

交番磁気力顕微鏡を用いた永久磁石の直流磁場イメージング

三浦 健太、田中 花道、松村 透、齊藤 準
(秋田大理工)

DC magnetic field imaging of permanent magnets using an alternating magnetic force microscopy

K. Miura, H. Tanaka, T. Matsumura, H. Saito

(Akita Univ.)

はじめに 磁気力顕微鏡は磁性体試料の磁極を発生源とする直流磁場に対して、磁場勾配を検出することで磁場そのものを検出する他の観察手法と比較して、磁場勾配の伝達関数が高波数域で磁場の伝達関数より低減衰であることを利用して高い空間分解能を得ている。我々は試料表面近傍の磁気力の単独検出を可能にした交番磁気力顕微鏡 (Alternating Magnetic Force Microscopy; A-MFM) に、磁場計測方向を一定に保つことができる超常磁性探針を組み合わせることで、高い空間分解能での直流磁場勾配計測を実現している。しかしながら得られる磁場勾配像は、解釈が容易な磁場像と比較して定量性に乏しいことが指摘されてきた。本報告では、我々が最近提案した、磁気力顕微鏡の磁場勾配像から磁場方向と磁場値が定まった磁場像を得る手法¹⁾を永久磁石に適用した結果を述べる。

実験方法 NdFeB 磁石試料を、超常磁性探針を用いた A-MFM により観察した。超常磁性探針は Co-GdO_x 超常磁性薄膜を Si 探針母材に 100 nm 成膜して作製した。A-MFM 観察時は永久磁石試料直上の超常磁性探針を磁場分布が明らかな空芯コイルを用いて交流励磁し、同時に超常磁性探針には永久磁石試料からの直流磁場に加えて一様な直流磁場を空芯コイル直下の電磁石で適宜印加した。ここで超常磁性探針は空芯コイルの中心に設置した。A-MFM 像 ($\partial^2(H_z^{dc} H_z^{ac}) / \partial z^2$ 像) から、空間周波数フィルターを用いて磁場像 (H_z^{dc} 像) や磁場勾配像 ($\partial^2 H_z^{dc} / \partial z^2$ 像) を抽出した。ここで z 方向は磁石試料を乗せた試料ステージに垂直な方向である。

実験結果 Fig.1(a)に電磁石からの外部直

流磁場 0 Oe のときの A-MFM 像

($\partial^2(H_z^{dc} H_z^{ac}) / \partial z^2$ 像)、(b)に(a)から抽出した $\partial^2 H_z^{dc} / \partial z^2$ 像、(c)、(d)に(b)を z 方向に 2 回積分して求めた磁場勾配積分像 (H_z^{dc} 像) とその磁場極性像、(e)、(f)は(a)から抽出した H_z^{dc} 像とその磁場極性像、(g)、(h)は外部直流磁場 600 Oe のときの A-MFM 像から抽出した H_z^{dc} 像とその磁場極性像を示す。観察範囲は 5 μm 角である。ここで磁場極性像は H_z^{dc} 信号の正負を示している。図に見るように、(a)の A-MFM 像は(b)の A-MFM 像から抽出した $\partial^2 H_z^{dc} / \partial z^2$ 像とほぼ同様であることから、A-MFM 像の信号は主に磁場勾配信号から構成されていることがわかる。(b)を z 方向に 2 回、積分することにより(c)の H_z^{dc} 像を得ることができるが、磁場勾配信号には磁場の一定値は含まれないため積分定数を別途定める必要がある。一方 A-MFM 像から抽出した(e)の H_z^{dc} 像は磁場の一定値を含む。図に見るように、(e)の H_z^{dc} 像は、積分により求めた(c)の H_z^{dc} 像と空間的な変化は同様であるが、磁場極性像のゼロ磁場線の位置は異なっている。さらに一様な直流磁場 600 Oe を試料空間に印加した(g)の H_z^{dc} 像では、空間的な変化は(e)の H_z^{dc} 像と同様であるが、ゼロ磁場線の位置は外部印加した直流磁場により変化している。探針が検出する磁場は試料から発生する磁場が -600 Oe のときに外部印加磁場の 600 Oe と相殺してゼロになるので、(g)の H_z^{dc} 像のゼロ磁場線は磁石試料からの H_z^{dc} が -600 Oe の場合に対応している。以上より、空芯コイルと超常磁性探針を用いて観察した A-MFM 像は、磁場勾配像にほぼ対応しており、今回の磁場像の抽出により、これまで検出が困難であった磁場の一定値成分も加えて磁場をイメージングできることがわかった。この結果より、磁気力顕微鏡を用いた磁場イメージングの可能性を示すことができたと考えている。これらの詳細は学会で報告する。

参考文献 1) 齊藤 準、三浦 健太、他：第 45 回 日本磁気学会学術講演概要集 (2021)

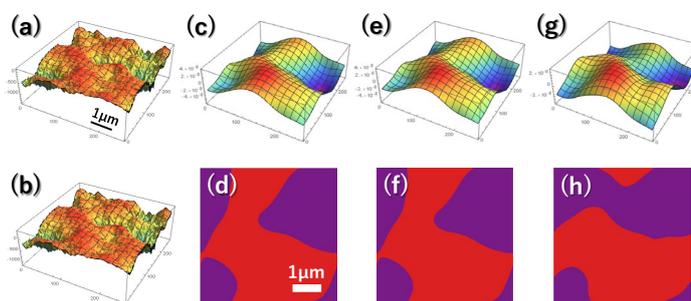


Fig.1 A-MFM image and transformed magnetic field images and their magnetic field polarity images.

交番磁気力顕微鏡を用いた Co-GdO_x 超常磁性探針の マイクロ波磁場応答性の評価

佐藤 駿介、松村 透、齊藤 準
(秋田大)

Evaluation of magnetic field response of Co-GdO_x superparamagnetic tip in microwave frequency region
by alternating magnetic force microscopy

S. Sato, T. Matsumura, H. Saito
(Akita Univ.)

背景 近年、磁気記録媒体にマイクロ波磁場を印加して磁気共鳴を発生させることで磁気記録ヘッドからの記録ビット書き込みを容易にするマイクロ波アシスト型の高記録密度・磁気記録装置が開発されている。磁気記録媒体の性能向上には磁気共鳴のイメージングによる評価が有用となる。このため我々は、これまでに開発した交流磁場を検出可能な交番磁気力顕微鏡(A-MFM)を用いることで、強磁性共鳴イメージングが可能なシステムの開発を進めている。強磁性共鳴の検出には、A-MFM 中で磁気記録媒体を高周波励磁するマイクロ波磁場源および高周波磁場を検出できる磁性探針の開発が必要になる。本研究ではマイクロ波磁場源として開発を進めている導波管スロットアンテナを用いて、高周波数まで磁場応答が期待される Co-GdO_x 超常磁性探針のマイクロ波磁場応答性を周波数 12~18 GHz の範囲で A-MFM を用いて評価した。

実験方法 A-MFM を用いて超常磁性探針が高周波磁場により受ける磁気力勾配 F'_z を評価するためには、検出周波数を A-MFM が検出できる周波数まで下げる必要がある。超常磁性探針の磁化 m は探針に印加される磁場 H に比例する ($m = \chi H$) ので、マイクロ波磁場を低周波数で振幅変調することで、

$$(H = H_0^{ac} (1 + \alpha \cos(\omega_L t)) \cos((\omega_H t)))$$

$$F'_z = \partial^2 (m \cdot H) / \partial z^2 \text{ より、 } F'_z(\omega_L) = \alpha m (\partial^2 H_0^{ac} / \partial z^2) \cos(\omega_L t),$$

$F'_z(2\omega_L) = (\alpha^2 / 4) m (\partial^2 H_0^{ac} / \partial z^2) \cos(2\omega_L t)$ となり低周波数の磁気力が発生する。ここで、 $m = |m|$ 、 $H_0^{ac} = |H_0^{ac}|$ である。この磁気力により A-MFM では探針をその共振周波数近傍で励振した場合、加振周波数 ω_d 付近に側帯波のスペクトル ($\omega_d \pm \omega_L$, $\omega_d \pm 2\omega_L$) が発生する。

Fig.1 に一例として、 $\alpha = 0.9$ 、 $\omega_H / 2\pi = 12$ GHz、 $\omega_L / 2\pi = 89$ Hz のときの超常磁性探針の探針振動の ω_d 付近の振動スペクトルを示す。探針のマイクロ波磁場応答性を、側帯波のバックグラウンドノイズからの強度を測定することで評価した。

実験結果 超常磁性探針は導電性を有するため、マイクロ波磁場と同時に発生するマイクロ波電場も検出するので、磁場と電場の切り分けが必要になる。このため、電場のみを検出する Pd 探針も用意し、また導波管スロットアンテナのスロット上にガラス基板と、探針と同時に作製した Co-GdO_x 超常磁性薄膜を設置し、超常磁性薄膜の磁場応答に伴う磁場の増強効果も合わせて検討した。Fig.2 に探針振動の側帯波 ($\omega_d \pm \omega_L$) 強度のスロット端からの位置 (x) 依存性を示す。ここで、(a)は Pd 探針、(b),(c)は Co-GdO_x 超常磁性探針を用いた結果であり、(a),(b)ではスロット上にガラス基板、(c)では Co-GdO_x 超常磁性薄膜を設置した。ここではスロットアンテナの端部を短絡させてスロットに定在波を発生させた。図に見るように、側帯波強度は管内波長で変化しているものの、周波数 ($\omega_H / 2\pi$) が 15 GHz の場合には、ガラス基板の代わりに超常磁性薄膜を置くことで側帯波強度が増加していることから超常磁性探針および超常磁性薄膜はマイクロ波磁場に反応していることがわかる。これらの詳細は学会で報告する。

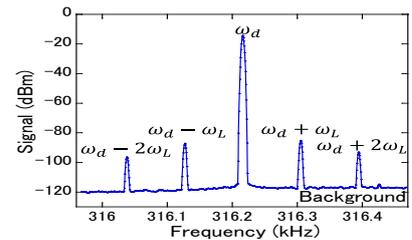


Fig.1 Spectrum of mechanical oscillation of Co-GdO_x tip under amplitude modulated microwave.

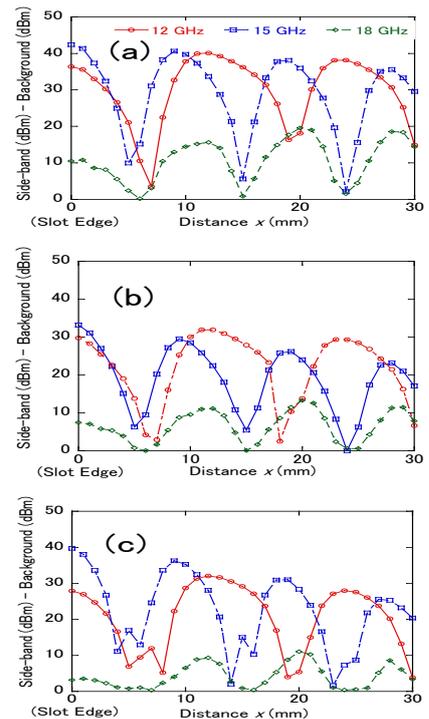


Fig.2 Position dependence of side-band spectrum intensity. [(a) Pd tip and glass substrate, (b) Co-GdO_x tip and glass substrate, (c) Co-GdO_x tip and Co-GdO_x film.]

交番磁気力顕微鏡により観察する単磁区微粒子のシミュレーションによる磁化容易軸方向の解析

村上 幸汰、高田 愛香、松村 透、齊藤 準

(秋田大)

Simulation study of analysis of magnetic easy axis direction of single domain particles for magnetic imaging by alternating magnetic force microscopy

K. Murakami, A. Takada, T. Matsumura, H. Saito

(Akita Univ.)

はじめに

研究グループが開発した交番磁気力顕微鏡 (Alternating Magnetic Force Microscopy; A-MFM) は、単磁区微粒子 1 個から発生する漏れ磁場の検出が可能であり、超常磁性探針を用いることで磁場の計測方向の精度の高い計測が可能である。一軸磁気異方性を有する単磁区微粒子の磁化反転挙動は磁化容易軸と印加磁場とのなす角度によって変化するので、その磁化容易軸の方向を把握することは重要である。本研究では、A-MFM により観察する基板上の単磁区微粒子において基板に垂直方向の磁場の勾配像から、磁化容易軸の方向の推定方法をシミュレーションにより検討した。

方法および結果

単磁区微粒子を平坦な基板上に置いて交番磁気力顕微鏡を用いて観察することを想定して、Fig.1 に示したモデルで、単磁区微粒子の形状を球形と仮定して、基板に垂直方向の磁場の勾配 $\partial^2 H_z / \partial z^2$ を計算した。ここでは、単磁区微粒子の中心を xy 平面の原点におき、磁化容易軸を向いた \mathbf{M} と基板に垂直方向の z 方向とのなす角を θ とした。探針は探針試料間距離が一定になるように図のように走査し、探針が検出する $\partial^2 H_z / \partial z^2$ を微粒子表面の磁極からの寄与を足し合わせて計算した。

微粒子の表面は、図のように \mathbf{M} に対して回転対称になるように球の経度と緯度方向に 10° 刻みで分割して、磁場の発生源である磁極を離散化し、各点の磁極量は磁極密度 ($\sigma_m = \mathbf{M} \cdot \mathbf{n}$) に各点が占める表面積を重み付けして求めた。ここで \mathbf{n} は微粒子表面の法線ベクトルである。図の赤点、青点は各々、磁極密度が正 ($\sigma_m > 0$) および負 ($\sigma_m < 0$) の点に対応している。

Fig.2 に単磁区微粒子の磁化容易軸を向いた \mathbf{M} と基板の法線とのなす角 θ を変化させて計算した $\partial^2 H_z / \partial z^2$ 像およびその空間周波数スペクトルの実数部分と純虚数部分を示す。単磁区微粒子の中心を xy 平面の原点にとった場合、磁場勾配像は点対称を示す、 \mathbf{M} の垂直成分による偶関数の像と、 \mathbf{M} の傾斜方向に奇関数となる、 \mathbf{M} の面内成分による像の合成となる。複素フーリエ変換を用いた場合、前者は実数スペクトル、後者は純虚数スペクトルとなる。空間周波数

スペクトルに見るように、 \mathbf{M} の傾き角 θ の増加に伴い、実数スペクトルのみから、実数スペクトルが減少し純虚数スペクトルが増加し、 θ が 90° になったときに、純虚数スペクトルのみになることがわかる。これより実数スペクトルと純虚数スペクトルの割合から θ の推定が可能になると考えられる。学会では θ が未知の像に対して、信号変換により仮想的に θ を変化させた像を計算し、像が点対称あるいは、奇関数になる傾き角 θ を求めることで磁化容易軸の方向 θ を推定する方法を検討した結果について述べる予定である。

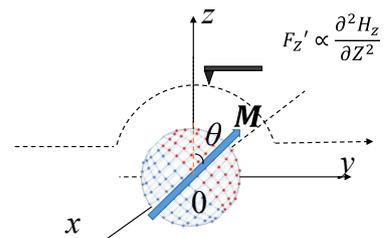


Fig.1 Calculation model of A-MFM image for single domain particle.

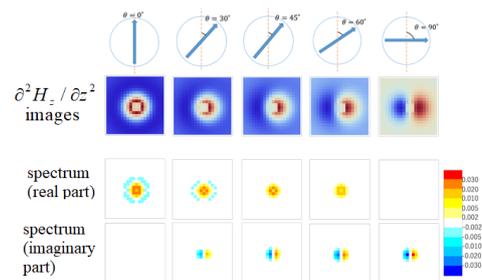


Fig.2 Calculated $\partial^2 H_z / \partial z^2$ images and their real and imaginary part spectrum for single domain particle with various \mathbf{M} direction.

交番磁気力顕微鏡を用いた直流磁場イメージングの理論

齊藤 準、三浦 健太、田中 花道、松村 透
(秋田大理工)

Theory of DC magnetic field imaging by using an alternating magnetic force microscopy

H. Saito, K. Miura, H. Tanaka, T. Matsumura
(Akita Univ.)

はじめに 磁気力顕微鏡は磁性体試料の磁極を発生源とする直流磁場に対して、磁場勾配を検出することで磁場そのものを検出する他の観察手法と比較して、磁場勾配の伝達関数が高波数域で磁場の伝達関数より低減衰であることを利用して高い空間分解能を得ている。我々は試料表面近傍の磁気力の単独検出を可能にした交番磁気力顕微鏡 (Alternating Magnetic Force Microscopy; A-MFM) に、磁場計測方向を一定に保つことができる超常磁性探針を組み合わせることで、高い空間分解能での直流磁場勾配計測を実現している。しかしながら得られる磁場勾配像は、解釈が容易な磁場像と比較して定量性に乏しいことが指摘されてきた。本報告では、直流磁場を発生する永久磁石等を対象として、A-MFM 計測により高い空間分解能が得られる磁場勾配像から、磁場方向と磁場値が定まった磁場像を得る方法を提案する。

方法 直流磁場勾配の超常磁性探針を用いた A-MFM 観察においては、超常磁性探針に外部から交流磁場を印加して、探針磁化を交流磁場方向に変化させることで試料からの直流磁場勾配を計測する。本報告では探針に交流磁場を磁場分布が明らかな空芯コイルを用いて印加することで、磁気力勾配信号から磁場信号を抽出することを提案する。試料面に垂直方向を z 方向として探針を z 方向に加振した場合、磁気力顕微鏡が検出する磁気力勾配 F_z' は、探針磁化を \mathbf{m}^{tip} 、探針に印加される磁場を \mathbf{H} とすると、 $F_z' = \partial^2(\mathbf{m}^{tip} \cdot \mathbf{H}) / \partial z^2$ で与えられる。空芯コイルから試料面に垂直方向の交流磁場 $H_z^{ac} \cos(\omega t)$ を探針に印加した場合、 \mathbf{H} は試料から発生する直流磁場を \mathbf{H}^{dc} とすると $\mathbf{H} = \mathbf{H}^{dc} + H_z^{ac} \cos(\omega t) \mathbf{e}_z$ となる。ここで、 \mathbf{m}^{tip} は超常磁性探針であるので、

$\mathbf{m}^{tip} = \chi \mathbf{H}$ となる。交番磁気力顕微鏡が検出する磁気力勾配 F_z' の ω 成分は $F_z'(\omega t) = 2\chi \frac{\partial^2 H_z^{dc} H_z^{ac}}{\partial z^2} \cos(\omega t)$ となり、

$\frac{\partial^2 H_z^{dc} H_z^{ac}}{\partial z^2} = H_z^{ac} \frac{\partial^2 H_z^{dc}}{\partial z^2} + 2 \frac{\partial H_z^{ac}}{\partial z} \frac{\partial H_z^{dc}}{\partial z} + \frac{\partial^2 H_z^{ac}}{\partial z^2} H_z^{dc}$ となる。空芯コイルで発生させる磁場や磁場勾配は空芯コイル中の探針位置を定めることで、定数とおくことができるので、探針を空芯コイルの中心から離して設置した場合には、

$\frac{\partial^2 H_z^{dc} H_z^{ac}}{\partial z^2} = |C_1| \frac{\partial^2 H_z^{dc}}{\partial z^2} - |C_2| \frac{\partial H_z^{dc}}{\partial z} + |C_3| H_z^{dc}$ が得られ、磁気力勾配信号は磁場信号や磁場勾配

信号の和となる。次に磁気力勾配信号 $\frac{\partial^2 H_z^{dc} H_z^{ac}}{\partial z^2}$ から磁場信号 H_z^{dc} を抽出することを考える。上式の波数空間

での空間周波数スペクトルは、

$\frac{\partial^2 H_z^{dc} H_z^{ac}}{\partial z^2}(k_x, k_y, z_0) = |C_1| \frac{\partial^2 H_z^{dc}}{\partial z^2}(k_x, k_y, z_0) - |C_2| \frac{\partial H_z^{dc}}{\partial z}(k_x, k_y, z_0) + |C_3| H_z^{dc}(k_x, k_y, z_0)$ となる。したがって、

$|C_3| H_z^{dc}(k_x, k_y, z_0) = \frac{|C_3| H_z^{dc}(k_x, k_y, z_0)}{|C_1| \frac{\partial^2 H_z^{dc}}{\partial z^2}(k_x, k_y, z_0) - |C_2| \frac{\partial H_z^{dc}}{\partial z}(k_x, k_y, z_0) + |C_3| H_z^{dc}(k_x, k_y, z_0)} \left(\frac{\partial^2 H_z^{dc} H_z^{ac}}{\partial z^2}(k_x, k_y, z_0) \right)$ となる。

直流磁場やその勾配は試料中での磁極 $\rho_m(k_x, k_y, z)$ を共通の発生源とした伝達関数で表すことができる (

$H_z^{dc}(k_x, k_y, z_0) = A \exp(-\sqrt{k_x^2 + k_y^2}(z_0 - z)) \rho_m(k_x, k_y, z)$, $\frac{\partial^2 H_z^{dc}}{\partial z^2}(k_x, k_y, z_0) = A(k_x^2 + k_y^2) \exp(-\sqrt{k_x^2 + k_y^2}(z_0 - z)) \rho_m(k_x, k_y, z)$

) ので、上式から、 $|C_3| H_z^{dc}(k_x, k_y, z_0) = \frac{|C_3|}{|C_1|(k_x^2 + k_y^2) + |C_2|\sqrt{k_x^2 + k_y^2} + |C_3|} \left(\frac{\partial^2 H_z^{dc} H_z^{ac}}{\partial z^2}(k_x, k_y, z_0) \right)$ が導かれる。

以上のように、波数空間上で空間周波数フィルター $\frac{|C_3|}{|C_1|(k_x^2 + k_y^2) + |C_2|\sqrt{k_x^2 + k_y^2} + |C_3|}$ により磁気力勾配信

号の空間スペクトルから磁場信号の空間スペクトルを抽出することができ、フーリエ逆変換することで磁場像を得ることができる。信号抽出で得られる磁場像は磁場の一定値を含んでおり、磁場値の校正により磁場の符号を含めた値の測定が可能となる。これらの詳細は学会で報告する。

磁気光学イメージングによる磁場ベクトルの3次元分布測定

坂口穂貴、和田真羽*、松村透*、齊藤準*、石橋隆幸
(長岡技科大、*秋田大)

Three-dimensional distribution measurement of magnetic field vector by magneto-optical imaging

H. Sakaguchi, S. Wada*, T. Matsumura*, H. Saito*, T. Ishibashi
(Nagaoka Univ. of Tech., *Akita Univ.)

1. はじめに

我々はこれまでに、面内磁化を持つ磁気光学効果の大きな Bi 置換希土類鉄ガーネットをガラス基板上に作製することに成功し、MO イメージングによって磁場分布のリアルタイム観察を実現した^{1,2)}。しかし、MO イメージングで得られる磁場分布は垂直成分のみであった。今回は、測定で得られた垂直磁場から点磁極が作る磁場を表す伝達関数による計測磁場方向の変換処理を行うことによって、磁場ベクトルの3次元分布測定が可能になったので報告する。

2. 方法

偏光板を張り付けた赤色 LED 光源(ミスミ製 LEDXR120)から出た直線偏光を MO イメージングプレートに垂直入射させ、ハーフミラーを介して反射光を偏光カメラ(Baumer 社製 VCXG-50MP, 2448×2048 画素)で撮影する光学系を構築した。MO イメージングプレートには、φ75 mm のガラス基板上に作製した Bi 置換 Nd 鉄ガーネットの上に反射膜として Ag 合金をスパッタリング法によって製膜したものを用いた。測定は、MO イメージングプレートと測定対象の距離が 0, 2, 4 mm の位置で露光時間 64 ms で 300 回計測し、積算した。得られた画像データからストークスパラメータ(s_0, s_1, s_2)を求め、 $\theta = 0.5 \tan^{-1}(s_2/s_1)$ の関係を用い回転角の画像を得た。そして、MO イメージングプレートの磁気光学効果と磁場の関係から垂直磁場分布像に変換した。さらに、フーリエ変換によって空間周波数領域で面内成分変換フィルター処理後、逆フーリエ変換を行う方法³⁾により面内方向の磁場分布像を得た。

3. 結果

Fig. 1 に試料に用いたフェライト磁石の写真、測定した垂直成分の磁場分布像、距離 0, 2, 4 mm における垂直磁場分布とフィルター処理によって得られた面内磁場成分を組み合わせて得られた 3 次元磁場分布を示す。測定で得られた磁場分布の垂直成分 (Fig. 1(b)) では、N 極および S 極がストライプ状になっていることがわかる。さらに、磁場ベクトルに変換したデータを見ると、磁場が N 極から S 極に向かっていく様子がよく分かる。また、高さを変えた場合でも同様の磁場ベクトルの計算が得られていることが分かる。MO イメージングによる磁場ベクトルの 3 次元分布計測は、従来のホールプローブを使った計測技術に比べて短時間かつ高い空間分解能での測定が可能である。

参考文献

- 1) G. Lou et al., J. Appl. Phys., **117**, 17A749 (2015).
- 2) T. Ishibashi, J. Magn. Soc. Jpn., **44**, 108-116 (2020).
- 3) H. Saito et al., Abstracts of INTERMAG 2021, CQ-03 (2021).

