンフォトニクスの研究」が日本磁気学会の令和2年度業績賞・フェローに 選ばれた。思いがけないことで、とても驚きました。誠にありがとうございます。その少し前、2020年4月 号「まぐね」には、スピンの世界に飛び込んだ若き頃の僕(のちに私)が出会ったさまざまな人や事象につ いて書いた文を掲載いただいた。そこで、この文のオンライン講演版をここで行なおうと思う。「まぐね」論 説記事の出だしは以下で始まる。

あれは良く晴れた早春週末の午前中だったと思う。間借りしていたウェストチェスター郡の森の中の一軒 家の二階でシャワーを使いながら、速報論文 "Carrier-concentration-induced ferromagnetism in PbSnMnTe"[1] を頭の中で復習していた。「半導体っぽい材料を強磁性に出来るならば、強磁性を電界で制御できる素材やデ バイスが作れるかも、僕発のオリジナル発想として、強豪ひしめく高品質結晶成長研究分野から抜け出せる 弾になるかも。」という考えが頭にひらめいた。(以下、省略)

論説では、これに続いて、III-V族化合物磁性半導体の創造 [2-4] へと駒を進めた時のこと、さらには、 日本の大学に移って考えた研究課題や仲間とともに行ってきた研究を振り返って、研究者としての自分を受 け入れてくれた土壌には、常に、自由、寛大、洞察、というものがあったことに気がついた、と結んでいる。

本講演では、前段落に述べた事柄を縦糸として、具体的な実験データ、すなわち、磁性半導体の光励起現 象 [5-7] とスピンフォトニクス[8,9] の実験研究、を横糸にしながら、研究構想の根底をなした、固体物理学 と応用物理学的な視点について触れる。最後に、コロナ禍中での実験 - 円偏光発光素子 - について報告する。

以下は英訳です。ご掲載いただければありがたく。

"Creation of III-V-based magnetic semiconductors and the studies of spin-photonics" has been awarded as the MSJ Achievement Award of FY2020 with the privilege of MSJ Fellow. HM is very grateful and deeply honored for this award: it is a big surprise for me. Before it happened, my essay was published in the April issue of Magnetics Jpn. 2020, in which people and events that HM encountered at the stage of scientific embryo were described. Taking opportunity of Symposium by MSL fellows in the 45th Annual Conference on Magnetics in Japan, HM wishes to present an on-line version of the essay. It begins like this:

I suppose that was in the mild, weekend morning in early spring. On the second floor of a colonial-style house in the woods of Westchester county, I was taking a shower and reviewing in my head a technical report "Carrier-concentration-induced ferromagnetism in PbSnMnTe [1]". It occurred to me suddenly if I had been able to make semiconductors ferromagnetic, it would have been possible to create materials and devices whose ferromagnetism could have been controlled by an electric field. This would have been the way to pull myself out from the land of high-quality crystal growth where brilliant animals were jostling. (Omitted below.)

This is followed by a story of creating magnetic III-V-based compound semiconductors [2-4], and furthermore, some thoughts concerning research targets after HM joining academia in Japan and resultant experimental works with colleagues. Through these recollections, HM has supposed that freedom, forgiveness, and insight are the soils receptive of researchers, including myself.

Within the context of recollection, my own research concepts in view of both solid-state physics and applied physics are discussed, referring some experimental results, namely, photo-excitation of magnetic semiconductors [5-7] and spin-photonics [8,9]. Very recent works in the period of COVID-19 on circular polarized light-emitting diodes will briefly be reported before ending.

Reference

- 1) T. Story, R.R. Galazka, R.B. Frankel, and P.A. Wolff, Phys. Rev. Lett. 56, 777 (1986).
- 2) H. Munekata, H. Ohno, S. von Molnár, A. Segmüller, L.L. Chang, and L. Esaki, Phys. Rev. Lett. 63, 1849 (1989).
- 3) H. Munekata, H. Ohno, R.R. Ruf, R.J. Gambino, and L.L. Chang, J. Cryst. Growth 111, 1011 (1991).
- 4) H. Ohno, H. Munekata, T. Penney, S, von Molnar, and L.L. Chang, Phys. Rev. Lett. 68, 2664 (1992).
- 5) S. Koshihara, A. Oiwa, M. Hirasawa, S. Katsumoto, Y. Iye, C. Urano, H. Takagi, and H. Munekata, Phys. Rev. Lett. **78**, 4617 (1997).
- 6) Y. Hashimoto, S. Kobayashi, and H. Munekata, Phys. Rev. Lett. 100, 067202 (2008).
- 7) Y. Hashimoto and H. Munekata, Appl. Phys. Lett. 93, 202506 (2008).
- 8) H. Munekata, S. Ogawa, K. Michihiro, K. Nishibayashi, and N. Nishizawa, Jpn. J. Appl. Phys. **59**, SEEA05 (2020).
- 9) N. Nishizawa, K. Nishibayashi, and H. Munekata, Proc. Nat. Academy Sci. USA 114, 1783 (2017).