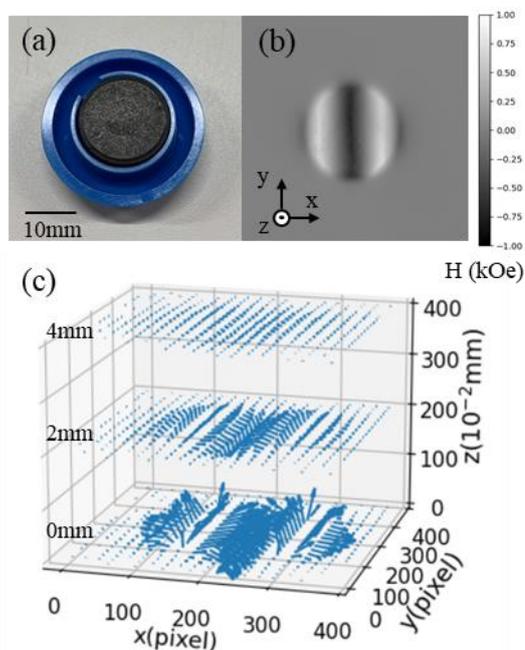


Fig. 1 (a) Digital photograph, (b) MO image, and (c) 3D magnetic field vector of the magnet measured at distances of 0, 2, and 4

磁区構造の差分画像による軟磁性体評価方法

荒木亮子・孝橋照生
(日立製作所)

Evaluation method of soft magnetic materials by difference image of magnetic domain structure.

Ryoko Araki, Teruo Kohashi
(Hitachi, Ltd.)

はじめに

モーターやソレノイド、トランスなどの電子制御部品において、電気エネルギーと磁気エネルギーの変換に使われる軟磁性体の役割は大きく、その効率化のため、軟磁性体内部の透磁率や保磁力を制御することが重要である。例えば応力を効果的に制御することで透磁率に異方性をつけてデバイス性能を向上させることや、歪のために局所的に保磁力が増加することが知られている²⁾。簡便な磁区構造解析手法³⁾により、歪等の影響による磁区構造の分布領域を解析し、特徴量を抽出できる軟磁性体の評価方法を検討した。

実験方法

φ10mm、厚さ5mmの純度99.8%の純鉄材を試料とした。磁区構造解析には面内磁区観察装置を用い、室温にて試料に磁場印加しながら磁化反転挙動を解析した。

実験結果

試料の磁区観察から得られた画像を Fig.1 に示す。0 Oe 磁場にて基準画像を取得し(Fig.1(a))、その後±180Oe 磁場印加して画像取得し、基準画像のコントラストをそれぞれ差し引き、磁化変化に起因するコントラストのみを抽出した差分画像を作製した(Fig.1(b), (c))。印加した外部磁場の向きを黒い矢印で、磁化反転した領域における磁化方向を白い矢印で示す。紙面右方向+180 Oe 印加して得られた差画像 Fig.1(b)では画像下の領域が白く磁化反転し、-180 Oe 印加して得られた差画像 Fig.1(c)では画像中央から上部にかけての広い領域が黒く反転していることがわかる。その一方で、点線で囲まれた領域では Fig.1(b)と(c)のどちらにおいても磁化が反転していないことがわかる。すなわちこれらは内部の歪等の影響のため、局所的に磁気異方性が増加した領域であると判断できる。この手法を用いることで、材料の磁区構造並びに磁化反転挙動がマイクロレベルで解析でき、軟磁性材料特性引き出すための制御指針を得られることがわかった。

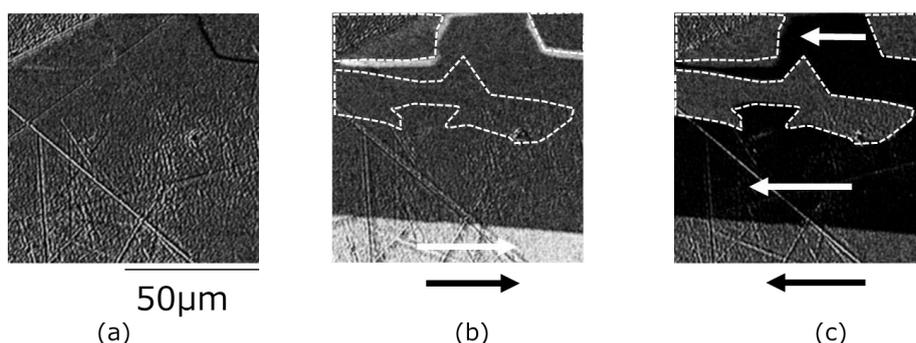


Fig.1 Magnetization analysis images of soft magnetic. (a) magnetic domain image in 0 Oe, (b) subtracted image between data in 0 Oe and that in +180 Oe, (c) subtracted image between data in 0 Oe and that in -180 Oe.

参考文献

- 1) 高宮 他：JFE 技報、p.1-5、No.36、(2015)
- 2) 千田 他：電学論 A、vol 125、No. 3、(2005)
- 3) 目黒 他：顕微鏡、vol 52、No. 3、(2017)

マイクロレンズアレイを用いた磁気光学3次元ホログラフィックディスプレイにおける再生像の高画質化

伊藤誉敏, 山岸世奉, 山本優太, 堀米秀嘉*, 後藤太一, 中村雄一,

Lim Pang Boey, 井上光輝**, 内田裕久

(豊橋技科大, *ホーリーマイン, **高専機構)

Clarification of reconstructed image in magneto-optical 3D holographic display using microlens array.

Y. Ito, S. Yamagishi, Y. Yamamoto, H. Horimai, T. Goto, Y. Nakamura, P. B. Lim, M. Inoue, H. Uchida
(Toyohashi Univ. of Tech., *Holymine, ** National Institute of Technology)

はじめに

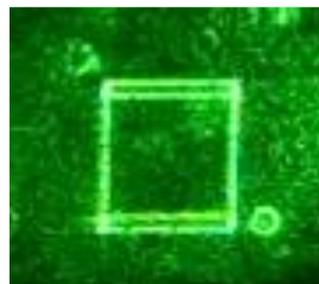
我々は眼精疲労が生じにくいホログラフィ技術を用いたディスプレイの高視野角化を実現するため、熱磁気記録法によって磁性膜上に磁気ピクセルを形成する磁気光学3次元ディスプレイの開発を行ってきた¹⁾。高視野角を得るためには微小なピクセルが必要であり、 $1\mu\text{m}$ サイズで大規模領域にピクセルを形成すること、および書き換え時間を短くすることが磁気光学3Dディスプレイの実用化への課題である。我々はこれまでにマイクロレンズアレイ(MLA)と呼ばれる微小レンズが配列された素子を用いて、微小ピクセルの書込みと像の再生を行ってきたが²⁾、再生像が十分に明瞭ではなかったことや像の欠損などが見られた。本研究では、MLAを用いた光学系により作製されたホログラムによる3次元像の再生において、高視野角で明瞭な像を再生する方法について検討する。

装置の改善および実験方法

本研究では、レーザによるコリメート光をデジタルマイクロミラーデバイス(DMD)で変調した後、各画素からの光をMLAによって $1\mu\text{m}$ に集光し、縮小したピクセルを磁気記録媒体に書き込んでホログラムを作製した。先行研究の再生像の劣化はホログラムが均一に作製できていなかったことが原因であったため、レーザ光強度の均一性およびピエゾステージの制御性を改善した。磁気記録媒体に書き込んだホログラムに、直線偏光を照射し、反射した光を検光子に通すことで空間変調された光のみを取り出し、像をカメラで撮影した。磁気記録媒体は、 $\text{SiN}(30\text{nm})/\alpha\text{-TbFe}(50\text{nm})/\text{SiN}(20\text{nm})/\text{Glass substrate}$ 構造の積層膜であり、書き込むデータは、計算機合成ホログラムである。ピクセルピッチは $1.14\mu\text{m}$ 、再生像は一辺 1mm の立方体である。

実験結果

改善した光学系を用いて、波長 532nm のレーザ光によって再生された立方体の像をFig. 1に示す。(a)は上から 5deg の角度で、左右は正面(0deg)から見たときの像であり、(b)は 14deg 右側から見たときの像である。これらの再生像は従来のものと比較して、鮮明化されており、欠損がないものが得られた。このときの視野角は約 28deg である、(b)から分かるように、大きな角度においてもコントラストが十分得られている。この視野角はピクセルピッチから計算された視野角の値と一致している。背景にある緑色の領域は、記録媒体から反射されてくる光が映り込んでいるものである。今後、さらに像の高画質化を行うとともに、再生像の動画化を目指す。



(a) 0 deg.



(b) +14 deg.

Fig. 1. Reconstructed 3D cubic frame images

参考文献

- 1) K. Nakamura, et al., Appl. Phys. Lett. 108, 022404 (2016).
- 2) 木村陽太 他, 第42回日本磁気学会学術講演会概要集 12aPS-60, (2018).

走査透過電子顕微鏡による多結晶材料中の磁区観察手法の開発

村上善樹¹、関岳人¹、木下昭人²、庄司哲也²、幾原雄一^{1,3}、柴田直哉^{1,3}

(¹東京大学大学院工学系研究科総合研究機構, ²トヨタ自動車東富士研究所先端材料技術部, ³ファインセラミックスセンターナノ構造研究所)

Development of Magnetic-Domain Imaging Techniques in Polycrystalline Materials by Scanning Transmission Electron Microscopy

Y. O. Murakami, T. Seki, A. Kinoshita, T. Shoji, Y. Ikuhara, N. Shibata

¹Institute of Engineering Innovation, The University of Tokyo, Bunkyo-ku, Tokyo, Japan, ²Advanced Material Engineering Division, Toyota Motor Corporation, Susono, Shizuoka, Japan, ³Nanostructures Research Laboratory, Japan Fine Ceramics Center, Atsuta-ku, Nagoya, Japan

はじめに：走査透過型電子顕微鏡法(Scanning Transmission Electron Microscopy: STEM)は材料の構造・組成を高い空間分解能で観察できる手法である。近年, Fig.1 に示す分割型検出器を STEM の回折面に配置し, 透過電子線のローレンツ偏向を検出し, 試料中の磁場分布を実空間で観察する微分位相コントラスト(differential phase contrast: DPC)法[1]が開発され, 磁気スキルミオン[2]の観察などが報告された。DPC-STEM 法による磁場分布観察は, 他の STEM 法による構造・組成観察と同時あるいは同一視野で行えるため, 磁性材料中の磁区構造と微細組織の相互作用の解明への寄与が期待される。そこで, 本研究では DPC-STEM 法で多結晶材料を観察する際に重量が避けられない回折コントラストの低減手法を開発した。この手法を用いて Nd-Fe-B 系熱間加工磁石の磁区を観察した結果[3]を報告する。

実験方法：焼結および熱間加工による異方性 Nd-Fe-B 系磁石に重量比 2% の NdCu を浸透させ高保持力化し, 機械・イオン研磨により TEM 試料を作製した。本試料を, 分割型検出器を搭載した透過型電子顕微鏡 JEM-2100F を用いて DPC-STEM 観察を行った。試料傾斜が回折コントラストと磁場コントラストに与える影響を考察するため, 試料ホルダーの傾斜機構を用いて, わずかに電子線入射方位を変化させた一連の DPC 像と ADF 像を取得した。一連の DPC 像を平均して磁場の信号を抽出し, 関数フィッティングにより磁壁幅を測定した。

実験結果：Fig.2 (a)(b)に ADF 像と DPC 像をそれぞれ示す。DPC 像には ADF 像と同様の歪みや結晶方位を反映したコントラストが生じており, 回折条件の変化による回折コントラストと考えられる。電子線入射方位を 0.1 度程度変化させると回折コントラストは大きく変化したため, 傾斜変化に対してランダムに変化することを仮定し, わずかに傾斜条件を変化させて取得した一連の DPC 像に位置補正を行い平均した傾斜平均 DPC 像を Fig.2(c)に示す。傾斜平均 DPC 像では回折コントラストが低減され, 左右方向の 2 つの磁区が明瞭に観察された。

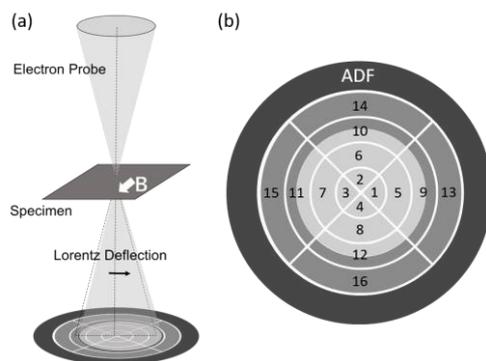


Fig. 1 (a) DPC STEM の概略図. (b) 16 分割の分割型検出器と ADF 検出器の概略図. 中心の白いディスクは透過電子ディスクを表す。

参考文献

- 1) N. Shibata *et al.*, Acc. Chem. Res., 50 (2017) 1502.
- 2) T. Matsumoto *et al.*, Sci. Adv. 2 (2016) e1501280.
- 3) Y. O. Murakami *et al.*, Microscopy, 69 (2020) 312.

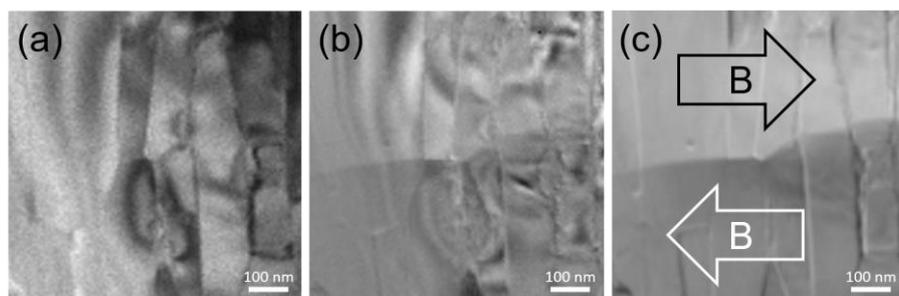


Fig. 2 (a) Nd-Fe-B 系磁石の ADF 像. (b) DPC 像. 回折コントラストが重畳している. (c) わずかに傾斜条件を変化させた 64 枚の DPC 像を平均化した傾斜平均 DPC 像. 磁壁が明瞭に観察できる。

Development of highly sensitive TMR sensor

Mikihiko Oogane¹, Kosuke Fujiwara², Seiji Kumagai², Hitoshi Matsuzaki², and Yasuo Ando¹
(¹Tohoku Univ., ²Spin Sensing Corp.)

The magnetic tunnel junctions (MTJs)-based sensors (TMR sensor) are promising magnetic field sensor because of room temperature operation, small device size, and the low power consumption. Since the TMR sensors with such features are considered to be widely applicable not only to the magnetic recording, the TMR sensors will be a key device in the ICT and IoT societies. In addition, because of the dramatic increase in sensitivity of TMR sensors in recent years, the realization of the device that can detect the weak magnetic field of pico-Tesla such as bio-magnetic field is expected. We have already reported on the measurement of cardiac magnetic field (magnetocardiography: MCG) and brain magnetic field (magnetoencephalography: MEG) using TMR sensors [1], but, the further improvement in sensitivity and detectivity of TMR sensors is required to realize the actual TMR based-MCG and -MEG equipment. We will introduce recent progress in the development of highly sensitive TMR sensors.

We have achieved the lowest magnetic field detectivity of $1.0 \text{ pT} / \text{Hz}^{0.5}$ at 1 Hz in the TMR sensor using a magnetic flux concentrator (MFC) (Fig. 1). By using a TMR sensor with high magnetic field resolution in the low frequency region, we succeeded in measuring MCG at real-time and MEG with a small number of averaging times. Further, as shown in Fig. 1, the developed TMR sensor has an extremely low magnetic field detectivity of $0.1 \text{ pT} / \text{Hz}^{0.5}$ or less in the kHz band. Protons in the human body generate nuclear magnetic resonance (NMR) at a frequency of 1 to 3 kHz under a weak magnetic field of μT , and we succeeded in measuring the NMR signal for the first time using the TMR sensor (Fig. 2). These results show that the MEG signal and the magnetic resonance image (MRI) using NMR can be simultaneously measured by the same TMR sensor device.

This work was partly supported by JST S-innovation project, the Center for Innovative Integrated Electronic Systems (CIES), the Center for Science and Innovation in Spintronics (CSIS), and the Center for Spintronics Research Network (CSRN).

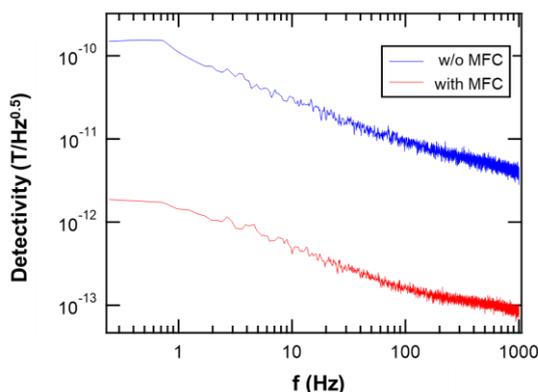


Fig. 1 Frequency dependence of detectivity in developed TMR sensors with/without magnetic flux concentrator (MFC)

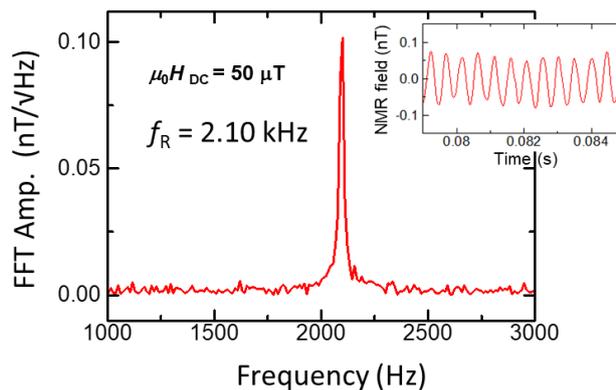


Fig. 2 Proton NMR signals under low magnetic field of $50 \mu\text{T}$ measured by developed TMR sensors with MFC.

Reference

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

偶関数型 GMR を用いた超高感度磁気センサ

東 祥弘, 喜々津 哲, 黒崎 義成, 白鳥 聡志
(株式会社東芝 研究開発センター)

High sensitive magnetic sensor using symmetric response GMR
Yoshihiro HIGASHI, Akira KIKITSU, Yoshinari KUROSAKI and Satoshi SHIROTORI
Corporate Research and Development Center, Toshiba Corporation

偶関数特性を用いた変調システムによる超感度化のコンセプト

超高感度磁気センサは、2次電池や半導体回路のリーク電流検査、鋼材の微細欠陥検査などの応用に期待されている⁽¹⁾。中でも磁気抵抗効果 (MR) 素子は高密度実装や集積化が容易なため、IoT などの幅広い用途が想定され、磁界検出感度は数 10 pT レベルが報告されている⁽²⁾。

MR 素子の高分解能実現のためには、素子の高出力化と低ノイズ化が求められる。前者は MR の増大や、測定磁場を集める MFC (Magnetic Flux Concentrator) の効率向上が検討されている⁽²⁾。後者は測定信号を高周波側にシフトさせる変調が注目されている⁽³⁾。MR 素子のノイズ成分としては半導体素子と同様に、周波数特性を持たないホワイトノイズ成分と周波数特性を持つ 1/f ノイズが発生する。今回は、MR 素子の磁場-抵抗 (R-H) 特性を利用して素子内で行う変調システムを検討した。

この変調システムは、(R-H) 特性が偶関数特性を示す巨大磁気抵抗 (GMR) 素子と、素子に近接して配置された銅配線で構成される (図 1 (a))。銅配線に、交流電流を印可することにより変流磁場 H_{ac} が発生し、GMR 素子の R-H 特性により、測定磁場 H_m が変調される (図 1 (b))。式(1)の磁場 H が偶関数特性の GMR 素子 (2 次関数に近似) に印可された場合の出力 V_{out} は式 (2) で表すことができる。ここで H_m は、交流磁場周波数の側帯波 $\omega_{ac} \pm \omega_m$ (第二項) に変調されることが分かる。また、図 1 (c) に示したように回路シミュレーションでも変調を確認した。

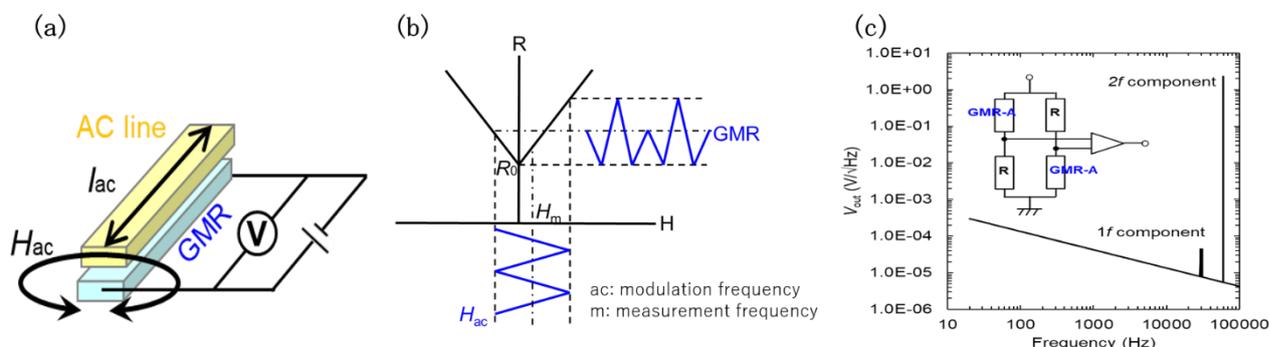


図 1. (a) 変調システムを有した磁気抵抗効果素子の模式図。(b) 交流磁場および測定磁場印可時の偶関数素子の R-H 特性。(c) 変調時のハーフブリッジ回路シミュレーション結果。

$$H = |H_m| * e^{-i\omega_m t} + |H_{ac}| * e^{-i\omega_{ac} t} \quad (1)$$

$$V_{out} = \frac{dR}{dH} (H)^2 * I = \frac{dR}{dH} (H_m^2 * e^{-2i\omega_m t} + 2|H_m| * |H_{ac}| * e^{-i(\omega_m - \omega_{ac})t} + H_{ac}^2 * e^{-2i\omega_{ac} t})^2 * I \quad (2)$$

変調時の特有ノイズと考察

図2に実際に作成した素子周波数スペクトルを示す。変調しない場合、素子ノイズは測定周波数内で1/fノイズを示す (青線)。変調した場合、1 kHz以上の帯域においてフラットな周波数依存性をもつ特有ノイズ (ホワイトノイズ) が重畳された (赤線)。このホワイトノイズの発生のため、回路シミュレーションと比較して変調による低ノイズ化の効果が限定的となっている。本研究の目的はこれらのノイズのメカニズムを解明し、それを低減することで、これまでになく高感度磁気センサの実用化につなげることである。

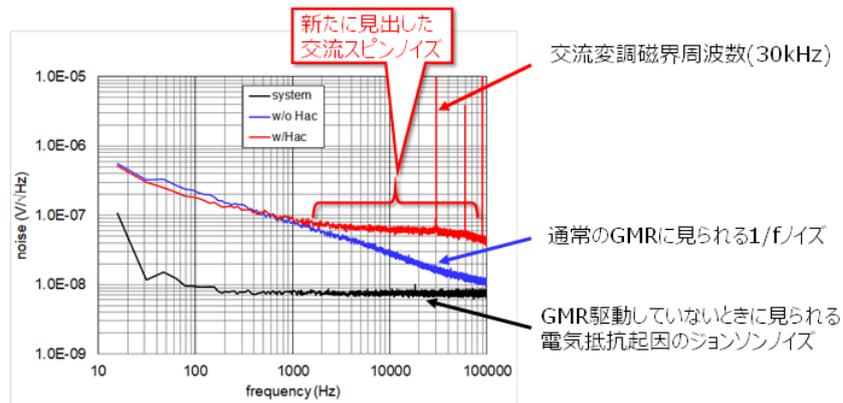


図2. 作成した素子の高周波変調有無の周波数スペクトル。

図3 (a) を用いてホワイトノイズが表れるメカニズムを考察する。低周波帯域 (領域1) に $1/f$ ノイズを示すが、変調によって変調周波数 ($1f$) 近傍 (領域3) に $1/f$ ノイズが重畳される。そのそれらの中間周波数帯域 (領域2) では、元の $1/f$ ノイズと変調された $1/f$ ノイズの足し合わせにより、ホワイトノイズが発生したモデルを検討した。このモデルに基づいて、 $1/f$ ノイズが交流磁場周波数近傍に変調された場合の周波数スペクトルをベースに推定し、実験結果との比較を行った (図3 (b))。実測されたノイズ (緑線) は、計算で求めたノイズ (赤線) よりも強度が大きく、かつスペクトル形状も異なっている。したがって、今回検討した $1/f$ ノイズの変調以外のメカニズムが示唆される。講演ではこれらの詳細を議論する。

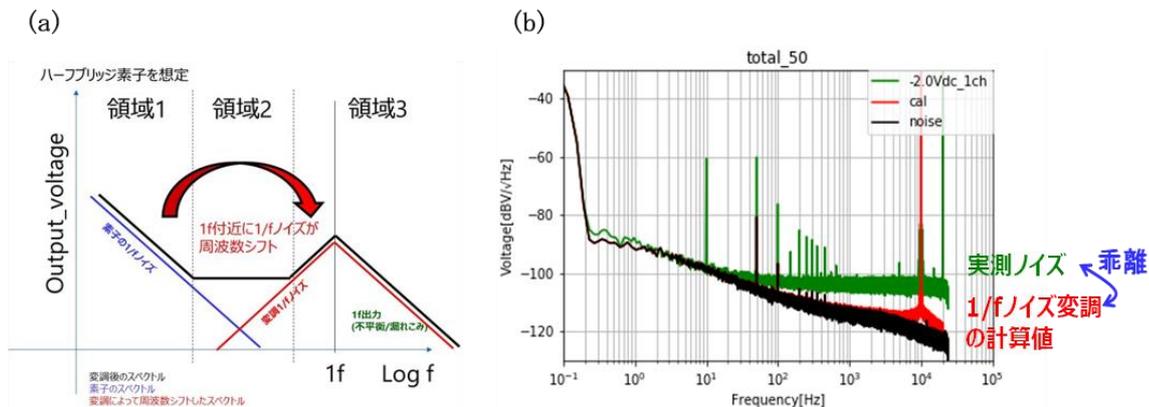


図3.(a)変調時のホワイトノイズ発生モデル。(b)想定モデルの計算結果と実測ノイズ比較。

参考文献

- (1) K. Kimura, Y. Mima, and N. Kimura, “Visualization of electric current density distribution—Application to nondestructive inspection for rechargeable batteries,” *J. Inst. Electr. Eng. Jpn.*, vol. 135, no. 7, pp. 437–440, 2015.
- (2) K. Fujiwara et al., “Magnetocardiography and magnetoencephalography measurements at room temperature using tunnel magneto-resistance sensors,” *Appl. Phys. Express*, vol. 11, no. 2, Feb. 2018, Art. no. 023001.
- (3) W.Tian, et al., “Magnetic Flux Vertical Motion Modulation for $1/f$ Noise Suppression in Magnetoresistance Field Sensors Using MEMS Device,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 52, Issue:2, Feb. 2016, Art. no. 4000306.

This work was supported by the Cabinet Office (CAO), Cross-ministerial Strategic Innovation Promotion Program (SIP), “Intelligent Processing Infrastructure of Cyber and Physical Systems” (funding agency: NEDO)

New model of FM-OFG magnetometer with 1-pT noise floor

Ichiro Sasada

Sasada Magnetics and Sensors Laboratory

In this presentation, recent progress in the art of fundamental mode orthogonal fluxgate (FM-OFG) magnetometer and a new model of its embodiment will be presented.

The orthogonal fluxgate magnetometer was first reported by T. Palmer in 1953 [1], where a thin permalloy wire is used as a sensor core and ac excitation current is directly fed to the thin wire core. When magnetic field is input to the core, the induced voltage at the pickup coil that surrounding the core becomes to include second harmonics of the excitation frequency. When dc current is added as a bias to the ac excitation current to make them unipolar, the operation of the orthogonal fluxgate turns to the fundamental mode, which was introduced by I. Sasada 20 years ago [2]. The difference in the constituent is very little but the dc-bias current gives us a totally different picture in terms of noise [3]. Applications of very low noise FM-OFGs include MCG measurement [4], magnetic nano-particle detection [5] and small ferrous contaminants detection [6]. Recent developments include offset drift stabilization for long-term dc measurement [7] and noise reduction less than 1 pT/ $\sqrt{\text{Hz}}$ at 1 Hz [8]. The most important aspect of the FM-OFG is that it employs small angle rotation of magnetization in a thin magnetic wire or of a narrow magnetic ribbon. Therefore it can minimize any noises from Barkhausen jumps associated with domain wall motion. The operating principle is repeatedly explained in articles mentioned above. A key point is that the permeability along the core's length direction varies periodically with an excitation frequency. Fig. 1 shows a numerical result for this, where $H_{\text{ex}} = H_{\text{dc}} + H_{\text{ac}}$. Due to the periodical change in the permeability, low frequency magnetic field input produces amplitude modulation of the carrier frequency, which is exactly the excitation frequency. A block diagram of a magnetometer system with a negative feedback loop is shown in Fig. 2. This diagram is put in a box as shown in Fig. 3. Three output terminals are added to it; dc output (dc~1 kHz) with offset subtraction on demand via USB, two ac coupled outputs (0.16 Hz~1 kHz, 100 time gain and unity gain). A six volt ac adaptor supplies the power to it. Within the system, ± 5 V is produced after filtering 6 V dc input. Power consumption of the main section is less than 0.2 W. Fig. 4 shows an example of one shot observation of a weak magnetic field coming out from a wrist watch's stepping motor using AC_100 output, in which several ringing peaks are visible due to 1 kHz frequency band and low system noise. A sensor head made of a 35 mm long thin core and a 30 mm long pickup coil is used. Measurement is carried out inside a shield. Fig. 5 shows a zoom-up of the first half segment of the trace in Fig. 4. The root-mean-square value of the zoomed up portion is calculated as 30.9 pTrms. By considering that the band width is 1 kHz, noise density per $\sqrt{\text{Hz}}$ is $30.9/\sqrt{1000}=0.98$ pT/ $\sqrt{\text{Hz}}$. This is just a rough estimation of white noise. Another thing to be noted is that the peak-to-peak of white noise and the noise density per $\sqrt{\text{Hz}}$ is very different in value when the observation frequency band is wide. Finally noise spectral densities are measured for two sensor heads; one is just mentioned and the other has a 30 mm long thin core. Sensor head under test is placed inside a five-shell cylindrical shield. Output voltages of the magnetometer are taken from the dc output

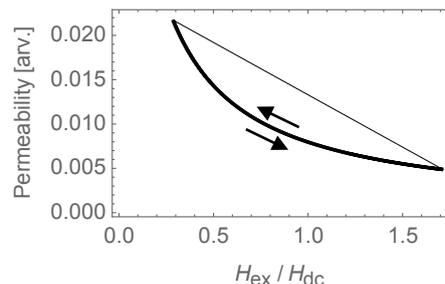


Fig. 1 Permeability along the length direction of a thin wire core is numerically calculated. Operating point traverses along the thick solid line periodically.

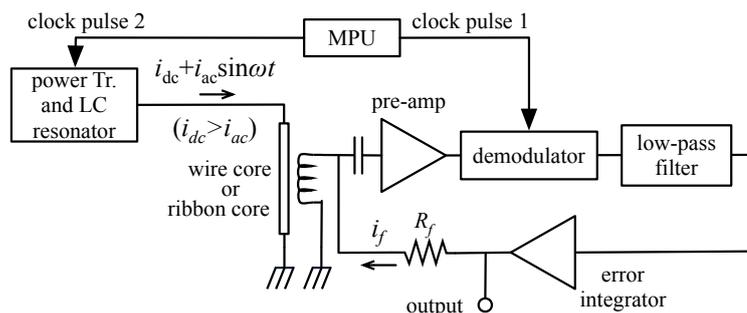


Fig. 2 Block diagram of FM-OFG magnetometer.



Fig. 3 New model of FM-OFG magnetometer.

observation of a weak magnetic field coming out from a wrist watch's stepping motor using AC_100 output, in which several ringing peaks are visible due to 1 kHz frequency band and low system noise. A sensor head made of a 35 mm long thin core and a 30 mm long pickup coil is used. Measurement is carried out inside a shield. Fig. 5 shows a zoom-up of the first half segment of the trace in Fig. 4. The root-mean-square value of the zoomed up portion is calculated as 30.9 pTrms. By considering that the band width is 1 kHz, noise density per $\sqrt{\text{Hz}}$ is $30.9/\sqrt{1000}=0.98$ pT/ $\sqrt{\text{Hz}}$. This is just a rough estimation of white noise. Another thing to be noted is that the peak-to-peak of white noise and the noise density per $\sqrt{\text{Hz}}$ is very different in value when the observation frequency band is wide. Finally noise spectral densities are measured for two sensor heads; one is just mentioned and the other has a 30 mm long thin core. Sensor head under test is placed inside a five-shell cylindrical shield. Output voltages of the magnetometer are taken from the dc output

inside the box then amplified 10 times by an external low noise amplifier with a 0.016 Hz cut-off high pass filter. Waveforms are recorded in 16 bits for 400 seconds with the sampling rate of 5 kS/s and band limited digitally to 2 kHz. FFT to calculate the noise spectral density is made in a PC. Results are shown in Fig. 6 for 35 mm long sensor head and in Fig. 7 for 30 mm long sensor head. In both plots, white noise region starts at around 10 Hz. The noise floor for the 30 mm long sensor head is 1.4 pT/ $\sqrt{\text{Hz}}$ and that for 35 mm one is 1.0 pT/ $\sqrt{\text{Hz}}$. By elongating the thin core, one may get a higher sensitivity without excess increase in magnetic noise, hence one may get lower noise after scaling. With this scheme, 0.8 pT/ $\sqrt{\text{Hz}}$ @1Hz is realized in ref [8].

Reference

- [1] T. M. Palmer, Proc. IEE Part II (London) 100, (1953) 545
- [2] I. Sasada, Journal of Applied Physics, 91 (2002) 7789
- [3] E. Paperno, Sensors and Actuators A 116 (2004) 405
- [4] H. Karo et al., J. Appl. Phys. (2015); DOI: 10.1063/1.4918958
- [5] H. Karo et al., AIP Advances 7, 056716 (2017); doi: 10.1063/1.4975655
- [6] A. L. Elrefai et al., J. Appl. Phys. (2015); DOI: 10.1063/1.4913720
- [7] N. Murata et al., IEEE Sensors Journal, DOI: 10.1109/JSEN.2018.2797961
- [8] M. Janosek et al., IEEE Trans. Instrumentation and Measurement, 69, (2020) 2552

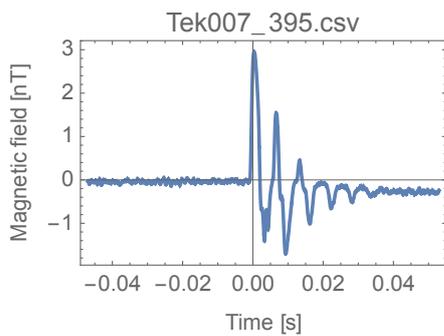


Fig. 4 Magnetic field from a stepping motor inside a wrist watch (Seiko Dolce). Distance from the bottom of the sensor core and the closer edge of the watch is about 11 cm.

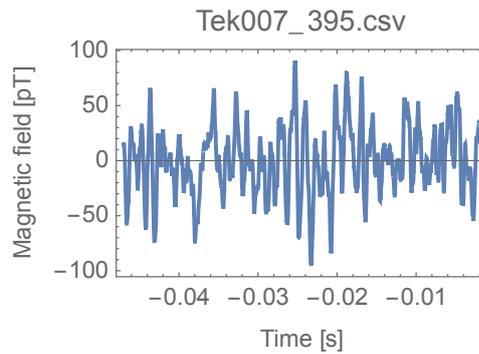


Fig. 5 Zoom-up of the left half part of the waveform in Fig. 4

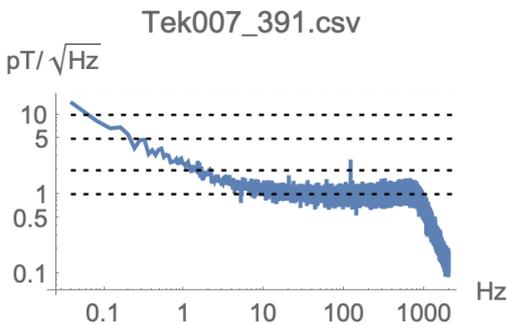


Fig. 6 Noise spectral density plot for a sensor head with 35 mm long core. Magnetometer used is FM-OFG sLab5 DC/AC1000.

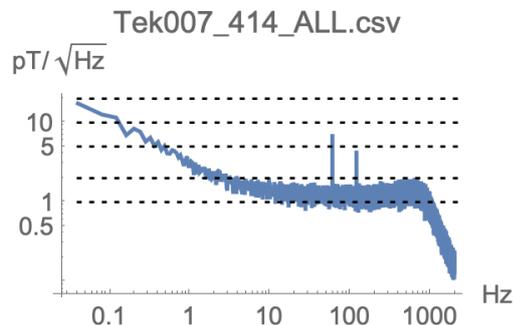


Fig. 7 Noise spectral density plot for a sensor head with 30 mm long core. Magnetometer used is FM-OFG sLab5 DC/AC1000.

Development of highly sensitive magnetoimpedance sensor system towards for sub-pico-tesla resolution

T. Uchiyama, J. Ma

Department of Electrical Engineering, Nagoya University, Nagoya 464 8603, Japan

The Magneto impedance (MI) sensor is a highly sensitive micro magnetic sensor based on the magneto-impedance effect in amorphous wires. As a high-performance magnetic sensor, magneto-impedance (MI) sensor has attracted considerable attention and has wide prospects in geomagnetic detection and bio-sensing. With the MI effect, when a high-frequency sine current is applied to a soft magnetic material, impedance of soft magnetic material changes significantly with external magnetic field. In MI sensor, the impedance change of Co-based amorphous wire increases with the frequency of excitation current. Meanwhile, in 1995, pulse driven MI sensor was developed with good linearity by using pick-up coil and higher change rate of impedance in amorphous wire which is more than 100%. In 2002, for distinguishing the poles of external magnetic fields, a pick-up coil was wound around the amorphous wire for detecting the induced voltage proportional to the impedance change (direction change of a magnetization vector) in pick-up coil.

Then, an electronic compass circuit using 3-axis amorphous wire CMOS MI sensor has been developed and mass produced for the mobile phone since 2005 by Aichi Steel Corporation, the smart phone since 2011, and the wristwatch since 2013 [1]. Meanwhile, Dr. L. G. C. Melo reported the theoretical limit of intrinsic magnetic field noise spectral density (MSD) of MI sensor [2], in 2008. The intrinsic magnetic field noise of 30- μm Co-based amorphous wire is estimated to be about 10 fT measured over a bandwidth of 1Hz, with 1 cm length, in room temperature. However, with the conventional CMOS MI sensor circuit, it is difficult to examine the magnetic noise of the element in detail, such as comparing it with the theoretical, because of large $1/f$ noise of sensor circuitry.

In this study, we used 30 μm diameter CoFeSiB amorphous wire samples in combination with the pick-up coil for magnetic field detector, which utilize off-diagonal MI effect [3]. The wire samples after heat treatment were supplied by Aichi Steel Corporation. In order to improve S/N ratio of the MI sensor system, we have developed new circuitry of pulse-driven MI sensor, which detecting both the positive peak and negative peak, which are excited by rising edge and drop edge of the excitation pulse. In this Pk-pk VD type MI sensor system [4], we have adopted the time-differential measurements between the voltages of the positive peak and negative peak. Because of the time-differential measurement of the same induced signal, that can reduce the common-mode noise due to the fluctuation of low frequency.

We have investigated the field detection characteristics (E_{out} versus H_{ex}) of the Pk-pk VD-type MI magnetometer by using different MI sensor heads with 400, 500, 600, 700, and 800 turns machinery pick up coils. These Pk-pk VD-type MI magnetometer have good linearity. We also investigated system sensitivities of the Pk-pk VD-type MI magnetometer and conventional MI magnetometer in case of the same amplifier gain ($A = 10.8$), at the end of circuits. The comparison of sensitivity depending on number of turns of pick-up coils between the Pk-pk VD-type MI magnetometer and conventional MI magnetometer is shown in Fig. 1. The highest sensitivity is 1.4×10^6 V/T at 500 turns. It is found that the sensitivity of the Pk-pk VD-type MI magnetometer is 1.3 times higher than the sensitivity of conventional MI magnetometer.

As shown in Fig. 2, we measured the output noises in time domain of the Pk-pk VD-type MI magnetometer and conventional MI magnetometer by using a low pass filter with a cutoff frequency of 10 Hz. The result illustrates the output noise of the Pk-pk VD-type MI magnetometer is reduced to less than 1/10 of conventional MI magnetometer. Obviously, we have markedly reduced the noise level in time domain of the Pk-pk VD-type MI magnetometer. The output RMS noise of Pk-pk VD-type MI magnetometer is approximately 5 pT with a 10 Hz low pass filter.

For further improving MI sensor, it's necessary to analyzing intrinsic magnetic noise in amorphous wire. The noise of MI sensor is considered to be mainly due to circuit noise, fluctuation of wire magnetic moment (thermal magnetic noise), and irreversible movement of domain wall trapped by impurities and scratches on wire surface (Barkhausen noise). The noise level of Pk-pk VD Type MI sensor circuit is approximately 20 nV. The noise level we achieved here is getting close to the input conversion noise level of the differential amplifier used in this circuit. With this extremely low circuit noise we achieved here, we can investigate the intrinsic magnetic noise of amorphous wire via proposed MI

sensor circuit.

We have considered the loss due to the BH loop, and dealt with fluctuation of magnetic moment according to the general theory of fluctuation. When magnetic moment fluctuates due to thermal energy, it becomes noise of magnetic sensor measuring this magnetic moment. On the basis of this thermal fluctuation theory, the thermal noise of MI element can be expressed as a function of permeability, and it increases with anisotropy field. However, when anisotropy field is 3 Oe or more, the value tends to be saturated.

Moreover, the magnetization of amorphous wire is considered to be in circumferential direction, which is divided into several magnetic domains in opposite directions with 180° domain walls. Assuming the number of pinning sites such as scratches and impurities on the wire surface is constant, the greater the number of domain walls would lead to the greater the probability of being trapped at pinning sites. Noise analysis results suggests that the magnetic noise due to irreversible movement of domain wall increases with the number of domain walls.

Reference

1. K. Mohri *et al.*, Journal of Sensors, (2015), Article ID 718069.
2. L. G. C. Melo *et al.*, J. Appl. Phys., **103** (2008) 033903.
3. S. Sandacci *et al.*, IEEE Trans. Magn. **40** (6) (2008) 18.
4. J. Ma *et al.*, IEEE Trans. Magn. **53** (11) (2017) 4003404.

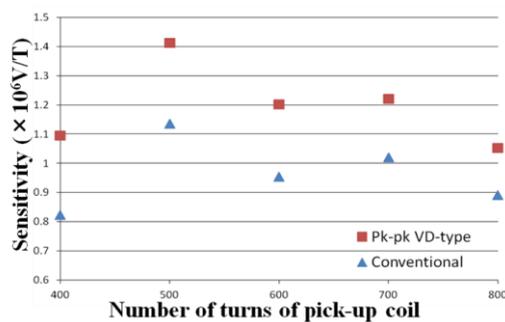


Fig.1 The comparison of sensitivity depending on number of turns of pick-up coil between the Pk-pk VD-type MI magnetometer and conventional MI magnetometer.

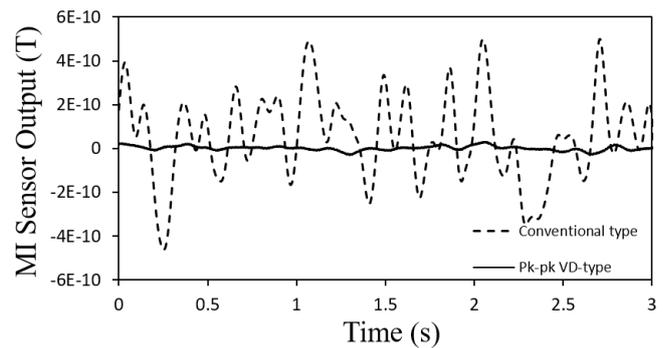


Fig.2 The output noises in time domain of the Pk-pk VD-type MI magnetometer and conventional MI magnetometer. The full curve shows output noises of the Pk-pk VD-type MI magnetometer. The dotted line shows output noises of conventional MI magnetometer. We used a low pass filter with a cutoff frequency of 10 Hz.

High-frequency drive type thin film sensor using coplanar line type structure and for biomedical application

S. Yabukami

Graduate School of Biomedical Engineering, Tohoku University, Sendai 980-8579, Japan

A very sensitive thin-film sensor was developed using a transmission line operating at room temperature. The sensor element consists of a coplanar line with amorphous-CoNbZr film. We already succeeded in the measurement of the MCG (magnetocardiogram) signals at 16 points without magnetic shielding, and these signals were found to roughly agree with MCG signals obtained with a SQUID (Superconducting Quantum Interference Device)¹⁾. However, the sensor system needs a magnetic coil (such as Helmholtz coil) to apply DC field, which results in increasing 1/f noise. In addition, this sensor is used with a high-frequency carrier of 1 GHz or higher, so we are considering the development and application of this sensor to ensure stable operation as a module mounted on a board without impairing the sensitivity of the sensor element. In the present study, we discuss direct bias to CoNbZr film and Cu film under a CoNbZr film and compare it with an application of bias magnetic field. We also have developed a straight coplanar line-type sensor with flip chip bonding. The high-frequency characteristics and sensitivity of the sensor element through comparison of cases with and without flip chip bonding was discussed. Good sensitivity with a phase change was obtained with flip chip bonding. Fig. 1 shows one example of a thin-film sensor. The sensor element consists of a meandering coplanar line, SrTiO film as an insulator, and an amorphous CoNbZr film and Cu film as an electrode. The coplanar structure was fabricated by the lift-off process. Amorphous CoNbZr film was deposited by RF sputtering on a glass substrate. In order to induce transverse magnetic anisotropy, a DC field of 0.3 T was applied during annealing after film deposition. Therefore, the easy axis, which was applied transverse to the coplanar line as shown in Fig. 1. SrTiO film was deposited by RF sputtering and annealed at 160°C during deposition. Cu and Cr film were deposited by RF sputtering. A high-frequency carrier flows in the center conductor of the coplanar line, not in the CoNbZr film, so the sensor is different from conventional GMI sensors in this respect. When this DC current flows directly in the CoNbZr film, permeability of the CoNbZr film changes, which results in the amplitude and the phase of the carrier is changed due to the skin effect and ferromagnetic resonance. Conventional wafer probes (GSG-40-150 and HFP-120-201) were put into contact with the sensor to apply carrier and DC current. The transmission coefficient (S_{21}) was measured by a network analyzer as the DC current was slowly changed. Fig. 2 shows the phase change (sensitivity) as a function of the DC field and carrier frequency. The sensor was connected with the flip chip bonding. The good phase change of about 290 degrees/Oe was obtained around 4 Oe and at 1.8 GHz. This proposed sensor can keep good sensitivity because the permeability was picked up in only the skin area of the magnetic thin film even if the dc field was not uniform inside the film.

Reference

- 1) S. Yabukami *et al*, *Journal of the Magnetics Society of Japan*, 38, 25(2014).

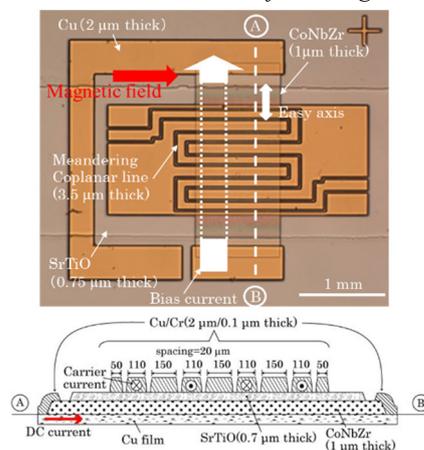


Fig. 1 Schematic view of the sensor.

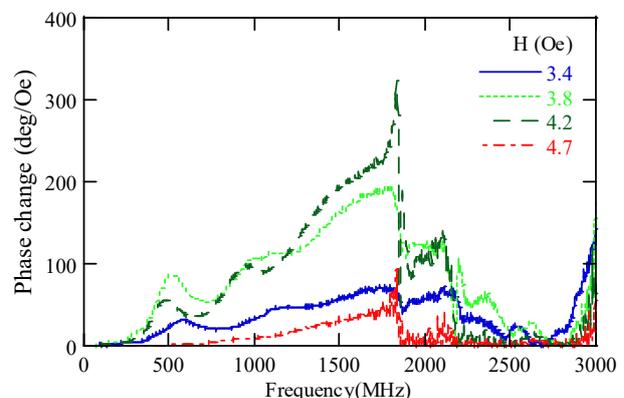


Fig. 2 Phase change of sensor output.

Diamond quantum sensor towards robust biosensing

Yuta Masuyama

(National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology)

Nitrogen-vacancy (NV) centers in diamond is a promising solid-state quantum sensor working at room temperature. The quantum sensor is a sensor that measures the physical quantity such as magnetic field by using the energy change of qubits [1]. By constructing an appropriate measurement system, the quantum sensor achieves high sensitive measurement with the quantum-limited noise. Thanks to the property of the diamond that is a wide bandgap semiconductor, the quantum coherence of the qubits maintains under a wide range of temperatures and pressures, including under room temperature and atmospheric pressure. This characteristic enables us to use the sensor for various applications including operating in vivo and extreme environments.

A highly sensitive sensor is used to detect small biological signals such as the magnetic field from the brain. However, the sensor detects noise sensitively as well as target signals. Thus, many kinds of highly sensitive sensors are limited to use in specific environments, e.g., magnetically shielded enclosures. The requirement of the magnetically shielded enclosure prevents the spread of technology due to its high cost and size. Noise can be environmental noise, control and measurement fluctuations in the sensor system, and noise from the sensor material. There are two ways to achieve robust biosensing against the noises. One is to reduce noise, and the other is to place the sensor as close as possible to the signal source.

We have developed a technology to reduce the environmental noise for the diamond quantum magnetometer with a large sensor volume by quantum operation using an enhanced microwave field [2]. The quantum operation work as a noise rejection filter for AC magnetic field sensing that enables us to achieve the magnetic field sensing with an AC magnetic field sensitivity of $3.6 \text{ pT} / \sqrt{\text{Hz}}$. For the sensing of DC magnetic signals, we have developed the gradiometer configuration [3]. Without any magnetically shielding, our gradiometer realizes a magnetic noise spectrum comparable to that of a three-layer magnetically shielded enclosure, reducing the noises at the low-frequency range below 1 Hz as well as at the frequency of 50 Hz (power line frequency) and its harmonics.

We are also improving the quality of the material for the diamond quantum magnetometer. The high-quality material improves the quantum coherence time of the NV center by reducing the spin noise from the material. Our institute has a technology of electron irradiation with high temperature and ion implantation. We constructed a fast evaluation system suitable for the material evaluation of the diamond quantum magnetometer, and are researching the relationship between NV center generation efficiency and coherence time by the electron beam irradiation.

Another method of noise reduction, i.e., bringing the sensor closer to the target, is quantum sensing using nanometer-scale diamonds. The NV center in a nanometer-scale diamond works as the quantum sensor, enabling us to inject the nanometer-scale diamond quantum sensor into a cell. The NV center can detect not only the magnetic field but also pH [4]. Thus, the nanometer-scale diamond quantum sensor gives us the local biological information.

Reference

- 1) C. L. Degen *et al.*, Rev. Mod. Phys. **89**, 035002 (2017)
- 2) Y. Masuyama *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **89**, 125007 (2018)
- 3) Y. Masuyama *et al.*, Sensors **21**, 977 (2021)
- 4) T. Fujisaku *et al.*, ACS nano **13**, 11726 (2019)

Approaches to noise reduction of optically pumped magnetometers

Y. Ito and T. Kobayashi

(Kyoto University, Kyoto 615-8510, Japan)

Optically pumped magnetometers (OPMs) have extremely-high sensitivity comparable to the magnetometers with superconducting quantum interference devices (SQUIDs). The intrinsic sensitivity of the OPMs is limited by shot noise¹⁾:

$$\delta B \approx \frac{1}{\gamma \sqrt{nT_2 V t}}, \quad (1)$$

where γ is gyromagnetic ratio, n is atomic density, T_2 is relaxation time, V is sensing volume, and t is measurement time. δB is calculated as $\sim 10^{-17}$ T with the typical parameters in the spin-exchange relaxation-free (SERF) regime²⁾. However, the sensitivity of practical OPMs has not reached such shot-noise limit yet. The OPMs in practical situation are affected by magnetic, optical, and electric noises, as shown in Fig. 1. The electric noise originating from electric circuits in the probe-beam detectors can be suppressed by low-noise and high-gain amplifiers. We fabricated the amplifier circuits for multi-channel OPMs, and obtained the converted electric noise of $4.0 \text{ fT/Hz}^{1/2}$ in 10 channels³⁾.

The optical noise is caused by convection effects in the probe beam path. To avoid such convection effects, enclosing the optics and the beam path is effective. In Fig. 1, we used a balanced amplified photodetector to detect the probe beam because it is convenient and free from extra electronics comparing to the detection method of the modulated probe beam and a lock-in amplifier, although the method using modulation can suppress the $1/f$ noise. In addition, we proposed hybrid cells enclosing two types of alkali-metal atoms such as K and Rb⁴⁾. With the hybrid cell, the pumped atoms and the probed atoms are different, so that the probed atoms are immune to fluctuation caused by the pump beam⁵⁾. Liu *et al.* reported that theoretical sensitivity of the OPM with a hybrid cell reaches $1.8 \times 10^{-2} \text{ aT}^6)$.

The magnetic noise is eliminated with high-performance magnetic shields and gradiometer configuration. The magnetic shields are extremely expensive, so that the gradiometer configuration is actively investigated. The best sensitivity of $0.16 \text{ fT/Hz}^{1/2}$ is also recorded by the gradiometer configuration⁷⁾. We investigated two types of gradiometer configuration: optical gradiometer configuration⁸⁾ and differential measurement with balanced response⁹⁾. These methods can effectively reduce the magnetic noise.

Recently, Limes *et al.* reported MCG and MEG operated with pulsed OPMs with gradiometer configuration under ambient environment¹⁰⁾. They achieved $15.7 \text{ fT/cm/Hz}^{1/2}$ in Earth's ambient environment. These results suggested that the OPM research are moving to the next step.

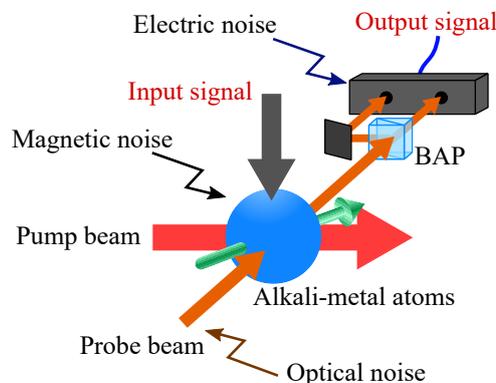


Fig. 1 Illustration of the pump-probe type OPM. BAP is a balanced amplified photodetector. The pump beam causes spin polarization of the alkali-metal atoms and the probe beam reads the fluctuation of the spin polarization caused by the input magnetic fields.

References

- 1) D. Budker, W. Gawlik, D. F. Kimball, S. M. Rochester, V. V. Yashchuk and A. Weis: *Rev. Mod. Phys.*, **74**, 1153-1201 (2002).
- 2) J. C. Allred, R. N. Lyman, T. W. Kornack and M. V. Romalis: *Phys. Rev. Lett.*, **89**(13), 130801 (2002).
- 3) K. Nishi, Y. Ito and T. Kobayashi: *Opt. Express*, **26**(2), 1988-1996 (2018).
- 4) Y. Ito, H. Ohnishi, K. Kamada and T. Kobayashi: *IEEE Trans. Magn.*, **47**(10), 3550-3553 (2011).
- 5) M. V. Romalis: *Phys. Rev. Lett.*, **105**(24), 243001 (2010).
- 6) J.-H. Liu, D.-Y. Jing, L.-L. Wang, Y. Li, W. Quan, J.-C. Fang and W.-M. Liu: *Sci. Rep.*, **7**(1), 6776 (2017).
- 7) H. B. Dang, A. C. Maloof and M. V. Romalis: *Appl. Phys. Lett.*, **97**(15), 151110 (2010).
- 8) K. Kamada, Y. Ito, S. Ichihara, N. Mizutani and T. Kobayashi: *Opt. Express*, **23**(5), 6976-6987 (2015).
- 9) S. Ichihara, N. Mizutani, Y. Ito and T. Kobayashi: *IEEE Trans. Magn.*, **52**(8), 4002709 (2016).
- 10) M. Limes, E. Foley, T. Kornack, S. Caliga, S. McBride, A. Braun, W. Lee, V. Lucivero and M. Romalis: *Phys. Rev. Appl.*, **14**(1), 011002 (2020).

Temperature Dependence of Specific Heat of EuSn_2As_2 , a 2D Antiferromagnetic Compound

W. Lee¹, R. Sakagami¹, K. Hirata¹, M. Matoba¹, Y. Kamihara¹

¹Dep. Applied Physics and Physico-Informatics, Keio University, Japan

After the discovery of graphene in 2004, 2D magnetic materials have earned a great interest among condensed matter physicists and material engineers due to their fascinating magnetic properties. The 2D magnetic materials have proven that they are worth of investigating as they gave birth to van der Waals materials or topological insulators. They are the type of materials that will introduce the new era for information and semiconductor technology.

The previous paper by R. Sakagami et al.^{1,2} demonstrated that EuSn_2As_2 samples were prepared from Eu ingots and Sn-As pallets through a liquid phase reaction in carbon crucibles within vacuum silica tubes.¹⁾ The resulting crystal structure of EuSn_2As_2 has a sandwich shape where top and bottom layers are Eu, and SnAs bilayer is positioned in between Eu layers.

After successful synthesis, heat capacity measurement was performed through physical property measurement system (PPMS) from Quantum Design Inc. As shown in Figure 1, we observed that there was a sudden increase of heat capacity around 24 K which implies that antiferromagnetic transition occurred. It is noted that the heat capacity of EuSn_2As_2 tends to follow Dulong-Petit limit at high temperature which means ultimately it would reach $C = 3nR$ where n is the number of atoms per formula and R is the molar-gas constant. Nevertheless, at sufficiently low temperature, Dulong-Petit law does not hold anymore. It is necessary to take account for lattice vibration which is involving Debye model into our formula to obtain a value of electronic heat capacity⁴⁾, Sommerfeld constant. In the conference, we will demonstrate a Sommerfeld constant for polycrystalline EuSn_2As_2 .

Acknowledgement

This work was performed using facilities of the Institute for Solid State Physics, the University of Tokyo.

References

- 1) R. Sakagami, Y. Goto, Y. Mizuguchi, M. Matoba, and Y. Kamihara, Master. Sci. Tech. Jpn. 55, 72-76 (2018).
- 2) R. Sakagami, Y. Goto, H. Karimata, N. Azuma, M. Yamaguchi, S. Iwasaki, M. Nakanishi, I. Kitawaki, Y. Mizuguchi, M. Matoba, and Yoichi Kamihara, J. J. Appl. Phys. 60, 035511 (2021).
- 3) K. Hirata, Master thesis (Keio University, 2021).
- 4) S. Pakhira, M. A. Tanatar, T. Heitmann, D. Vaknin, and D. C. Johnston, arXiv:2106.10519 (2021).

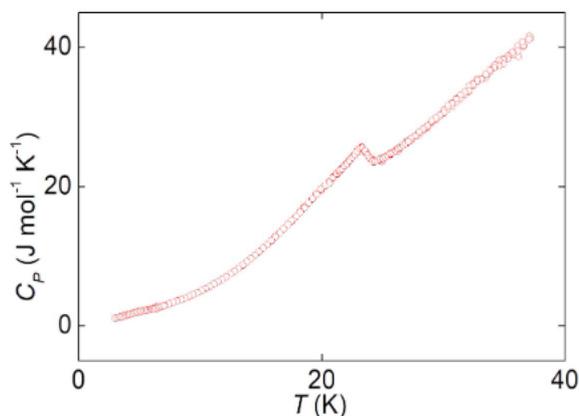


Fig.1 Specific heat (C_p) as a function of temperature for polycrystalline EuSn_2As_2 .³

層状秩序型 NiAs 型ニクタイトの磁気特性

○ 村上 泰斗, 斉藤 伸 (東北大学), 陰山 洋 (京都大学)

Structure and magnetic properties of metal-ordered NiAs-type pnictides

Taito Murakami, Shin Saito (Tohoku University), Hiroshi Kageyama (Kyoto University)

はじめに ヒ化ニッケル(NiAs)型構造は As が六方最密充填し、その八面体間隙を Ni が占めた構造をとっており、岩塩(NaCl)型構造と並んで三次元的な結晶構造の代表例として知られている。NiAs 型構造には NaCl 型とは異なり隣接する層間に金属結合が存在するため、これに起因した様々な物性を示す物質が知られている^[1]。NiAs 型構造において金属が層状に秩序化した場合、隣接した金属結合が切断され異方的な物性が得られることが期待されるが、こうした例はこれまでカルコゲナイド^[2-5]および少数のスズ化物^[6]に限られており、ニクタイトにおいて金属元素が秩序化した例は殆ど知られていなかった。我々は Hf と Mn が層状に秩序化したニクタイト HfMnSb₂ と HfMnAs₂ の合成に成功したため、その結晶構造および磁気物性について報告する。

実験方法 HfMnSb₂ および HfMnAs₂ は固相法により合成した。原料元素の粉末を窒素雰囲気下のグローブボックス内において化学量論比に従い混合、ペレット化したのち、石英管内に真空封入し 800 °C で 24-48 時間焼成した。得られた多結晶粉末試料は X 線回折(XRD)測定により同定した。さらに、シンクロトロン XRD 測定を行い、Rietveld 解析により結晶構造解析を行った。磁化測定、電気抵抗測定により物性を評価した。HfMnSb₂ については中性子回折測定を行い、磁気構造を決定した。また、WIEN 2k コードを用いた第一原理計算を行った。

実験結果 X 線回折測定より、得られた粉末試料は MnSb (NiAs 型構造)と同じ六方晶の対称性を持つことが分かったが、NiAs 型構造(空間群 $P6_3/mmc$)に見られる消滅則が見られなかった。このことは、金属元素が c 軸方向に層状に秩序化していることを示唆する。金属秩序 NiAs 型構造(空間群 $P3-m1$)を仮定した Rietveld 解析の結果から同構造を持つニクタイト化合物 HfMnSb₂ および HfMnAs₂ が得られたと結論付けた(図 1)。

磁化率測定および Arrott プロットの結果から、HfMnSb₂ は $T_c = 270$ K において強磁性転移を起こすことが分かった。この転移温度は NiAs 型構造を持つ MnSb ($T_c = 587$ K)や MnBi ($T_c = 628$ K)のものよりも低く、HfMnSb₂ の二次元的な構造を反映していると考えられる。一方で、低温での磁化の磁場依存性の測定結果からは $H_c \sim 2$ T 以下において磁化プラトーが観測され、基底状態がフェリ磁性的であることが分かった。低温での磁気構造を明らかにするために中性子回折測定を行った結果、 $k = [0,0,\delta]$ ($\delta \sim 0.14$) で表される磁気反射が観測された。これらの結果より

HfMnSb₂ は図2に示すようにコニカルな磁気構造をとっていると結論付けた。他の Mn 系ニクタイトが三次元的な構造及び強磁性転移を示すことから、HfMnSb₂ のコニカル磁気構造は金属元素が層状に秩序化することにより引き起こされたと考えられる^[7]。一方、HfMnAs₂ は 350 K 程度で強磁性転移を起こすことが分かり、層間の Mn-Mn 距離に応じて磁気物性が顕著に変化することを明らかにした。

参考文献 1) K. Motizuki et al. *Springer Ser. Mater. Sci.* 2009, **131**, 1. 2) G. D. Guseinov et al. *Mater. Res. Bull.* 1969, **4**, 807. 3) H. Bolleret et al. *Mater. Res. Bull.* 1995, **30**, 365. 4) L.D. Gulay et al. *J. Alloys. Compd.* 2007, **431**, L1. 5) V. Y. Shemet et al. *J. Alloys Compd.* 2006, **426**, 186. 6) S. Lange et al. *Z. Anorg. Allg. Chem.* 2006, **632**, 1163. 7) Taito Murakami et al. *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2016, **55**, 9877-9880.

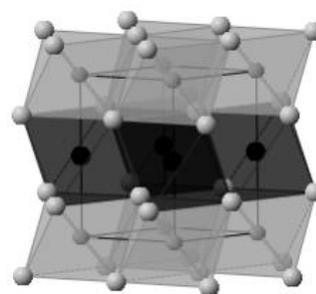


Fig. 1 Crystal structure of metal-ordered NiAs type compound

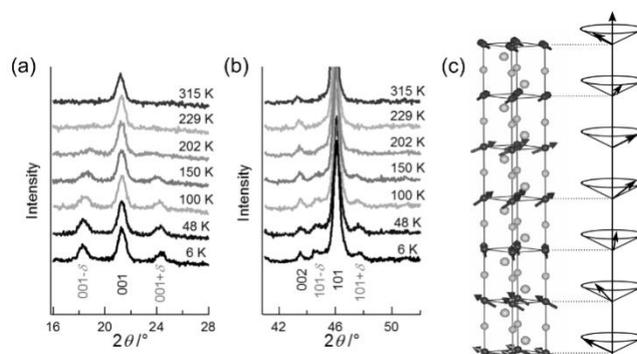


Fig. 2 Temperature dependence of magnetic peaks near (a) 001 and (b) 101 reflections. (c) Conical magnetic structure of HfMnSb₂

不純物をドーピングしたヘマタイト薄膜のモーリン転移の スピンホール磁気抵抗効果による検出

田中 雅章, 横山 幸季, 石井 千森, 藤井 一樹, 古田 旭宏, 壬生 攻
(名古屋工業大学)

Detection of the Morin transition in impurity doped hematite films using spin Hall magnetoresistance
Masaaki Tanaka, Koki Yakoyama, Kazushige Ishii, Kazuki Fujii, Akihiro Furuta, and Ko Mibu
(Nagoya Institute of Technology)

コランダム構造の絶縁体であるヘマタイト($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$)では、磁気モーメントがc軸方向に向く反強磁性からc面方向に傾く弱強磁性への転移であるモーリン転移が室温付近で発現する。ヘマタイトのモーリン転移温度 T_M はIrやRuなどの微量の不純物をドーピングすることで上昇し、薄膜化すると低下する¹⁾。ヘマタイト薄膜を垂直磁化型スピントロニクスデバイスの反強磁性材料に用いるには T_M を室温より十分高くする必要があるが、厚さ数十nm以下の薄膜試料の T_M の変化を磁化測定で調べることは難しく、 T_M 向上のためのドーピング材料の探索が難しい。本研究では磁性絶縁体/非磁性金属積層膜において、絶縁体表面の磁気モーメントの向きに依存してその抵抗率が変化するスピンホール磁気抵抗(SMR)効果²⁾を用いて不純物ドーピングのヘマタイト薄膜のモーリン転移温度 T_M の検出を行った。

$\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ 基板にRuを5%ドーピングした50nmヘマタイト薄膜をYAG2倍波長のレーザーを用いたパルスレーザー堆積法で製膜し、その上部にメタルマスクを用いた電子ビーム蒸着で厚さ2.5nmのPt細線パターンを作製した。Fig.2の挿入図に示すようにxy平面、xz平面、yz平面で試料を α 回転、 β 回転、 γ 回転して、0.25Tの外部磁場方向に対する回転角 α 、 β 、 γ におけるPt電極の抵抗 $R(\alpha)$ 、 $R(\beta)$ 、 $R(\gamma)$ を測定した。

Fig.1に200K~350Kの α 回転の抵抗変化率 $R(\alpha)/R(90^\circ)-1$ の結果を示す。260K以下では α 回転をしても抵抗値に変化は見られないが、280K以上では外部磁場を-y軸方向からx軸方向に変化させると0.15%程度抵抗変化率が減少する。Fig.2に α 、 β 、 γ 回転に対する $R(90^\circ)$ と $R(0^\circ)$ の抵抗変化率 $R(0^\circ)/R(90^\circ)-1$ の値の温度依存性を示す。 α 、 β 、 γ 回転すべてにおいて270K以上では抵抗変化率が変化している。これは T_M 以上の弱強磁性状態では外部磁場に対してほぼ垂直方向に磁気モーメントが向くために、磁場に対する試料の回転に伴い電流に対する磁気モーメントの向きが変わりSMRが変化したためと考えられる。発表ではメスbauer分光法による磁性評価の結果と合わせて議論する。

参考文献

- 1) N. Shimomura *et al.*, J. Appl. Phys. **117**, 17C736 (2015). 2) R. Lebrun *et al.*, Comm Phys. **2**, 50 (2019).

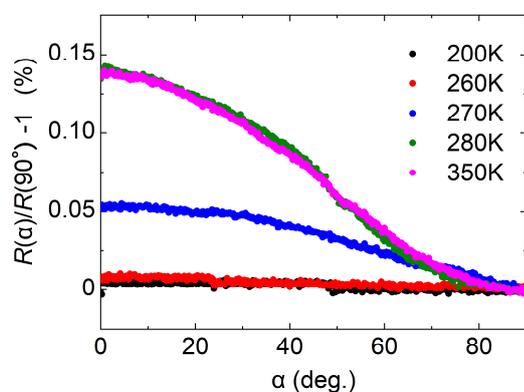


Fig.1 Angle dependence of the resistance change ratio at various temperatures.

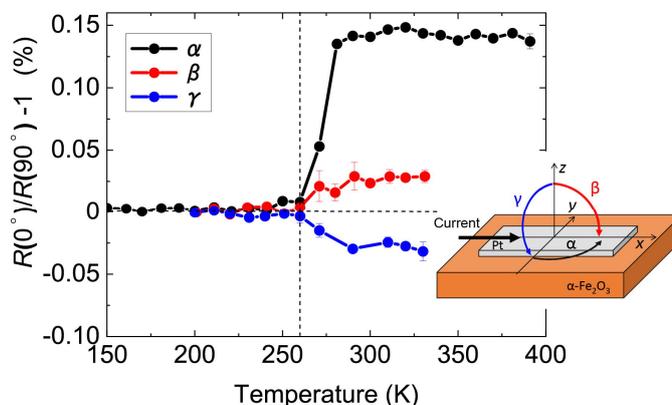


Fig.2 Temperature dependence of “ $R(0^\circ)/R(90^\circ)-1$ ”.

The insert is the schematic illustration of the experimental setup.

CoCrPt 系磁気・電気力顕微鏡探針の作製とそれを用いた 強磁性・強誘電薄膜の磁区・分域構造観察

江川元太, 細谷亮太, 大下直哉, 吉村 哲

秋田大

Fabrication of CoCrPt-based magnetic / electric force microscope tip and
observation of domain structure of ferromagnetic / ferroelectric thin films using the tip

G. Egawa, R. Hosoya N. Oshita and S. Yoshimura

(Akita Univ.)

はじめに 強磁性・強誘電材料薄膜は革新的な電界駆動型の次世代記録デバイス用材料としての可能性を秘めており、電界印加により形成された記録ビットの磁化状態を観察することが必要となっている。その観察には磁気力顕微鏡 (MFM) を用いことで評価を簡便に行うことが可能であるが、MFM に使用する「磁性探針」は種類が極めて少なくかつ磁気特性も不明なものが多く、強磁性・強誘電薄膜の評価に適しているかどうか不明である。本研究では、Si 探針母材に成膜する磁性薄膜として、組成制御や成膜条件により飽和磁化 (M_s) および保磁力 (H_c) を変化させることができる CoCrPt 系金属磁性薄膜に着目して、種々の磁気特性を有する探針を作製し、適する M_s , 高い H_c を併せ持つ探針を選定することで、強磁性・強誘電薄膜の磁区および分域構造の観察を行った。

方法 探針に成膜する CoCrPt 系薄膜の磁気特性の測定のため、平板基板を用い、基板加熱 (300-600 °C) しながら、Ar ガス圧: 10 mTorr, 成膜電源: DC (50 W), 膜厚: 30 nm の条件で、CoCrPt 系薄膜の成膜を行った。CoCrPt 系薄膜の組成は、Co₈₀Cr₂₀ ターゲットに Cr, Pt シートを配置し、その数により組成を変化させた。薄膜の磁気特性の評価は振動試料型磁束計 (VSM) を用いた。そして、得られた結果から M_s が約 500, 700, 900 emu/cm³ の薄膜を選定して、同一条件にて CoCrPt 薄膜を Si 探針に成膜し、磁気・静電気力顕微鏡探針を作製した。強磁性・強誘電薄膜の磁区・分域構造の観察には (Bi,La)(Fe,Co)O₃ (BLFCO) 薄膜¹⁾ ($M_s \perp$: 70 emu/cm³, $H_c \perp$: 1.8 kOe, 膜厚: 260 nm) を試料として用いた。測定は、まず BLFCO 薄膜に走査型プローブ顕微鏡 (SPM) のコンタクトモードで 3 μm×3 μm の走査範囲で電界を印加して書き込みを行い、その後、MFM, 静電気力顕微鏡 (EFM) で、電界書き込みを行った部分を中心に 6 μm×6 μm の走査範囲の磁区構造および分域構造の観察を行った。電界書き込み時には -10 V, EFM 測定時には -1 V の電圧を印加して行った。

結果 Fig. 1 に、 M_s が約 500, 700, 900 emu/cm³ の探針で測定した MFM の位相像と EFM の位相像の結果を示す。像 (a)・(b) が M_s 約 500 emu/cm³, 像 (c)・(d) が M_s 約 700 emu/cm³, 像 (e)・(f) が M_s 約 900 emu/cm³ の探針で測定した MFM・EFM の位相像となる。MFM の位相像においては、いずれの探針を用いた場合でも、電界書き込みを行った部分の位相は他の部分の位相に対して明るくなっており、想定通りの「正」であった。また、図には示していないが、探針の磁化が大きくなるに従い、位相差も大きくなった。一方、EFM の位相像においては、500, 700 emu/cm³ の探針の場合と 900 emu/cm³ の探針とは明暗が逆転しており、位相差の符号に違いが生じた。今回の電界書き込みは -10 V で行ったため、BLFCO 薄膜の表面付近に + の電荷が帯電する。そして、EFM 測定時には探針に -1 V の電圧を印加したため、書き込みを行った部分と探針には引力が生じ、全ての探針で同じ極性「負」となることを想定していた。だが、900 emu/cm³ の探針で測定した EFM 像では位相の極性が想定から反転している。よって、今回の (Bi,La)(Fe,Co)O₃ 薄膜の磁区・分域構造の観察では、明瞭な MFM 像および EFM 像を得るためには、測定に用いた3つの探針の中で約 700 emu/cm³ 程度の M_s を有する探針が最も適していることがわかった。講演では、900 emu/cm³ の探針を用いて測定した EFM 像の位相において、想定された極性と異なった原因について検討した結果も述べる予定である。

参考文献 1) M. Kuppan et al., Scientific Reports, Vol.11, p.11118 (2021)

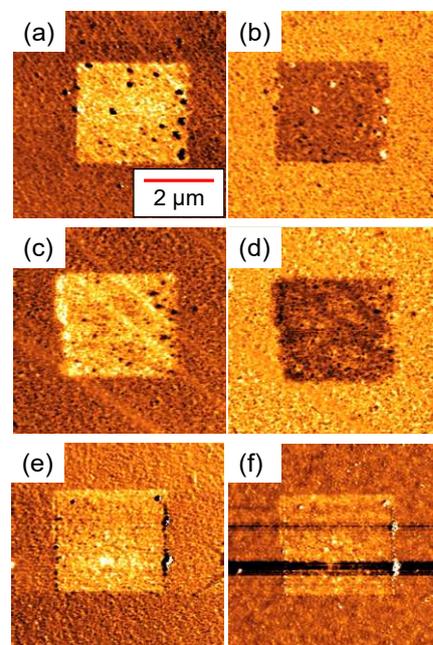


Fig. 1 (a), (c), and (e) are MFM images, (b), (d), and (f) are EFM images of (Bi,La)(Fe,Co)O₃ film. (a) and (b) are observed by tip with 500 emu/cm³, (c) and (d) are observed by tip with 700 emu/cm³, (e) and (f) are observed by tip with 900 emu/cm³.

有機無機層状桂皮酸コバルト水酸化物の構造と磁性

齋藤桂、市村奏絵、安田有智、木田孝則*、萩原政幸*、本多善太郎

(埼玉大院理工、*阪大先端強磁場)

Magnetic properties and crystal structures of organic-inorganic layered cinnamo cobalt hydroxides

K. Saito, K. Ichimura, A. Yasuta, T. Kida*, M. Hagiwara*, and Z. Honda

(Saitama Univ., *AHMF, Osaka Univ.)

はじめに

有機無機層状水酸化物は有機アニオン層と金属水酸化物層が交互に無限積層した化合物であり、多様な磁性を示すことから興味もたれる。我々はこれまでに有機層に桂皮酸(略称 cin)を有する層状遷移水酸化物の合成に成功し、その磁性を調べたところ、層状コバルト水酸化物は巨大保磁力を有するフェリ磁性、層状銅水酸化物は強磁性を示すことを明らかにした。今回我々は巨大保磁力を示す層状コバルト水酸化物の構造の詳細を電子顕微鏡等で調べるとともに各種桂皮酸誘導体を用いて層状コバルト水酸化物を合成し、その磁性を比較した。また、双性イオン(正電荷と負電荷の両方を持つ分子)であるアミノ桂皮酸を有機層にした層状コバルト水酸化物を合成し、pH 調整により層の剥離を試みた。

実験方法

硝酸コバルトと cin 及びその誘導体 Xcin ($X=4\text{-Cl}$, 4-CH_3 , 4-NH_2) のエタノール溶液を各種条件下で加熱することにより有機無機層状水酸化物の合成を試みた。反応生成物の結晶構造の同定に粉末 X 線回折(XRD)法、透過型電子顕微鏡(TEM)を用い、組成の同定に示差熱・熱重量測定と化学組成分析を行った。また、超伝導量子干渉素子磁束計を用いて各種錯体の磁気測定を行った。さらに、アミノ桂皮酸層状コバルト水酸化物を蒸留水中で攪拌することで層剥離を試みた。

実験結果

硝酸コバルトと各種 cin 誘導体をエタノール中 100 °C で加熱したところ、XRD 高次反射を示すページュ色粉末を得た(図 1)。TEM 像には XRD 回折線と一致する層間隔約 20 Å に相当する縞模様がみられた。これは cin 分子の長さ(8.4 Å)の約 2 倍となっており、有機層に桂皮酸 2 分子が含まれる構造が同定された。さらに、粉末 XRD 等により無機層内構造の同定を行った。その結果、 CoO_6 八面体が点、辺共有した構造であることが判明した。これらの錯体の磁気測定を行ったところ、いずれも温度 47 K 以下で温度の減少と共に磁化率が急激に増加し、温度 2 K の磁化曲線には非常に大きな保磁力の磁気履歴が見られた(図 2)。さらに、アミノ桂皮酸層状コバルト水酸化物を蒸留水中で攪拌したところ、チンダル現象を示したことから層剥離が示唆される。当日詳細を報告する。

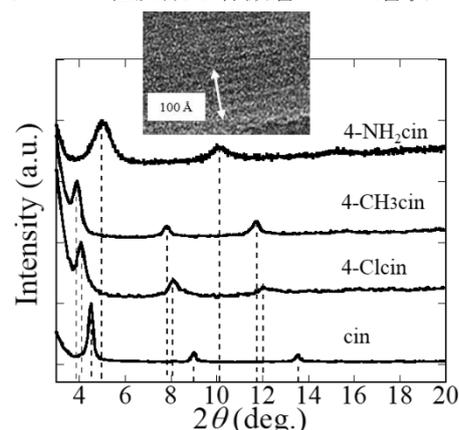


Fig. 1. XRD and TEM image of the layered cinnamo cobalt hydroxides

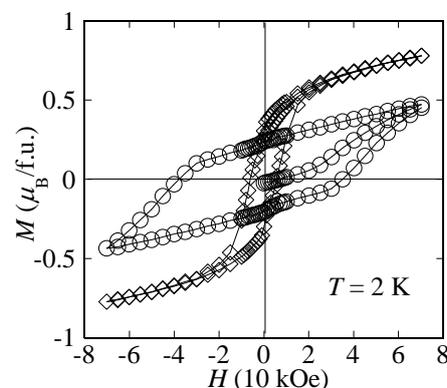


Fig. 2. Magnetization M vs. magnetic field H curves of the layered cinnamo cobalt hydroxides (○: $\text{Co(OH)}_{1.2}(\text{cin})_{0.8}$, ◇: $\text{Co(OH)}_{1.5}(4\text{-NH}_2\text{cin})_{0.5}$)

鉄系超伝導体 $\text{SmFeAsO}_{0.77}\text{H}_{0.14}$ の磁氣的性質

川松拓也, 堀地竜成, 的場正憲, 神原陽一

慶應義塾大学 理工学部 物理情報工学科

Magnetic Characteristics of Iron-based Superconductor $\text{SmFeAsO}_{0.77}\text{H}_{0.14}$

Takuya Kawamatsu, Ryusei Hotchi, Masanori Matoba, Yoichi Kamihara

Department of Applied Physics and Physico-Informatics, Faculty of Science and Technology, Keio University

1. はじめに

超伝導は転移温度以下で電気抵抗が 0 になる現象で, 超伝導磁石や送電線に応用されている. 今回扱う鉄系超伝導体 $\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{H}_x$ は, SmO 層と FeAs 層が積み重なった構造を取る. 水素負イオンをドーピングすると生じた電子が鉄の反強磁性相を消し, 55 K 以下で超伝導相になる. 水素負イオンドーピングは多量の電子を供給でき, 超伝導転移温度を上げることが可能となる利点がある. LaFeAsO 由来の超伝導体は転移温度が約 7 K 上昇して 35 K になる^[1]. 我々は試料 $\text{SmFeAsO}_{0.77}\text{H}_{0.14}$ の磁気測定により, この試料の臨界電流密度を明らかにした.

2. 実験方法

試料の合成は Sakai の報告による^[2]. 試料について超伝導量子干渉計で磁気測定を行い, 5 K から 300 K における磁気履歴曲線(M-H Loop)を測定した. 得られた M-H loop から, 拡張 Bean モデルを用いて臨界電流密度(J_c)を算出する^[3].

$$\Delta M = \frac{tJ_{c1}}{20} \left(1 - \frac{tJ_{c1}}{3lJ_{c2}} \right) \quad (1)$$

ここで l, t は試料の短辺と長辺の長さ(mm), ΔM は M-H Loop の幅, J_{c1} と J_{c2} はそれぞれ l, t 方向の臨界電流密度である. また磁束密度 B を用いて磁束のピン止め力 F_p を算出する^[4].

$$F_p = J_c \times B \quad (2)$$

3. 実験結果

Fig1 は 10 K における M-H Loop を示す. 下部臨界磁場は 159 kA/m と求めた. また, 70 K のとき常伝導相であると考えられるが, 実際の M-H Loop の測定結果は 100 K を超えても自発磁化を示す成分が観測された (Fig2). この要因が主相と異相のどちらに起因するかを学会で報告する.

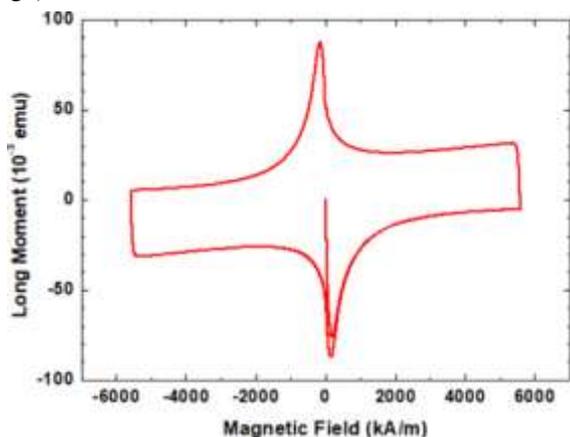


Fig1. M-H Loop of $\text{SmFeAsO}_{0.77}\text{H}_{0.14}$ at 10 K.

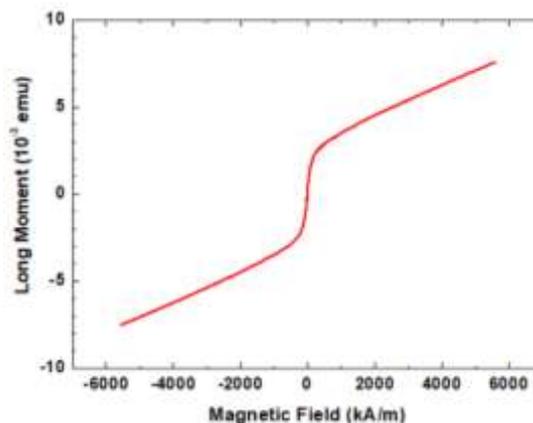


Fig2. M-H Loop of $\text{SmFeAsO}_{0.77}\text{H}_{0.14}$ at 100 K.

参考文献

- 1) M. Miyazawa *et al.*, Appl. Phys. Lett. **96**, 072514_1-3(2010).
- 2) Y. Sakai, Doctor thesis (Keio Univ., 2015).
- 3) E. M. Gyorgy *et al.*, Appl. Phys. Lett. **55**, 283-285(1989).
- 4) H. Basma *et al.*, J. Supercond. Novel Mag. **32**, 3065(2019).

EuSn₂P₂ の多結晶合成

劉子豪, 坂上良介, 神原陽一
慶應義塾大学理工学部 物理情報工学科

Synthesis of polycrystalline EuSn₂P₂

by

Zihao LIU, Ryosuke SAKAGAMI, Yoichi KAMIHARA

Dep. Applied Physics and Physico-Informatics, Keio university, Japan

緒言

Goldsmid と Douglas による Bi₂Te₃ 系材料の開発¹以来, 60 年以上, 実用を目指した熱電変換の研究は, 材料の素子化やモジュール化に重点が置かれた. 近年は新たな結晶構造の材料候補が提案されつつけている. 磁性トポロジカル絶縁体としての物性の有無についての議論^{2,3}のある 2 次元磁性体 EuSn₂Pn₂ は, 熱電変換性について Sakagami らにより報告された.^{4,5} EuSn₂Pn₂ は, 層状構造をとる点, 空間群が R3m である点, vdW 結合を有する点, および, 孤立電子対を有する点で, Bi₂Te₃ の結晶と共通する特徴を示す. この層状化合物においては, 孤立電子対に起因する熱伝導率低減が着目されている.

実験方法

Eu は購入時, 油漬されているため, 短時間, アセトンで超音波洗浄し, その表面をキムワイプで拭き取り, アルゴン雰囲気の中へ移動して使用した. Eu は金属ヤスリを用いて, 粉末化した. P 粒を, めのう乳鉢・乳棒で摩砕し得られた P 粉末と, Sn 粉末を, 化学量比で Sn : P = 1 : 1 になるように, かつ, Sn 及び P の合計の質量が 0.6623 g になるように秤量し, めのう乳鉢・乳棒で混合・摩砕した. その油圧 20MPa の一軸加圧でペレット状に成型し, Sn-P ペレットを得た. 化学量論比で Eu:Sn:P=1:2:2 となるように, Sn-P ペレットと Eu 片を, カーボンるつぼ内に入れた. これらの作業は GB 内で行った. 得られた出発物入りカーボンるつぼを石英ガラス管内に真空封入し, 熱処理した. 熱処理後, 石英ガラス管を割り, 試料入りカーボンるつぼを取り出した. これをアルミ箔で包みハンマで叩き割り, 試料を回収した. 切り出された試料片を, めのう乳鉢・乳棒で粉砕し, XRD 測定し相同定した.

結果

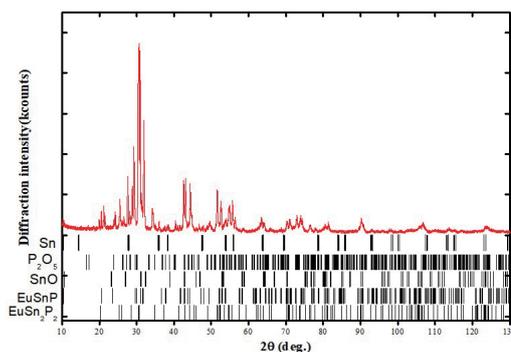


Fig.1 XRD patterns of EuSn₂P₂ samples. The vertical bars at the bottom represent calculated positions of Bragg diffractions of EuSn₂P₂

Fig.1 は得られた試料の粉末 XRD パターン.

参考文献

- 1) H. J. Goldsmid and R. W. Douglas, Brit. J. Appl. Phys. 5, 386 (1954).
- 2) L. Hang et al, Phys. Rev. X 9, 041039 (2019).
- 3) H.-C. Chen, et al, Chin. Phys. Lett. 37, 047201 (2020).
- 4) 坂上良介 et al, 材料の科学と工学 55,72(2018).
- 5) R. Sakagami, et al, J. J. Appl. Phys. 60, 035511,1 (2021)
- 6) Xin Gui, et al, ACS Cent.Sci 5,900(2019)

拡張型自由エネルギーモデルに基づく

強磁性形状記憶合金の磁氣的・力学的機構の解析

○佐藤 駿丞¹、仙井 遼平¹、Alexandre Lira Foggiatto¹、増澤 賢¹、三俣 千春²、小嗣 真人¹

¹東理大先進工、²物質・材料研究機構

Analysis of magnetic and mechanical mechanisms of ferromagnetic shape memory alloys based on extended free energy model

(M1)Shunsuke Sato¹, (M2)Ryohei Sen¹, (P)Alexandre Lira Foggiatto¹, Ken Masuzawa¹, Chiharu Mitsumata², Masato Kotsugi¹

¹Tokyo Univ. of Science, ²NIMS

強磁性形状記憶合金(FSMA)は磁歪効果を利用したエネルギー変換材料であり、IoT 機器のセンサーやアクチュエーターを支える磁性材料として注目されている^[1]。FSMA の磁歪効果は、応力・磁場によりマルテンサイト組織内で結晶学的再配向が促進される現象として知られている^[1,2]。その一方で、磁歪効果の理解には、巨視的な歪みと磁化の関係性だけでなく、マルテンサイト双晶と磁区構造の微細組織の関係性が重要となるが、微細組織の解析は極めて定性的で、定量的な解析が十分でない。

そこで本研究では、拡張型自由エネルギーモデルを用いて微視的な磁区構造と巨視的な磁氣的エネルギーの双方向接続を試みた^[3]。本モデルは情報空間上に自由エネルギーを描画するのが特徴であり、パーシテントホモロジー (PH) やフーリエ変換 (FFT) で抽出した形の特徴量を説明変数として用いる。研究では、特徴量と磁気弾性エネルギーの関係性を解析し、FSMA のメカニズム解析を試みた。

研究では代表的な FSMA の一つである Fe-31.2at%Pd を対象に、Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG)方程式と時間依存の Ginzburg-Landau (TDGL)方程式を組み合わせ、磁気弾性エネルギーを共有しながら、磁区構造とマルテンサイト組織を計算した。条件として段階的に一軸応力を印加し、一連のデータセットを得た。機械学習では PH、FFT を用いた特徴量抽出の後、主成分分析で次元削減を行った。

Fig.1 に FSMA の磁区構造と磁気弾性エネルギーの関係を示す。磁区構造の磁壁が磁気弾性エネルギーの高い領域と対応しており、既往の磁歪現象を正しくシミュレートできていることがわかる^[4]。

また主成分分析による次元削減結果を Fig.2 に示す。各点は双晶境界の数で 3 領域に分類され、双晶境界の数とよく対応することが確認できる。また応力の増加に伴い、PH の PC1 が減少し、FFT の PC1 が増大するように変化している。この結果は、PH で短距離秩序に相当する双晶境界の減少を、FFT で長距離のストライプ状の磁区相の変化を上手く捉えられていることを意味する。さらに磁気弾性エネルギーの変化ともよく対応している。

本研究では、PH、FFT 及び PCA を組み合わせた解析によって、FSMA の磁氣的・力学的機構における磁区構造と磁氣的エネルギーを対応付けたエネルギーモデルによる議論が可能となり、今後は、外部磁場印加や実材料を対象とした解析が期待される。

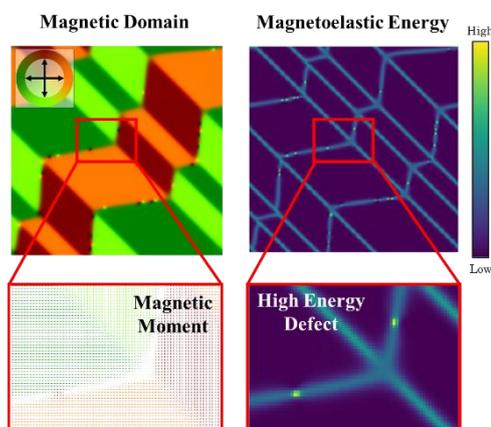


Fig.1 Relationship between Magnetic domain and Magnetoelastic energy

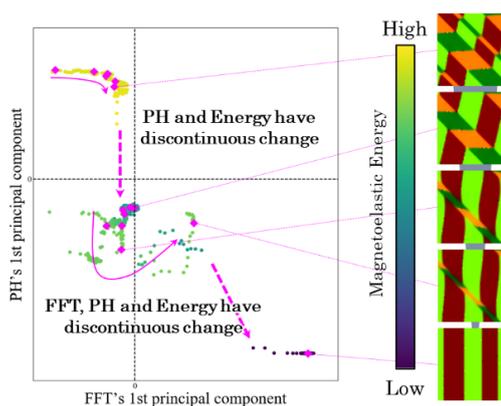


Fig.2 Dimensional reduction results by principal component analysis
(Each axis of the plot is 1st principal components of PH and FFT, colormap is magnetoelastic energy)

- [1] A. Sozinov et al, Appl. Phys. Lett, 102(2013), 021902
- [2] Medha Veligatla et al, Acta Materialia, 193(2020), 221-228
- [3] T.Yamada et al., Vac. Surf. Sci. 62, (2019) 15
- [4] Y. Ge et al, Journal of Applied Physics, 2159(2004), 96

拡張型ランダウ自由エネルギーモデルを用いた

YIG の保磁力メカニズム解析

増澤 賢, 國井創太郎, 佐藤駿丞 Alexandre Lira Foggiatto, 三俣 千春, 小嗣真人
(東理大基礎工、物質・材料研究機構)

Analysis of the coercivity mechanism of YIG based on the extended Landau free energy model
Masuzawa Ken, Sotaro Kunii, Syunsuke Sato, Alexandre Lira Foggiatto, Chiharu Mitsumata, Masato Kotsugi
(Tokyo Univ. of Science, NIMS)

はじめに

電気自動車の急速な普及を背景に、モーターのエネルギー変換効率を決定付ける保磁力メカニズムの理解が求められている。保磁力は磁化反転におけるエネルギー地形の鞍点と関係づけられるが、従来のランダウ理論は平均場を前提としているため、実材料の保磁力を説明することが困難だった。特に、微視的な磁区構造と巨視的な磁気ヒステリシスの関係性が未構築であることが原因で、保磁力メカニズムは未だ完全に理解されていない。そこで本研究では、磁区構造の不均一性を取り扱いながらも磁化反転現象を説明可能な、「拡張型ランダウ自由エネルギーモデル」の設計を試みた。開発では実材料への応用を踏まえ、磁区構造からの磁気自由エネルギー推定、さらにパーシステントホモロジー (PH) による特徴抽出と主成分分析 (PCA) による大規模データの次元削減を行い^[1]、エネルギー地形を描画した。

実験方法

実験は、異なる膜厚を持つ単結晶 Bi 置換鉄ガーネット (YIG) を対象に、Kerr 顕微鏡を用いて磁区構造の垂直磁場依存性のデータを取得した。各々の磁区構造画像から、交換エネルギーに加え静磁エネルギーの 2 種類を算出した。また PH 解析と PCA を用いて特徴量を 2 次元に削減することで、磁区構造と磁化反転過程と各種エネルギーの対応関係を可視化した。

実験結果

Fig.1 は、3 種類の YIG の磁区構造データから得られた交換エネルギー地形である。PC1 と PC2 は互いに直交する基底であり磁区構造の微細組織の特徴を表している。いずれの試料でも飽和、核生成、保磁力の磁化反転に伴い連続的なデータ分布となり、保磁力は主に PC1 の関数として表現される。また静磁エネルギー地形および交換エネルギー地形を詳細解析した結果、保磁力近傍において微細なエネルギー障壁を確認することができた。さらに各エネルギー項は相互に関係しており、磁区形状変化に応じてエネルギーの授受が行われていることが明らかとなった。本手法は保磁力メカニズムの理解に貢献できると期待される。

参考文献

1) T. Yamada and M. Kotsugi et al., Vac. Surf. Sci. 62, (2019) 15

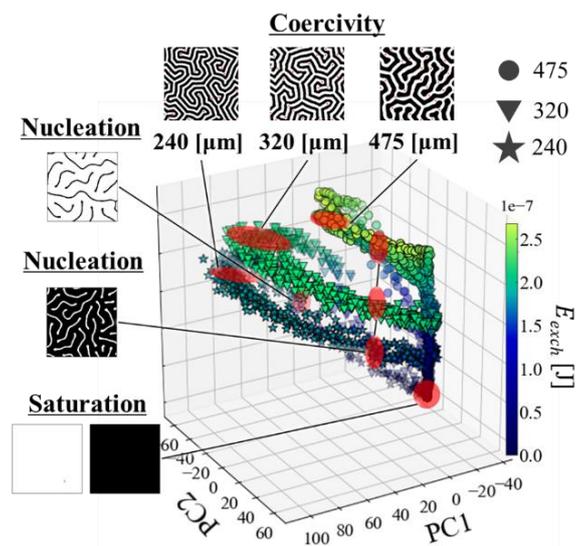


Fig1. Expanded Landau Free Energy model

位相的データ解析を用いた

磁化反転過程の分類と hidden parameter の抽出

國井創太郎、Alexandre Lira Fogiatto、三俣千春、小嗣真人
(東理大先進工、物質・材料研究機構)

Classification of magnetization reversal process

and extraction of hidden parameter using persistent homology

Sotaro Kunii, Alexandre Lira Fogiatto, Chiharu Mitsumata, Masato Kotsugi
(Tokyo Univ. of Science, NIMS)

はじめに

持続可能社会の実現に向けて、スピントロニクスを利用した高速高密度デバイスや、電気自動車のモータの高効率化が社会的に求められている。磁化反転現象は、情報読み書き精度や鉄損の抑制において重要であり、ミクロな磁区構造とマクロな磁化反転現象の関係性の理解は、これらの機能の設計上で必要不可欠である。しかし、磁区構造の複雑な微細組織や、急峻な外部磁場応答の定量化が困難なため、現在まで磁化反転メカニズムは完全に解明されていなかった。

そこで本研究では「位相的データ解析(TDA)」に着目し、説明可能な磁化反転解析手法の開発を試みた。TDAは位相幾何学における新規概念「パーシステントホモロジー(PH)」に基づいてミクロ構造を定量化し、得られた記述子を用いてマクロな物性との関係性を機械学習によって構築する、データ解析手法である。開発では複雑な磁区構造変化に対してPHを用いて定量化し、教師なし機械学習を用いて磁化反転過程の分類を試みた。

実験

実験のワークフローを Figure.1 に示す。まず、代表的な軟磁性材料であるパーマロイ(Py)を対象に、LLG 方程式を用いて2種類の磁化反転過程のシミュレーションを行い、磁区画像を出力した。得られた画像は前処理後にPHによる解析を行い、Persistence Diagram(PD)を出力し磁壁形状の特徴抽出を行った。得られたPDに対して教師なし機械学習の一種である主成分分析(PCA)を行い、2次元に次元削減を行った。

実験結果

Figure.2 に、PCA で得られた第一主成分と第二主成分の固有値で表される散布図を示す。本手法より、磁化反転過程が保磁力領域で分離することを可視化できた。さらに、Branch(赤丸)における僅かな磁区構造の差異が、保磁力条件で形成される磁区構造の形状を決定づける分岐であることが判明した。当日はPHから抽出された hidden parameter の物理的な解釈に関する議論を行う。

参考文献

- 1) T. Yamada, *et al.*, Vac. Surf. Sci. **62**, (2019) 153.
- 2) I. Obayashi, *et al.*, J. Appl. Comp. Topo. **1**, 421 (2018).

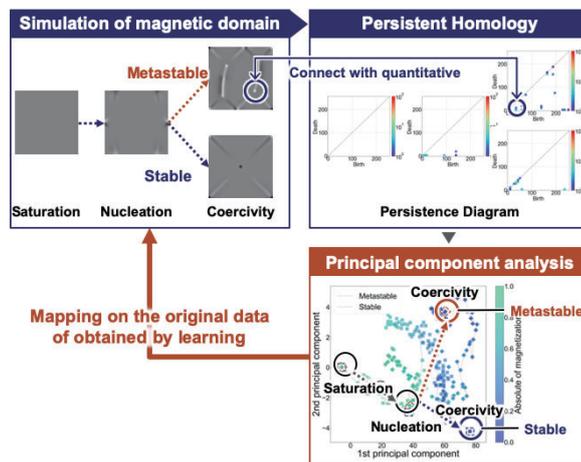


Figure.1 Workflow of this research

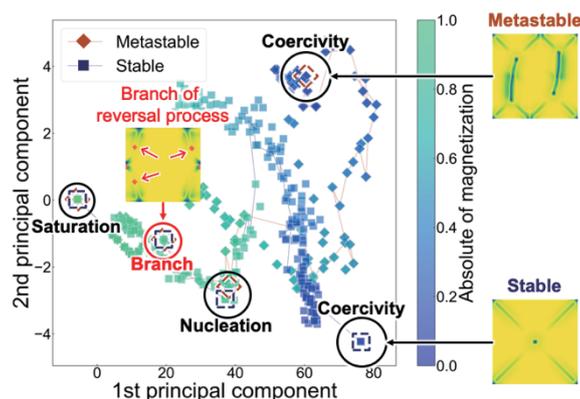


Figure.2 Dimensionally reduction result of domain structure change. Magnetization reversal process branches due to slight difference in domain structure in pre-nucleation.

磁気光学測定によるコバルトフェライト薄膜の評価

王 世浩、西川 雅美、柳原 英人*、石橋 隆幸
(長岡技科大、*筑波大)

Characterization of cobalt ferrite thin films by magneto-optical spectroscopy
Shihao Wang, Masami Nishikawa, *Hideto Yanagihara, Takayuki Ishibashi
(Nagaoka Univ. of Tech., *Tsukuba Univ.)

背景

コバルトフェライト薄膜は、基板との格子不整合により生じる正方歪みにより、大きな垂直磁気異方性を示す¹⁾。このような歪による磁気異方性増大のメカニズムは、これまで理論的に予想されている²⁾が、実験的に検証する必要がある。そこで今回、MgO(001)基板上に作製された異なる膜厚の2つ Co_{0.75}Fe_{2.25}O₄ (CFO) 薄膜について、誘電率テンソルの導出を行い、四面体サイトにある Co²⁺(Td)と八面体サイトにある Co²⁺(Oh)に関する光学遷移について評価した。

実験方法

CFO 薄膜は、反応性 RF マグネトロンスパッタリング法を用いて、MgO (001)基板上に作製した。CFO 薄膜の結晶構造と磁気特性は、X 線回折測定装置 (Rigaku, SmartLab)と SQUID-VSM (Quantum Design, MPMS)を用いて評価した。磁気光学スペクトルの測定は、円偏光変調法を用いたマルチチャンネル磁気光学スペクトロメータ³⁾を使用した。測定波長範囲は 0.59~3.5 eV とした。誘電率テンソルの対角成分は、分光型エリプソメータ (M-2000DI-YK, J.A.Woollam)による測定と、Complete-EASE を用いた解析によって得た。さらに、誘電率テンソルの非対角成分は、得られた対角成分とファラデー回転角スペクトルおよび楕円率スペクトルから求めた。得られたスペクトルをガウス関数でフィッティングを行なった。

実験結果と考察

Fig.1 に 1.0~3.5 eV の範囲における CFO 薄膜の誘電率テンソル非対角項の実部 ϵ'_{xy} スペクトルの実験値とフィッティング曲線を示す。フィッティング曲線では、3つの光学遷移を考えることで、実験値とよく一致した値が得られた。フィッティングに用いたパラメータ及びピークの帰属を、Table.1 にまとめた。1.77 eV と 1.86 eV のピークは結晶場(d-d)遷移 (Co²⁺(Td) ⁴A₂-⁴T₁(P))、2.02 eV のピークは電荷移動(CT)遷移 (Co²⁺(Oh) - Fe³⁺(Oh)) によるものと考えられる。詳細については当日報告する予定である。

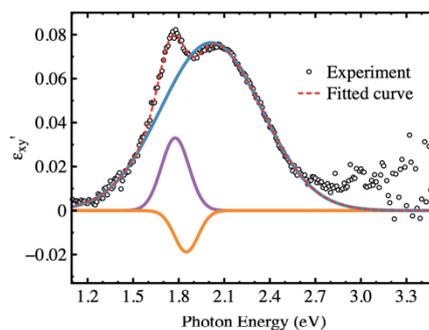


Fig.1 ϵ'_{xy} of CFO film and fitting curves

Table.1 The fitted results for ϵ'_{xy} of CFO film.

	ω (eV)	σ ($\times 10^{-2}$ eV)	Amp. ($\times 10^{-2}$)	Transition assignment
1	1.77	10.70	2.82	Co ²⁺ (Td) ⁴ A ₂ - ⁴ T ₁ (P)
2	1.86	8.20	1.34	
3	2.02	39.38	7.54	Co ²⁺ (Oh)-Fe ³⁺ (Oh)

謝辞

本研究の一部は、JST 委託研究「電子論に基づいたフェライト磁石の高磁気異方性化指針の確立」の助成を受けて行われた。また、エリプソメータによる光学測定は、山口大学微細加工プラットフォームにより実施した。

参考文献

- 1) T. Niizeki et al., Appl. Phys. Lett., 103(16), 2013, 162407.
- 2) J. Inoue, H. Yanagihara, E. Kita, Mat. Res. Exp., 1(4), 2014, 046106.
- 3) S. Wang et al., Jpn. J. Appl. Phys., 59(SE), 2019, SEEA02.

イプシロンニアゼロ材料をマトリックスとした ナノグラニューラー薄膜の磁気光学効果

池田 賢司¹, 刘 天際², 太田 泰友³, 岩本 敏^{2,4}, 小林 伸聖¹
(電磁研¹, 東大先端研², 慶応大学³, 東大生研⁴)

Magneto-optical effect in nanogranular films with epsilon near zero matrix
Kenji Ikeda¹, Tianji Liu², Yasutomo Ota³, Satoshi Iwamoto^{2,4}, Nobukiyo Kobayashi¹
(Denjiken¹, RCAST, Univ. of Tokyo², Keio Univ.³, IIS, Univ. of Tokyo⁴)

はじめに

ナノグラニューラー薄膜は、絶縁体のマトリックス中に磁性金属ナノ粒子を分散させた構造を有しており、多様な物性を示すことで知られている。我々のグループはフッ化物系ナノグラニューラー膜が光透過性を示し¹⁾、巨大なファラデー効果を示すことを見出した²⁾。ナノグラニューラー薄膜における大きな磁気光学効果は、マトリックス界面近傍の磁性原子の磁気モーメントがエンハンスされることに起因すると考えられる²⁾。ナノグラニューラー構造では、マトリックスおよびナノ粒子に任意の材料を用いることができるため、マトリックス材料に誘電率が実効的にほぼゼロになるイプシロンニアゼロ (Epsilon-Near-Zero : ENZ) 材料を適用し、誘電率の対角成分の値を実質的にゼロとすることで磁気光学効果が増強される可能性があるかと推測できる。本研究では、赤外通信波長帯に ENZ 特性を有するナノグラニューラー薄膜の作製を目的として、ENZ 材料である ITO をマトリックスとしたナノグラニューラー薄膜の作製を検討した。本報告では、Co-ITO ナノグラニューラー膜の、誘電率とファラデー効果の関係などについて報告する。

実験方法

ナノグラニューラー薄膜は、ITO ターゲットに Co チップを配置した複合ターゲットを用い、Ar 雰囲気において作製した。成膜は 400°C の加熱雰囲気で行い、膜厚が約 700 nm の薄膜を作製した。結晶構造は XRD で解析し、磁化曲線は VSM で測定した。ファラデー効果は、分光式ファラデー効果測定装置 (NEOARK, BH-501F-SVI) を用いて評価した。薄膜の光透過率は、分光光度計 (Shimadzu, UV-3150) を用いて測定した。光学定数はエリプソメータ (Horiba, UVISEL-Plus) による解析により求めた。

実験結果

Co-ITO ナノグラニューラー薄膜の誘電率の波長依存性を Fig.1 に示す。誘電率の対角成分(実数)が 1300nm 付近でゼロとなっており、赤外通信波長帯に ENZ 特性を有するナノグラニューラー膜が作製されたことが確認できる。Fig.2 に Co-ITO ナノグラニューラー薄膜のファラデー回転角の波長依存性を示す。ENZ 波長近傍において微弱なピークを示す結果が得られたが、ENZ 波長における Faraday 効果の顕著な増強は確認されなかった。今回の結果は、ENZ 波長における誘電損失が大きいこと (Fig.1 参照)、誘電率の非対角成分が小さいこと、の 2 要因が影響していると推測できる。

謝辞

本研究は JST-CREST、JPMJCR19T1 および JSPS 科研費 20K03843、20H02468、19K21959 の助成を受けたものです。

Reference

- 1) N. Kobayashi, H. Masumoto, S. Takahashi and S. Maekawa, Sci. Rep., 6, 34227 (2016).
- 2) N. Kobayashi, K. Ikeda, B. Gu, S. Takahashi, H. Masumoto and S. Maekawa, Sci. Rep., 8, 4978 (2018).

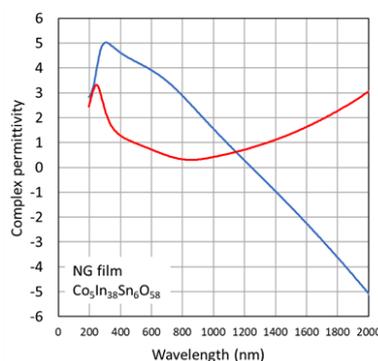


Fig.1 Wavelength dependence of permittivity of Co-ITO films.

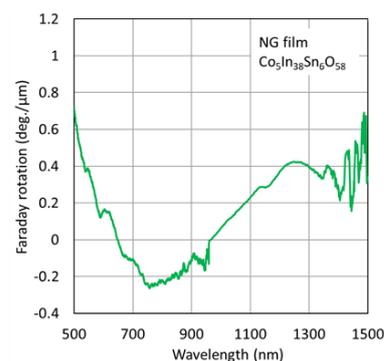


Fig.2 Wavelength dependence of Faraday rotation of Co-ITO films.

CoPt 垂直磁化膜における表面プラズモン共鳴と極 Kerr 効果

山根治起、梁瀬智、小林政信*、安川雪子*
(秋田県産業技術センター、*千葉工業大学)

Polar Kerr activities on surface plasmon system consisting of CoPt perpendicular magnetic films

H. Yamane, S. Yanase, M. Kobayashi*, Y. Yasukawa*

(Akita Industrial Technology Center, *Chiba Institute of Technology)

はじめに

表面プラズモン共鳴による磁気光学効果の増強が注目されている。大きな磁気光学応答は、光情報通信やプラズモンセンサなど光機能デバイスの高性能化に繋がると期待されている。我々は、プラズモン共鳴による磁気光学効果の増強/変調を利用することで、水素ガスセンサなどバイオ化学センサの高性能化について検討を進めている[1], [2]。本研究では、*hcp*(001)-Co₈₀Pt₂₀垂直磁化膜において、表面プラズモン共鳴が磁気光学特性(極 Kerr 効果)に与える影響について検討を行った。

実験方法

試料の膜構造は、[Al₂O₃(5 nm)/CoPt(5-15 nm)/Al-ZnO(30 nm)]/ガラス基板とし、マグネトロンスパッタ法によって作製した。垂直磁気特性の向上を図るため Al-ZnO 下地層、および、Al₂O₃ 表面保護層を形成した。イメージングオイルを用いて直角プリズムと光学結合し、p 偏光(半導体レーザ: $\lambda = 658 \text{ nm}$)を基板裏面から照射して表面プラズモンを励起した。磁気光学特性は、膜面垂直方向に磁場を印加する極 Kerr 配置にて測定した。分光エリプソメータ(日本セミラボ社)および分光式磁気特性評価装置(ネオアーク社)を用いて各層の誘電率を導出し、マトリックス法による磁気光学シミュレーションを行った。

実験結果

Fig. 1 に、CoPt 垂直磁化膜の磁化飽和状態における、Kerr 回転角: θ_K および反射光強度: I_R の CoPt 膜厚依存性を示す。表面プラズモン共鳴による反射率の減少にともなって、 θ_K の大幅な増強および極性反転が観測される。特に、CoPt 膜厚: 10.6 nm では、上限に近い偏光角($\theta_K = 88.9^\circ$)が得られている。本試料について、極 Kerr 効果(偏光角: θ_K および楕円率: η_K)の測定光の入射角依存性を Fig. 2 に示す。 θ_K の極性が反転するプラズモン共鳴角の近傍では、約 $\pm 90^\circ$ の偏光角とともに楕円率はゼロであり、p 偏光から s 偏光への変換が行われる。磁気光学効果に関する本現象については、誘電率の非対角項を考慮した理論計算においても定性的に確認された。さらに本試料では、反射光強度: I_R が、印加磁場に依存して大きく変化する様子も観測された。Fig. 3 に示すように、反射光強度は、保磁力: $\pm H_C$ で最小となり、磁化の増加にともなって増加する。DC 消磁状態では、周期長: 約 360 nm の磁区構造が形成されており、反射率の減少は、サブ波長領域での磁気光学的な干渉が原因と推測している。本研究は、科研費(20K05375)の助成を受けて実施した。

参考文献

- [1] H. Yamane *et al.*, J. Appl. Phys. **124**, 083901 (2018)
[2] H. Yamane, Jpn. J. Appl. Phys. **60**, SCCG01 (2021)

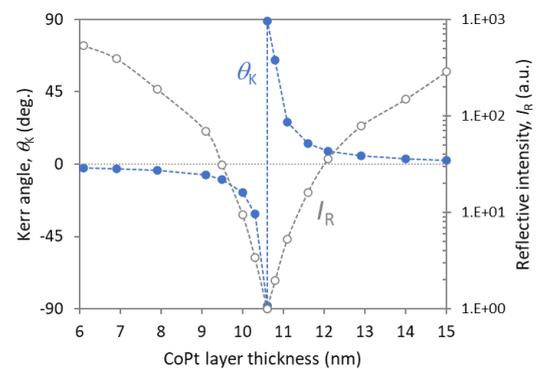


Fig. 1 Dependence of CoPt layer thickness on Kerr rotation angle and reflectivity.

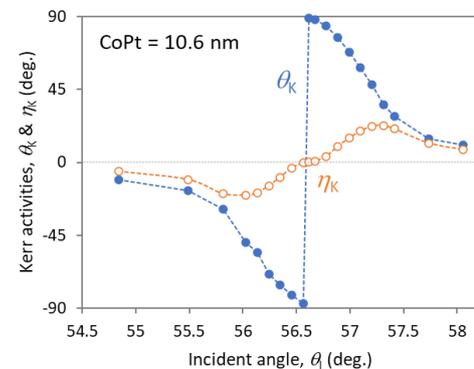


Fig. 2 Influence of SPRs on polar Kerr activities; θ_K and η_K .

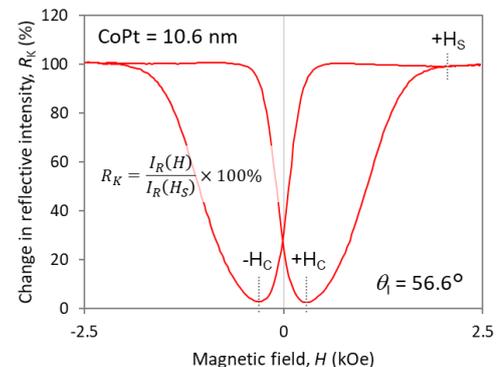


Fig. 3 Change in reflective intensity by magnetic applied field.

ファラデー効果を用いた Bi:YIG 薄膜の動的磁化過程の測定

吉田真悟、高瀬つぎ子、山口克彦
(福島大学)

The dynamic magnetization of Bi:YIG thin film by measurement of Faraday effect

S.Yoshida, T.Takase, K.Yamaguchi
(Fukushima Univ.)

はじめに

非破壊検査の磁気的手法の一つとして強磁性体の動的磁化過程で観測されるバルクハウゼンノイズによる評価方法がある。このバルクハウゼンノイズは通常ピックアップコイルを用いて測定されるが、測定範囲がピックアップコイルの大きさに依存するため微細構造や微小な欠陥を持つサンプルの評価には適さない。この問題に対して磁気光学効果を用いたバルクハウゼンノイズの測定方法¹⁾が提案されているが、従来の測定方法で確認されているバルクハウゼンノイズと結晶粒や欠陥等との関係性についてはまだ報告されていない。そこで、本研究ではファラデー効果を用いて Bi:YIG 薄膜の動的磁化過程を測定し、磁気光学効果を利用したバルクハウゼンノイズの測定法の有用性及びその結晶組織依存性について検討した。

実験方法・結果

試料となる Bi:YIG 薄膜には、有機金属分解法を用いて石英ガラス基板上に成膜した組成 $\text{Bi}_{0.5}\text{Y}_{2.5}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 、厚さ約 400nm の多結晶膜を用いた。

Fig.1 に測定系の構成を示す。この測定系において、波長 408nm の半導体レーザー光源から出た光は偏光子により直線偏光になったのち、磁場中の試料を透過する。その後、偏光子とクロスニコル状態にある検光子を通過し光電子増倍管に入射する。電磁石により磁場を掃引することにより、試料のファラデー回転角が変化し、それが光強度変化として測定される。バルクハウゼンノイズが存在する場合、ファラデー回転角に急激な変化をきたし、光強度にノイズとして現れる可能性がある。

Fig.2 に 1.0Hz の三角波 (図中緑) により磁場を掃引したときの光電子増倍管からの出力信号 (図中赤) を示す。光電子増倍管の出力信号からはノイズを確認することが出来なかったが、出力信号のデータをファラデー回転角に変換したところ、その変化率 (図中青) からファラデー回転角が急激に変化していることが確認された。磁場の極性が切り替わる際にノイズが最大となることから、今回測定されたファラデー回転角の急激な変化はバルクハウゼンノイズである可能性が高いと考えられる。

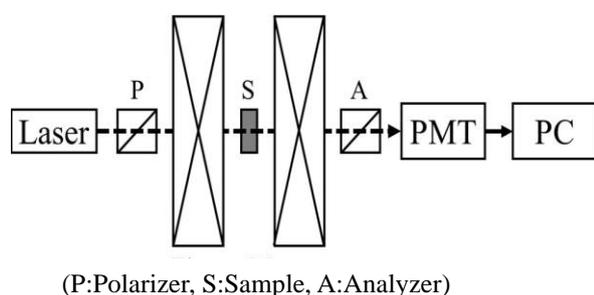


Fig.1 Measurement system

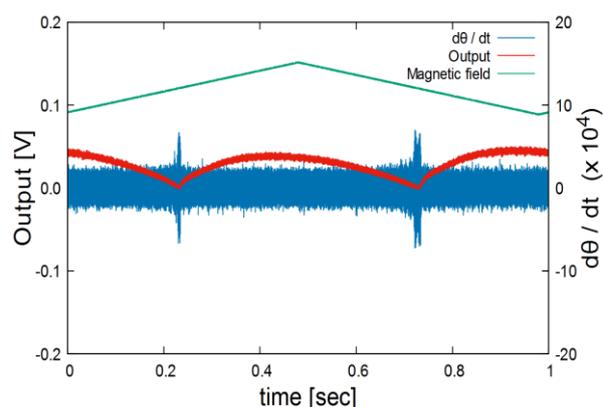


Fig.2 Magnetic field dependence of light power signal

参考文献

- 1) E.Pinotti, M.Zani, and E.Puppin: *Rev.Sci.Instrum.*, **11**, 1-14(2005).

強磁性超弾性合金を用いた振動発電の基礎検討

小澤海斗, 栢修一郎, 石山和志
(東北大学 電気通信研究所)

Study of vibration power generation using ferromagnetic superelastic alloy

K. Ozawa, S. Hashi, K. Ishiyama
(RIEC, Tohoku University)

1. はじめに

近年、環境に存在する希薄なエネルギーを収穫して電力に変換する、環境発電技術¹⁾を利用した発電デバイスが開発されている。本研究では振動発電に着目し、超弾性合金の応力による相変態を発電に利用する新方式²⁾を提案してきた。Fe-Mn-Al-Ni系合金は母相が強磁性でマルテンサイト相が反強磁性³⁾であるため、応力による相変態で磁性・非磁性が変化する。この変化をコイルで検出すれば電力を取り出せる可能性がある。我々はこれまでにFe-Mn-Al-Ni系合金の磁気特性を測定した結果、応力印加時に磁化変化は得られた²⁾が、変態が誘起される臨界応力には及ばず、非磁性相を誘起できなかった。

そこで本報告では、応力誘起相変態を利用した振動発電の実現に向け、Fe-Mn-Al-Ni系合金の材料特性を検討した結果を述べる。

2. 実験方法

短冊形状にしたFe-Mn-Al-Ni単結晶合金の磁気特性は、強力な圧縮応力を印加できるように改良した治具を用いて、BHループトレサにより測定した。また、短冊状試料に対して圧縮応力印加により座屈変形させた箇所と、応力無印加の箇所をそれぞれナイタールで約2分間エッチングし、エタノールで約5分間超音波洗浄したのち組織観察を行った。

3. 実験結果

Fig. 1にFe-Mn-Al-Ni単結晶合金に対し、圧縮応力を印加した際のBH曲線を示す。約600 MPaの応力印加時では磁束密度が約0.1 Tとなり、完全に非磁性にはならなかったが、応力無印加時との磁束密度差を得た。さらに、除荷により磁化がおおよそ元に戻ることも確認し、応力誘起による磁化変化を示した。Fig. 2 (a) (b)にはFe-Mn-Al-Ni合金の光学顕微鏡写真を示す。Fig. 2 (a)は母相であるが、単結晶のため結晶粒界は観察されない。Fig. 2 (b)は座屈変形させた箇所の組織である。起伏と幅を持つプレートが見られ、組織の観点でも応力誘起マルテンサイトを確認

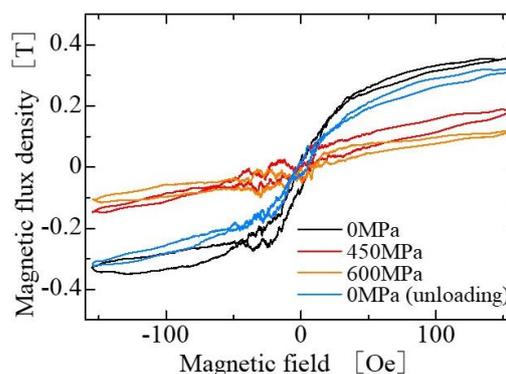
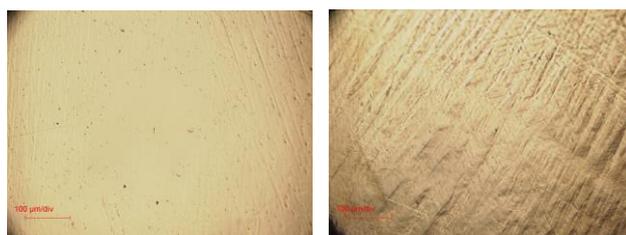


Fig. 1. Changes of B-H curve under applied compressive Stress



(a) Parent phase (b) Martensite phase

Fig. 2. Optical micrograph of Fe-Mn-Al-Ni alloy

した。今後は、相変態時の合金の磁気特性と組織、結晶構造などを関連付けて評価する予定である。

謝辞

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

参考文献

- 1) K. Takeuchi: *J. Surf. Finish. Soc. Jpn.*, **67**, 334 (2016).
- 2) K. Ozawa, S. Hashi and K. Ishiyama: "Study of vibration power generation using ferromagnetic shape memory alloy," *Annual Meeting Record I.E.E. Japan.*, (2021.3), p.107.
- 3) T. Omori and R. Kainuma: *Materia Japan.*, **54**, 398 (2015).

振動発電デバイスに搭載した方向性電磁鋼板の磁束密度変化

藤枝 俊*、岡田 拓*、栢 修一郎**、石山和志***、鈴木 茂****、
清野智史*、中川 貴*、山本孝夫*

(*阪大 工学研究科、**東北学院大 工学部、***東北大 通研、
****東北大 マイクロシステム融合研究開発センター⁴)

Magnetic flux density change of grain-oriented electromagnetic steel on vibration power generation device

S. Fujieda*, T. Okada*, S. Hashi**, K. Ishiyama***, S. Suzuki****, S. Seino*, T. Nakagawa*, T. A. Yamamoto*

(*Graduate School of Engineering, Osaka Univ.*, Faculty of Engineering, Tohoku Gakuin Univ.**, RIEC, Tohoku Univ.***, μ SIC, Tohoku Univ.****)

はじめに

逆磁歪効果と呼ばれる磁歪の逆効果を利用した振動発電は、身近で発生する振動を電気エネルギーに変換するエナジーハーベスティング技術として注目されている。Fe-Ga 合金単結晶を搭載した振動発電デバイスは、逆磁歪効果による大きな磁束密度変化に起因して優れた発電特性を示す¹⁾。用途拡大に向けてデバイスの大型化による発電特性の大幅な向上が期待されるが²⁾、Fe-Ga 合金単結晶の大型化は研究開発の段階である³⁾。このような状況で、最近、Fe-Si 合金単結晶でも逆磁歪効果により大きな磁束密度変化が得られることが報告された⁴⁾。本研究では、大型化に対応可能な方向性電磁鋼板と呼ばれる圧延方向に<100> 配向した Fe-Si 合金多結晶を振動発電デバイスに搭載して、その磁束密度変化を評価した。

実験方法

ユニモルフ U 字型の振動発電デバイスを用いて振動発電試験を行った (Fig. 1(a)参照)。圧延方向と長手方向が平行になるように長さ 16 mm および幅 4 mm の板状に切り出した厚さ 0.35mm の方向性電磁鋼板を鉄製の U 字型フレームに張り付けた後、巻き数 3638 ターンの空芯コイルを取り付けた。また、永久磁石を用いてバイアス磁場を印加した。

実験結果

Fig. 1(a)に振動発電試験の模式図を示す。この試験では、デバイスの片端を加振機に固定して機械共振周波数近傍の 108 Hz で強制的に振動させた。この際、他端の振幅 Δd をレーザー変位計で計測し、 $\Delta d = 2$ mm となるように重りおよび加速度を調整した。バイアス磁場を変化させるために異なる表面磁束の永久磁石を用いて上述の振動発電試験を行った。開回路電圧の表面磁束依存性を Fig. 1(b)に示す。表面磁束の増大に伴い、開回路電圧は上昇し、約 3.5 V の極大値を示した。この最適化したバイアス磁場において、鉄製フレームの発電への影響を考慮して方向性電磁鋼板に生じる磁束密度変化を Faraday の法則に基づいて求めた結果、約 0.65 T に達することが明らかになった。従って、方向性電磁鋼板の大型デバイスへの応用が期待される。

参考文献

- 1) S. Fujieda et al., IEEE Trans. Magn., **50** (2014) 2505204.
- 2) 上野敏幸, 日本金属学会会報 あたりあ **59** (2020) 6.
- 3) 南部十輝 他, 日本金属学会会報 あたりあ **56** (2017) 27.
- 4) F. Osanai et al., Proc. 24th Soft Mag. Mater. Conf., (2019) P-071.

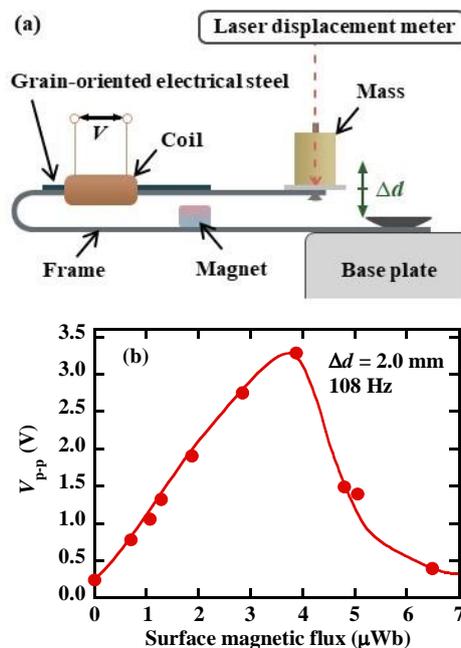


Fig. 1 (a) Schematic illustration of setup to measure vibration power generation properties. (b) Peak-to-peak value of open circuit voltage V_{p-p} as a function of surface magnetic flux of magnets.

ナノ結晶軟磁性材料の高磁歪化に向けた合金設計

佐野光哉¹⁾、富田龍也²⁾、岡智絵美¹⁾、櫻井淳平¹⁾、山崎貴大¹⁾、秦誠一¹⁾

(¹⁾名古屋大、²⁾株式会社東北マグネットインスティテュート)

Design of nanocrystalline soft magnetic material with large magnetostriction

K. Sano¹⁾, T. Tomita²⁾, C. Oka¹⁾, J. Sakurai¹⁾, T. Yamazaki¹⁾, S. Hata¹⁾

(¹⁾Nagoya Univ., ²⁾Tohoku Magnet Institute Co., Ltd.)

はじめに

磁歪式振動ハーベスタは、Beyond 5G の IoT デバイスの自立電源として常時モニタリング、材料診断技術などへの応用が期待される。デバイスの小形化に向けて出力の向上が求められており、そのためには高磁歪と高磁化率を併せ持つ材料が必要であるが、これらの特性を両立する単相材料は存在しない。そこで本研究では、高磁化率を示す NANOMET[®] (Fe-Si-B-P-Cu-C) 軟磁性合金¹⁾をベースにしたナノ結晶分散アモルファス磁歪合金を提案し、結晶構造、磁気、磁歪特性に対する Al 添加効果を紹介する。

実験方法

薄膜サンプルは、Fe-Si-B-P-Cu-C 合金と Al 単体の 2 つのターゲットを用いて、高周波マグネトロンスパッタリング法によって Si 基板上に成膜した。サンプルの組成は、(Fe-Si-B-P-Cu-C)_{100-x}Al_x (x = 0, 3, 7 at%) であった。また成膜したサンプルは、赤外線ランプ加熱装置を用いて 250, 450, 650°C で 1 分間加熱した。さらに磁場中熱処理による影響²⁾を調べるため、熱処理時に磁場を印加したサンプルも作製した。磁歪は光てこ法を用いて測定し、磁化曲線は振動試料形磁力計を用いて測定した。

実験結果

Fig. 1 (a)に示すように、磁化率は熱処理温度の上昇に伴い減少し、磁場の印加に伴い急激に増加した。前者はアモルファス母相からの不純物相の析出に起因し、後者は磁場による α -Fe ナノ結晶の配向によるものであると考えられる。Fig. 1 (b)に示すように、磁歪による変位量は 450°C 以上の熱処理によって減少し、磁場の印加によっても減少した。前者は X 線回折の結果からナノ結晶化によるものであり、後者は磁場中熱処理による残留伸びの存在による磁歪変位量の伸びしろの減少に起因すると考察した。また、250°C で磁場中で熱処理したサンプルで、比較的高い磁化率と磁歪が得られた。本研究は、新しい磁歪合金を用いた振動ハーベスタの開発に貢献するものであると考えている。

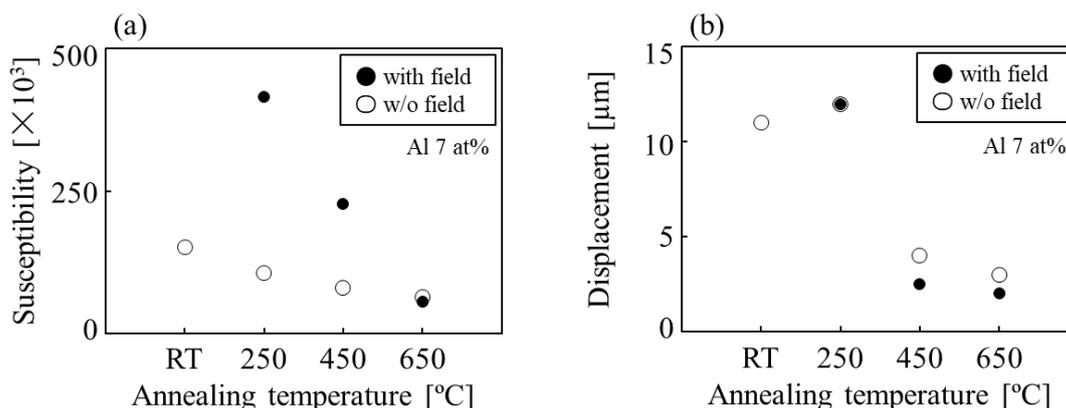


Fig. 1 (a) Magnetic susceptibility and (b) magnetostrictive cantilever displacement dependence on annealing temperature and magnetic field for an (Fe-Si-B-P-Cu-C)_{100-x}Al_x (x = 7 at%) thin films.

参考文献

- 1) A. Makino, H. Men, T. Kubota, K. Yubuta, and A. Inoue: IEEE Trans. Magn. **45**, 10 (2009)
- 2) Ming Liu, Zhi Wang, Yan-chao Xu, Ming Yue, J. Appl. Phys. **117**, 17B729 (2015)

ナノ結晶磁性体における局所的磁歪効果

塚原宙^{1,2}、今村裕志²、三俣千春³、鈴木清策⁴、小野寛太^{1,5}
 (¹高エネ研, ²産総研, ³物材機構, ⁴モナッシュ大学, ⁵大阪大学)

Effects of local magnetostriction in nanocrystalline soft magnetic materials

H. Tsukahara^{1,2}, H. Imamura², C. Mitsumata³, K. Suzuki⁴, K. Ono^{1,5}

¹High Energy Accelerator Research Organization (KEK), Tsukuba, Ibaraki 305-0801, Japan

²National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), Tsukuba, Ibaraki, 305-8568, Japan

³National Institute for Materials Science (NIMS), Tsukuba 305-0047, Japan

⁴Monash University, Clayton, VIC 3800, Australia

⁵Osaka University, Osaka 565-0871, Japan

はじめに

軟磁性材料はモーターやインダクタなどのデバイスに必要な不可欠な部品である。デバイス内では交流磁場が発生し、軟磁性材料の磁化応答が遅延するとエネルギー損失が発生するため、デバイスの性能を低下させる。高周波領域ではエネルギー損失は古典渦損および異常渦損に支配される。ナノ結晶軟磁性体は結晶粒径を 10 nm 程度まで減少させる事により低保磁力を実現した優れた軟磁性材料であり、また電気抵抗が高いために古典渦損も小さい。よって、さらなる高エネルギー効率化には異常渦損の減少が必要となる。我々は異常渦損の原因として磁歪に着目し、ナノ結晶磁性体における磁歪分布を明らかにし、磁歪が磁壁移動に及ぼす影響を明らかにした。

計算方法

図 1(a) に示されるシミュレーションモデルを使用した。シミュレーションモデルの大きさは $2048 \times 2048 \times 2 \text{ nm}^3$ であり、平均粒径 12.7 nm の結晶粒で分割されている。結晶粒の結晶軸はランダムに配向しており、立方対称を考えた。磁区構造は単純なストライプ構造を仮定し、ナノ結晶磁性体における磁歪分布を計算した。ナノ結晶では磁歪定数および異方性定数以外は $\alpha\text{-Fe}$ のパラメータを使用した。シミュレーションでは磁歪定数を $\lambda_{100} = 20.0 \times 10^{-5}$, $\lambda_{111} = -7.22 \times 10^{-5}$ と $\alpha\text{-Fe}$ よりも大きくし、磁壁移動に対する磁歪の効果を顕著化した。また結晶磁気異方性を無視した。

計算結果

結晶粒毎に結晶軸の向きが異なるため、磁化が同じ向きを向いていても磁歪は異なる。そのため結晶粒界面では応力が発生し、更に結晶粒を歪ませる。完全に磁化が配向した場合、 $\alpha\text{-Fe}$ の磁歪定数を使用すると、計算された磁化の方向の平均磁歪は -9.9×10^{-6} であり、結晶粒毎に独立した磁歪の足し合わせである $-4.4 \times 10^{-6} (2/5\lambda_{100} + 3/5\lambda_{111})$ よりも実験値 -8.9×10^{-6} に近くなる。このナノ結晶磁性体における内部応力の存在は磁歪分布を不均一にする。図 1(b) にストライプ磁区構造における歪分布を記載する。歪は不均一であり結晶粒内部においても変化する。この局所的に大きな歪は磁壁運動に影響を与え異常渦損を上昇させる。本発表では平均磁歪が消失する条件や磁歪定数による磁壁移動の変化について議論する。

謝辞

本研究はトヨタ自動車との共同研究で実施され、シミュレーションは東北大学のスーパーコンピューター MASAMUNE-IMR を使用して行われた。

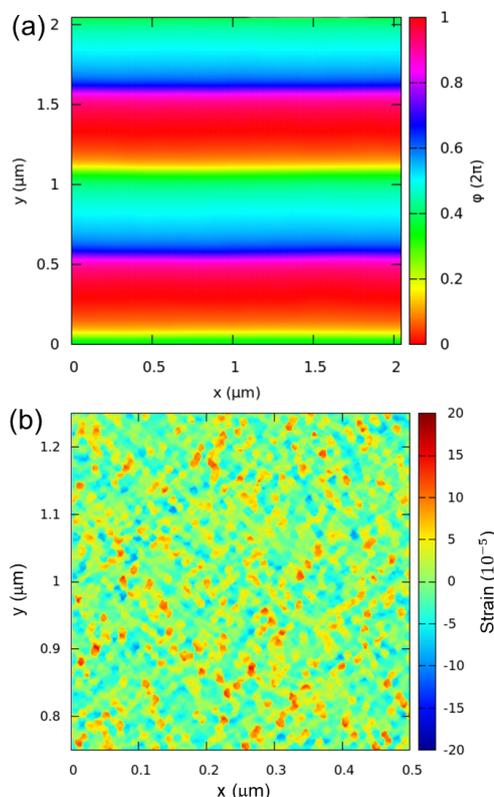


Fig 1: (a) Simulation model of this study. (b) Color map of strain in NSMM.

電解めっき法により形成した Fe-Co 合金膜の構造と磁気・磁歪特性

中村優太¹・明田俊祐¹・近藤輝¹・大竹充¹・川井哲郎¹・二本正昭¹・桐野文良²・稲葉信幸³
(¹横浜国大, ²東京藝大, ³山形大)

Structural, Magnetic, and Magnetostrictive Properties of Fe-Co Alloy Films Prepared by Electroplating

Yuta Nakamura¹, Shunsuke Aketa¹, Hikaru Kondo¹, Mitsuru Ohtake¹,
Tetsuroh Kawai¹, Masaaki Futamoto¹, Fumiyoshi Kirino², Nobuyuki Inaba³
(¹Yokohama Nat. Univ., ²Tokyo Univ. Arts, ³Yamagata Univ.)

はじめに Fe-Co 合金は大きな飽和磁化を示す代表的な軟磁性材料であり, その膜は磁気センサや磁気ヘッドなどのデバイスで用いられている. また, Fe-Co 合金は 10^{-4} オーダーの比較的大きな磁歪を持つことが知られており, 近年, 磁歪材料としても注目されつつある. 応用目的によってはマイクロメートルオーダーの膜厚が要求され, そのような場合, めっき法による膜形成が有効である. これまで, 種々のめっき条件が構造や磁気特性に及ぼす影響が調べられている¹⁻²⁾. 本研究では, 電解めっき法により, 浴組成, 浴温度, 電流密度などの条件を系統的に変化させて, Fe-Co 膜を形成し, 構造, 磁気, 磁歪特性を調べた.

実験方法 パドルによる攪拌機能を備えた電解めっき装置を用いた. 定電流源を用い, 陽極は Fe 板, 陰極は Cu 基板とすることにより, Cu 基板の上に膜形成を行った. めっき浴の典型的な成分と濃度を Table 1 に示す. クエン酸 ($C_6H_8O_7 \cdot H_2O$) をベースとした浴に, 硫酸鉄(II)七水和物 ($FeSO_4 \cdot 7H_2O$) と硫酸コバルト(II)七水和物 ($CoSO_4 \cdot 7H_2O$) を加え, 比率を変えることにより, 膜組成を変化させた. 構造解析には X 線回折装置, 磁化曲線測定には試料振動型磁力計を用いた. 磁歪特性は片持ち梁状にした試料に面内磁界を印加し, その時のそり量を干渉計で測定することにより評価した.

Table 1 Bath compositions.

Chemicals	Concentration (mol/L)
$FeSO_4 \cdot 7H_2O$	0.2 (1-x)
$CoSO_4 \cdot 7H_2O$	0.2 x
NaCl	0.85
$C_6H_8O_7 \cdot H_2O$	0.05
$C_7H_4NNaO_3S \cdot 2H_2O$	0.02

実験結果 Fig. 1 に浴温度を $50^\circ C$, 電流密度を 9.5 mA/mm^2 とし, 浴中の $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ と $CoSO_4 \cdot 7H_2O$ の濃度比 x を変化させることにより形成した Fe-Co 膜の飽和磁化 (M_s) と保磁力 (H_c) を示す. Fe と Co の合金の状態最大の M_s を示しており, バルク材料と同様な傾向を確認できる. また, H_c は Co 組成の増加に伴い, 増加していることが分かる. 当日は, 磁歪特性やめっき条件を系統的に変化させた場合の膜特性を詳細に議論する.

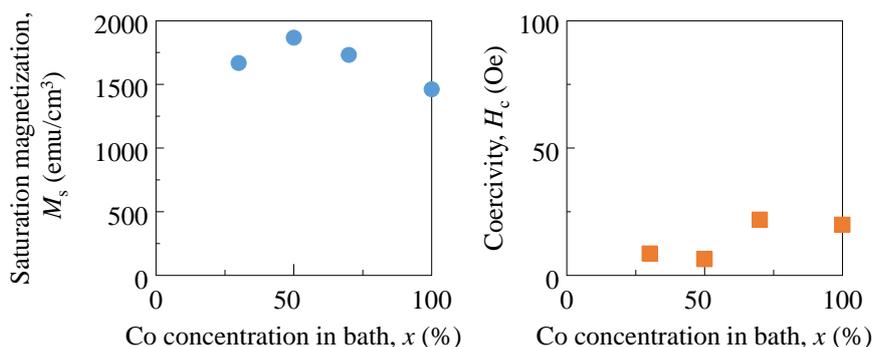


Fig. 1 Dependences of Co concentration in bath on saturation magnetization and coercivity of electroplated Fe-Co film.

- 1) T. Yokoshima, K. Imai, T. Hiraiwa and T. Osaka: *IEEE Trans. Magn.*, **40**, 2332 (2004).
- 2) T. Yanai, K. Mieda, J. Kaji, R. Tanaka, A. Yamashita, T. Morimura, M. Nakano, and H. Fukunaga: *AIP Adv.*, **10**, 055001 (2020).

高純度 Fe 薄帯における構造と磁気特性の熱処理による影響

遠藤恭, 馬小童, 梅津理恵, 宮崎孝道, 三上慎太郎*, 平城智博* (東北大学, *東邦亜鉛(株))

Influence of Annealing Temperature on Structure and Magnetic Properties of Pure Fe Ribbons

Y. Endo, X. Ma, R. Umetsu, T. Miyazaki, S. Mikami*, T. Hiraki* (Tohoku Univ., *TOHO ZINC Co., Ltd.)

はじめに

Fe 系および Co 系アモルファス合金薄帯は、高飽和磁束密度、高透磁率、低磁歪、低損失など優れた磁気特性を有している。このことから、これらの薄帯を用いて、低損失電力用変圧器などエネルギー高効率な環境負荷軽減型デバイスへの応用開発が精力的に行われている。また、デバイスの更なる省エネ化・高周波化に向けて、既存の薄帯よりも飽和磁束密度（飽和磁化）が高くかつ高周波損失の低い新規の軟磁性合金薄帯の研究開発も進められている。本研究では、圧延加工を施すことにより、従来のアモルファス合金薄帯に比べてより薄い膜厚を実現した高純度 Fe 薄帯に着目し、それらの薄帯における構造と磁気特性の熱処理による効果について検討した。

実験方法

圧延加工した 5, 10 および 30 μm 厚の高純度 Fe 薄帯を、石英ガラス管に真空封入し 1273~1573 K で三時間保持して熱処理を施した。熱処理前後の高純度 Fe 薄帯における結晶構造は XRD および EBSD を用いて評価した。また、磁気特性は VSM, フェライトヨーク法による透磁率測定装置、独自に開発した薄帯磁歪装置¹⁾を用いて評価した。

結果および考察

逆極点図マップ (図 1) からわかるように、熱処理温度の増加にともない、結晶方位は $\langle 100 \rangle$ 優先配向 ($\parallel \text{ND}$) からランダム配向となった。また、粒組織は熱処理により圧延から微粒へ、さらに粗粒へと変化した。これらの結果から、高純度 Fe 薄帯の構造は、圧延による、

(100) 配向から粗粒によるランダム配向へ変化していることがわかった。図 2 は 5 μm 厚の高純度 Fe 薄帯における飽和磁化 ($4\pi M_s$) の熱処理温度による変化である。 $4\pi M_s$ は熱処理の影響を受けずほぼ一定となり、Fe のバルク値 (2.16 T) とほぼ一致している。この結果は熱処理による Fe 酸化物や Fe 窒化物などの合金形成が起こっていないことを意味している。また、図 3 は熱処理温度の異なる 5 μm 厚の高純度 Fe 薄帯における透磁率の周波数特性である。透磁率は、熱処理温度に依存せず、MHz 付近までほとんど変化せず、損失が抑制されているものと考えられる。また、MHz 以上の周波数帯では透磁率は減少するものの、その値は Fe 系アモルファス合金薄帯に比べて高くなった。この結果は、高純度 Fe 薄帯が新規の環境負荷軽減型デバイスへ応用できることを示唆している。

謝辞

本研究の一部は、科研費挑戦的萌芽 (JP19K21952) の補助と、東北大学 CSRN, 東北大学 CSIS, 東北大学 CIES および ASRC の支援のものと行われた。

参考文献 1) YE et al., DIGESTS of 42th Conf. Magn. 279 (2018).

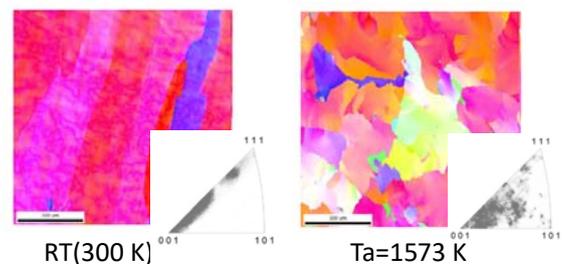


FIG. 1. Inverse pole figure map of 5- μm thick pure Fe ribbons with various annealing temp..

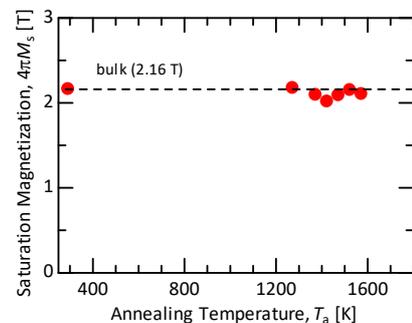


FIG. 2. Change in saturation magnetization of 5- μm thick Fe ribbons with annealing temp..

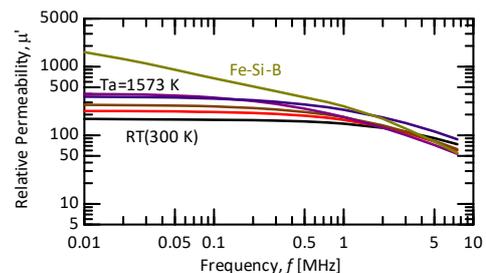


FIG. 3. Frequency dependence of relative permeability for 5- μm thick Fe ribbons with various annealing temp..

液体急冷法および冷間圧延により作製された純鉄箔の磁気特性

棚瀬純平, 上村卓也*, 土田英治* 竹内恒博, 藤崎敬介
(豊田工業大学大学院, *丸嘉工業株式会社)

Magnetic characteristics of pure iron thin film manufactured by planer flow casting and cold rolling process

J. Tanase, T. Uemura*, E. Tsuchida*, T. Takeuchi, K. Fujisaki
(Toyota Technological Institute, *Maruyoshi CO., LTD.)

1. はじめに

半導体デバイスのスイッチ動作を用いた電力変換技術は今日の省エネルギー社会において不可欠な技術であり、装置はさらなる小型・軽量化が望まれている。その解決方法の一つであるスイッチング周波数の増加は、コンデンサやインダクタといった受動素子の小型化を可能にする手法であるが、インダクタの磁心材料である軟磁性材料では透磁率の低下や鉄損が増加するといった課題がある。小型化の観点から重要である高飽和磁化を有する金属系軟磁性材料では、MHz帯域における渦電流を抑制するためには数 μm 以下の厚さであることが必要となる。¹⁾ 本稿は、高飽和磁化かつ低コストである鉄を用いて、量産性に優れた液体急冷法および冷間圧延により作製した純鉄数 μm 厚金属箔について報告するものである。

2. 実験方法

冷間圧延用薄帯の作製には液体急冷装置（日新技研）を用いた。真空中で材料を誘導加熱により溶解させ、回転ドラムに溶湯を吹き付けることにより薄帯を得た。この薄帯を冷間圧延機により厚さが数 μm 程度となるまで圧延した。箔の磁気特性はBHアナライザSY-956単板試験機（岩通計測）を用いて計測した。この際、空隙の補償は空芯コイルに発生する誘導電圧の値を用いて行った。

3. 試作結果と交流磁気特性

液体急冷法による薄帯作製では、原料に99.99%の純鉄を用い、チャンバー内を 3×10^{-2} Paまで真空引き後、誘導加熱により純鉄を溶解、Ar雰囲気中にて2000 rpmで回転する銅製ドラムに射出圧 1.4 kg/cm^2 にて溶湯を射出することで薄帯を得た。得られた薄帯は厚さが30 μm 程度であり、表面に光沢があり、折り曲げも可能である。また、圧延するために十分な長さを持っている。この薄帯を0.5 mm/sの圧延速度で適度に圧下しながら圧延することで、最小で厚さ2.5 μm の箔を得た。このときの加工率は92%程度であった。液体急冷法により得た薄帯と圧延後の箔をFig.1に示す。また、単板試験により測定した箔の1 kHz正弦波励磁における動的磁化曲線をFig.2に示す。磁化曲線から10,000 A/mの印可磁界にて磁化が1.5 T程度であることから膜面方向には[110]軸もしくは[111]軸を有する結晶が配向していると予想される。²⁾ この箔の集合組織や高周波における磁気特性などは、後日報告する予定である。

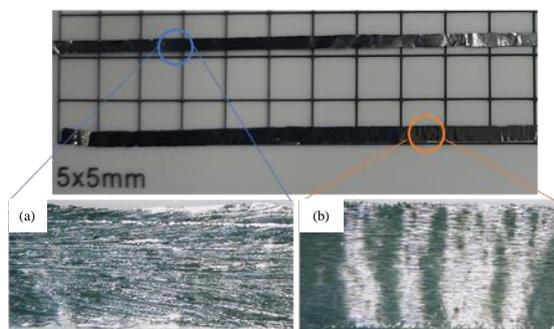


Fig.1 Appearances of pure iron thin films (a) before cold rolling, (b) after cold rolling (2.9 μm thickness)

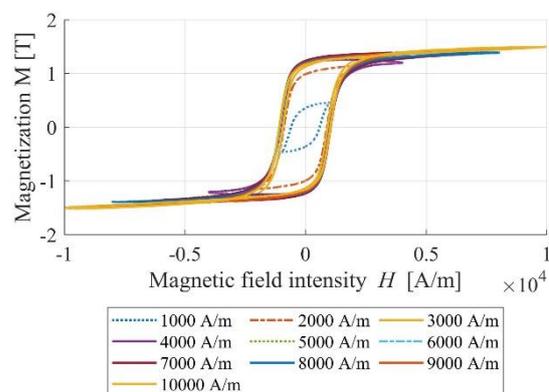


Fig.2 Dynamic magnetization curve at 1 kHz of a 2.9 μm thickness pure iron film

参考文献

- 1) 島田寛, 「磁性材料-物性・工学的特性と測定法」, 講談社サイエンティフィック, 1999
- 2) 太田恵造, 「磁気工学の基礎II」, 共立出版, 1973

Fe系微細結晶材料の磁場中熱処理による磁気特性及び信頼性

佐久間 穂崇、矢澤 翔大、渡邊 洋*、新妻 清純
(日本大学、*東静工業(株))

Magnetic Properties and Reliability of Fe-Based Nano-crystalline Materials
by Heat Treatment in Magnetic Field
H.Sakuma, S.Yazawa, H.Watanabe, K.Niizuma
(Nihon University, *TOHSEI INDUSTRIAL CO.,LTD.)

はじめに

近年、磁性部品開発においては、高周波化することで小型化、高効率化する傾向にある。しかし、周波数の高周波化は、透磁率の低下、損失の増大、損失による温度上昇、等の問題がある。そこで、高周波でも優れた軟磁気特性を有し、多様な磁性部品への適用が進められているナノクリスタル材料に着目した。

高周波での性能が求められている中、ナノクリスタル磁性材料において、磁場中熱処理を行い薄帯の幅方向にわずかに誘導磁気異方性を付与することで、低角型比の B-H ループを示し、高周波において、高い透磁率が得られることが報告されている。

本研究では、Fe-Cu-Nb-Si-B系ナノクリスタル磁性材料を用いて、薄帯幅方向に磁場中熱処理を行い、誘導磁気異方性と磁気特性及びその信頼性について検討を行う。

実験方法

Fe-Cu-Nb-Si-B系の厚さ14 μm のナノクリスタル材料の薄帯をトロイダルコア状に巻いた試料を印加磁場10kOeで磁場中熱処理を行った。熱処理温度Taを460 $^{\circ}\text{C}$ から660 $^{\circ}\text{C}$ とし、熱処理時間を30分一定で行った。雰囲気は大気、冷却速度は自然冷却で熱処理を行った。磁場中熱処理したコアは、インピーダンスアナライザによりインダクタンスLを測定し比透磁率 μ_r を算出した。結晶構造解析はXRDにて行った。磁心損失Pcv[kW/m³]はB-Hアナライザにより測定した。誘導磁気異方性の付与はB-Hループの角型比から判別した。

実験結果

磁場中熱処理を行なった際の温度変化(460 $^{\circ}\text{C}$ ~660 $^{\circ}\text{C}$)による角型比の熱処理温度依存性をFig.1に示す。Fig.1より、角型比は熱処理温度上昇とともに徐々に低下し540 $^{\circ}\text{C}$ 付近で角型比10%以下の最小値を示しその後温度上昇とともに増加した。さらに高温の650 $^{\circ}\text{C}$ 付近で急激に低下し660 $^{\circ}\text{C}$ では角型比1%未満となった。磁場中熱処理温度540 $^{\circ}\text{C}$ において、周波数500kHzでの比透磁率 μ_r が7000以上と高い磁気特性を示した。組織構造はbcc Feが生成していた。一方660 $^{\circ}\text{C}$ では周波数500kHzで比透磁率 μ_r は150と低い値を示した。組織構造はbcc Feの他に軟磁気特性を阻害するFe-B系化合物が生成されていた。

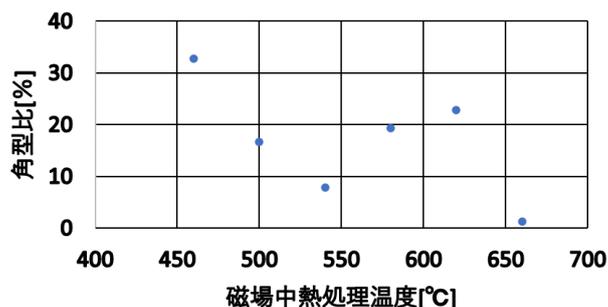


Fig.1 磁場中熱処理による角型比温度依存性

参考文献

- 1) Y.Yoshizawa, S.Oguma and K.Yamauchi, J.Appl.Phys., 64,(1988) 6044
- 2) 吉沢克仁、山内 清隆：「超微細結晶粒組織からなる Fe 基軟磁性」日本金属学会誌 53-2 (1989) P.241-248
- 3) 吉沢克二・森春幸・荒川俊介・山内清隆：ナノ結晶 Fe-Cu-Nb-Si-B 合金の誘導磁気異方性と磁気特性 日本応用磁気学会 19,457-460(1995)

侵入型元素共添加 α'' -Fe₁₆(N, C)₂ 粒子の合成

一 気相・固相反応プロセスによる新たな Fe 基侵入型化合物合成法の提案

○ 飛世 正博¹, 野村 祐司², 児玉 美香², 斉藤 伸¹

(1. 東北大学, 2. 太陽日酸株式会社)

Synthesis of interstitial co-addition α'' -Fe₁₆(N, C)₂ particles

一 Proposal of the synthesis method for new Fe-based interstitial compound by gas-solid reactions

Masahiro Tobise¹, Yuji Nomura², Mika Kodama², and Shin Saito¹

(1. Tohoku University, 2. TAIYO NIPPON SANSO CORPORATION)

はじめに α'' -Fe₁₆M₂相 (M= N, C) は, M 元素が *c* 軸方向の原子間隙に交互に侵入した規則構造であり, 薄膜や薄帯の実験によるとその一軸結晶磁気異方性エネルギーは 10^7 erg/cm³ (M: N) から -6×10^6 erg/cm³ (M: C) まで大きく変化することが知られている^{1) 2)}. したがって N と C を共添加した α'' -Fe₁₆M₂ 相では一軸結晶磁気異方性エネルギーを自在に制御できるため希土類フリーギャップ磁石から軟磁性コア材料まで様々なアプリケーションに道を拓くと考えられ, その粉体粒子の合成は極めて興味深い. 講演者らはこれまで水酸化鉄や酸化鉄を出発原料として α'' -Fe₁₆M₂ 粒子を合成する気相・固相反応プロセスの研究を行ってきた^{3) 4)}. N 侵入型化合物である α'' -Fe₁₆N₂ 粒子は α -Fe 粒子を NH₃ 雰囲気中 170 °C, 5 h 窒化処理することによって合成できるが, 同様に C 含有ガスを用いて α -Fe 粒子と反応させてもセメント Fe₃C が生成してしまい C 侵入型化合物を合成することは困難である. 今回侵入型元素である N と C を Fe の格子間に共添加するためにガス種, 反応ルート等を変えて検討した結果, 一旦 N のみを侵入させた α'' -Fe₁₆N₂ 粒子を経由させることによって α'' -Fe₁₆(N, C)₂ 粒子の合成が可能になることを見出したので報告する.

実験方法 出発原料には市販の Fe₃O₄ 粒子を用いた. H₂ ガスで 340~500 °C, 4 h 還元した後, NH₃ ガスで 150~180 °C, 5 h 窒化し, 引き続き CO あるいは C₂H₂ を用い 150~200 °C, 4~8 h の炭化処理を行った. 生成相は X 線回折, 磁気特性は VSM (最大印加磁場: 15 kOe) で評価した.

実験結果 気相・固相反応におけるガス種, 温度, 時間および反応ルートを検討した. 特に還元後の反応ルートについては窒化および炭化を同時に行うルート, 炭化を行い次に窒化を行うルート, 窒化を行い次に炭化を行うルートの 3 種類を検討した. この中で

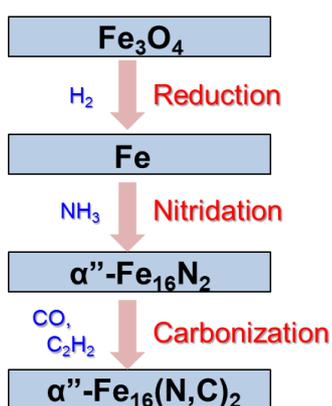


Fig. 1 The gas-solid reaction route to synthesize α'' -Fe₁₆(N, C)₂ particles.

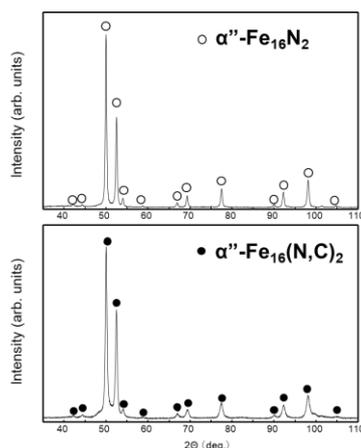


Fig. 2 XRD patterns of α'' -Fe₁₆N₂ particles and α'' -Fe₁₆(N, C)₂ particles.

α''-Fe₁₆(N, C)₂ を合成できたのは Fig. 1 に示した「窒化を行い次に炭化を行うルート」のみであった. Fig. 2 に還元温度: 400 °C, 窒化温度: 170 °C で合成した α'' -Fe₁₆N₂ 粒子, および同条件で還元・窒化後 170 °C で炭化することによって得られた α'' -Fe₁₆(N, C)₂ 粒子の XRD パターンを示した. α'' -Fe₁₆(N, C)₂ 粒子の回折角は α'' -Fe₁₆N₂ 粒子のそれとほぼ同じであった. 燃焼法による C 量分析の結果, 本試料には 0.8 wt% (α -Fe の C 固溶限: 0.02 wt% の 40 倍) の C が含まれていることがわかった. 別途行ったメスバウアー分光によると α'' 相には N 侵入のみでは説明できないスペクトルプリティンクが観測され

られており C が α'' 相に侵入していることを示唆している. 本報で紹介した「侵入型元素の置換法」は Fe 基侵入型化合物の新しい合成法として有用である.

参考文献 1) M. Takahashi et al., *J. Magn. Soc. Jpn.*, **239**, 479 (2002). 2) M. Mehedi et al., *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **50**, 37LT01 (2017). 3) M. Tobise et al., *AIP Adv.*, **9**, 035233 (2019). 4) M. Tobise et al., *IEEE Trans, Mag.*, **57**, 2100305 (2021).

金属カルボニル混合前駆体を用いた Fe-Mn 合金ナノ粒子の合成と磁気特性

小川智之, 吉田知将, 齊藤伸
(東北大学)

Synthesis of Fe-Mn alloy nanoparticles using metal carbonyl mixed precursor
and its magnetic properties

T. Ogawa, T. Yoshida, S. Saito
(Eng. Tohoku Univ.)

はじめに

モータやトランスの小型化には、軟磁性材料の高飽和磁化、高透磁率が求められている。これまで Fe に少量の Mn を添加することで良好な軟磁性を示すことが報告されている[1]。ナノサイズの Fe-Mn 粒子を凝集させることで、さらなる軟磁気特性の向上が期待される。本研究では、金属カルボニル反応前駆体を新たに合成し、それを用いた均一粒径を有する Fe-Mn ナノ粒子の合成を行った。また、磁気特性の評価を通して軟磁気特性の発現メカニズムを検討した。

実験方法

Fe-Mn ナノ粒子は作製時の酸化を限りなく抑えるため酸素濃度が 0.1ppm 未満に制御されたグローブボックス内で液相合成によって作製した。200°C に加熱したクロシン溶媒中に所望組成の $\text{Fe}(\text{CO})_5$, $\text{Mn}(\text{CO})_5$ と界面活性材としてオレイルアミンを混合した反応前駆体を投入し攪拌、反応後アセトンで洗浄し磁気回収、真空乾燥によって粉末を得た。得られた Fe-Mn ナノ粒子は真空中で熱処理し余分な界面活性剤を除去した。その後粉末を水素ガス中(流量 1L/min)で 200°C~800°C で熱処理し結晶性を向上させた[2]。構造解析には XRD, 透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いた。磁気特性の評価には VSM を用いた。

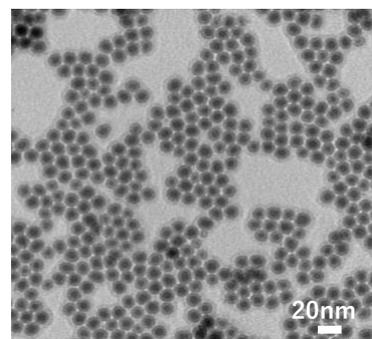


Fig.1 TEM image of Fe-Mn nanoparticles.

実験結果

合成した Mn 濃度 0.3% の Fe-Mn ナノ粒子の TEM 像を Fig.1 に示す。均一な 10nm 程度の粒径のナノ粒子が合成できていることが分かった。また、XRD による構造解析の結果(Fig.2), 真空熱処理後は(110)面起因の回折線のみが観測され短距離秩序となっているが、水素ガス中での熱処理によって長距離秩序を有する bcc 構造となっていることが分かった。また、磁化曲線の結果から、Mn 組成比が小さいナノ粒子で高い飽和磁化(219emu/g)と低い保磁力(0.70e)が観測されることが示されている。

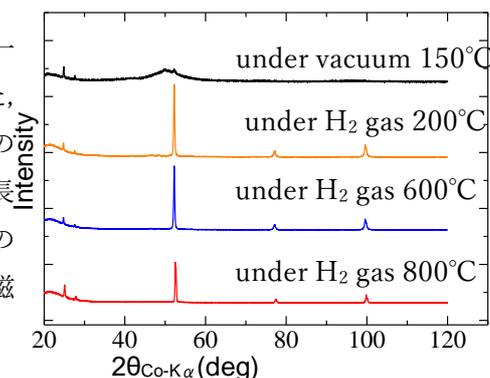


Fig.2 XRD patterns of Fe-Mn nanoparticles with different annealing conditions.

参考文献

[1] T. Kon, N. et al., *Journal of Alloys and Compounds*, **861**, 157983, (2021)

[2] M. Kin, et al., *Journal of Applied Physics*, **117**, 17E714 (2015)

謝辞

本研究の推進にあたり、反応前駆体の合成をご指導いただきました株式会社デンソー藏裕彰様に心より感謝申し上げます。

強磁性亜鉛フェライトにおける強磁性共鳴の温度依存性

安達信泰、難波研一、中田勇輔、新海圭亮 (名古屋工業大学)

Temperature dependence of the FMR spectra of Ferromagnetic Zinc Ferrite

N. Adachi, K. Naniwa, Y. Nakata, K. Shinkai (Nagoya Institute of Technology)

1.はじめに

可視光領域に高い透過率を示す ZnFe_2O_4 に関して、有機金属分解法により作製した薄膜の強磁性を報告してきた¹⁾。この強磁性は、キュリー一点が 190°C 付近にあること、可視光短波長領域で 80 K 程度の低温で、 -10^3 deg/cm ほどの比較的大きなファラデー回転を示すことを報告した。本研究では、磁気共鳴により ZnFe_2O_4 薄膜の磁気特性の温度特性について報告する。

2. 実験方法

ZnFe_2O_4 薄膜は有機金属溶液 (高純度化学) を石英基板上にスピコーティングして成膜し、熱処理結晶化して作製した。有機金属溶液は、Zn と Fe が 1:2 の組成比となるように混合し、溶液滴下後 100°C で 30min 乾燥し、有機物を分解させるために 300°C で 30min 仮熱処理を行った。これを約 $0.3\mu\text{m}$ の膜厚が得られるまで繰り返し、その後、熱処理を行い結晶化させた。様々な温度条件で作製した膜のうち、比較的大きな磁化を示す膜について評価を行った。

3. 結果と考察

結晶化した薄膜は単相のスピネル型構造を示す多結晶回折ピークのみが観測された。Fig. 1 には、 600°C 、1 時間で焼成した薄膜の 10 kOe までの磁気ヒステリシス曲線の温度依存性を示す。以前の報告で、キュリー一点は 190 K 付近にあることを示したが保磁力は温度の上昇とともに減少する。 4 K では、 700 Oe 程度の保磁力を示すが、温度を増大すると急速に保磁力は小さくなり、 80 K でほぼ保磁力は消失する。 500°C _2h の焼成条件で $44.5\text{ emu/g @ }30\text{ kOe}$ の磁化を示した試料について X バンドにおける磁気共鳴を観測した結果、Fig.2 に示すように 80 K 以下の低温領域で温度減少とともに共鳴磁界が低磁界側にシフトする。一方で、 100 K 以上では、温度の増大とともに共鳴磁界は、緩やかに大きくなる傾向を示し、キュリー温度前後でも連続的に変化し、室温で $g=2.01$ に相当する常磁性共鳴スペクトルが得られた。周波数と強磁性共鳴磁界との関係式

は: $f_0 = \frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{(H_r + H_A)(H_r + H_A + 4\pi M_s)}$ と表すことができ、異方性磁界 H_A が低温で増大することが 80

K 以下での共鳴磁界の著しい減少の原因と考えられる。関係式から逆算すると 4 K において、 $H_A=800\text{ Oe}$ と見積もられた。ただし、磁化の見積もりに常磁性成分が含まれている可能性もあり注意が必要である。

謝辞: 磁化、磁気共鳴測定で、分子科学研究所の伊木氏、藤原氏らスタッフの皆様にお世話になりました。ここに感謝致します。

Ref. 1) N. Adachi et.al., 第 44 回日本磁気学会学術講演概要集(2020) 15a-D1

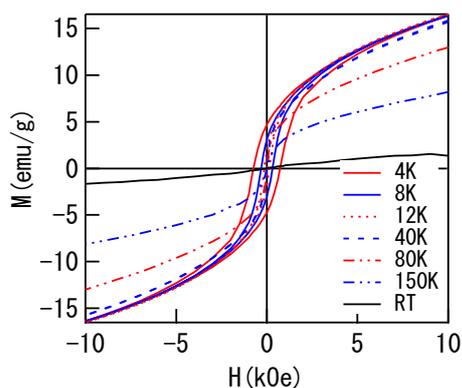


Fig.1 The temperature dependence of the magnetic hysteresis curves for ZnFe_2O_4 films annealed at 600°C , 1 hour.

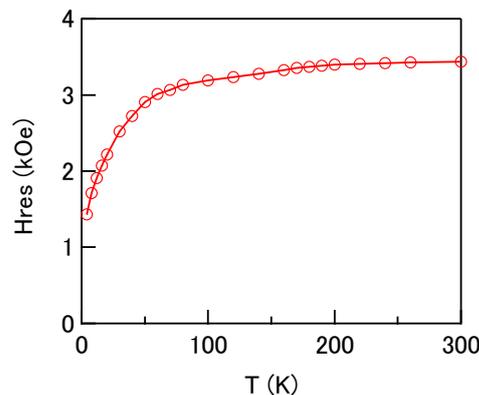


Fig.2. The temperature dependence of the magnetic resonance field of ZnFe_2O_4 film annealed at 500°C , 2 hour.

MgO(001)単結晶基板の上に形成した Fe-B-N 合金膜の構造と磁気特性

前田悠良¹・今村光佑¹・大竹充¹・川井哲郎¹・二本正昭¹・桐野文良²・稲葉信幸³
(¹横浜国大, ²東京藝大, ³山形大)

Structural and Magnetic Properties of Fe-B-N Alloy Films Formed on MgO(001) Single-Crystal Substrates
Yura Maeda¹, Kosuke Imamura¹, Mitsuru Ohtake¹, Tetsuroh Kawai¹, Masaaki Futamoto¹, Fumiyoshi Kirino², Nobuyuki Inaba³
(¹Yokohama Nat. Univ., ²Tokyo Univ. Arts, ³Yamagata Univ.)

はじめに Fe-B 合金は高い透磁率と飽和磁化を持ち、バルク材料は変圧器の低損失コアとして、薄膜材料は磁気センサなどで用いられている。これまで、軟磁気特性を向上させるために窒素 (N) を添加する試みが行われている¹⁻³⁾。しかしながら、B と N 組成を系統的に変化させて、構造と磁気特性を調べた報告はほとんどない。本研究では、基本特性を明らかにすることを目的に薄膜材料を活用し、反応性スパッタリング法により、Fe-B-N 膜の形成を試みた。そして、膜成長、構造および磁気特性を調べた。

実験方法 MgO(001)単結晶基板の上に 400 °C で 40 nm 厚の Fe-B-N 合金膜を形成した。ターゲットには Fe-B 合金を用い、Ar と N₂ の分圧を調整することにより N 添加量を変化させた。構造評価には RHEED および XRD、表面形態観察には AFM、磁化曲線測定には VSM を用いた。

実験結果 Fig. 1 に Fe₉₂B₈ 合金ターゲットを用いて窒素分圧を 0.1 および 5% として形成した Fe-B-N 膜の RHEED パターンを示す。窒素分圧 0.1% においては Fe-B-N(001)[110]_{bcc} || MgO(001)[100] の結晶方位関係でエピタキシャル成長していることが分かった。窒素分圧を 5% まで増加させると多結晶膜が形成された。Fig. 2 に窒素分圧を 0.1 および 5% で形成した Fe-B-N 膜の面外 XRD パターンを示す。窒素分圧 5% の膜では bcc(002), bcc(110), bcc(211) 面からの回折が現れており、多結晶であることを確認できる。このことより窒素添加がエピタキシャル成長を阻害することが示唆された。当日は、他の組成や磁気特性についても報告する。

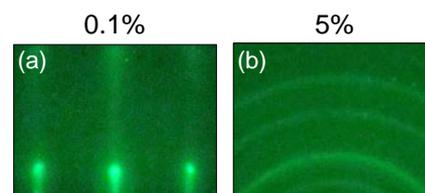


Fig. 1 RHEED patterns observed for Fe-B-N films formed on MgO(001) substrate under (a) 0.1 and (b) 5% P_{N₂}.

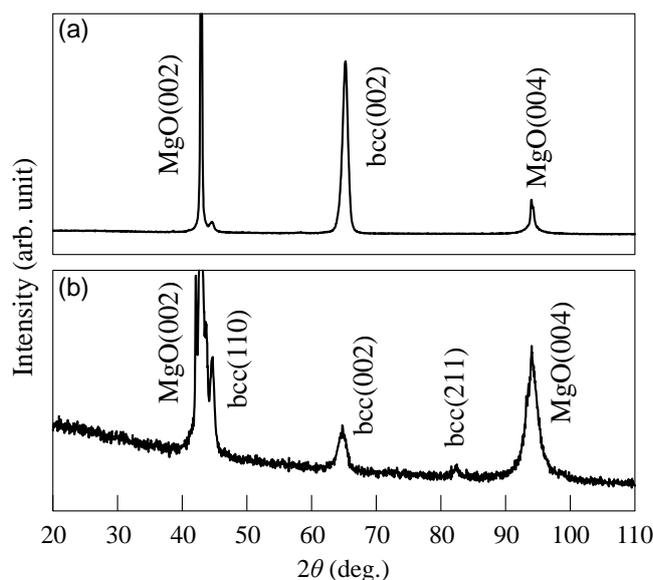


Fig. 2 Out-of-plane XRD patterns observed for Fe-B-N films formed on MgO(001) substrates under (a) 0.1 and (b) 5% P_{N₂}.

- 1) T. Shimatsu, Y. Sakai, M. Takahashi, T. Wakiyama, and K. Hiraga: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **15**, 351 (1991).
- 2) K.H. Kim, J.H. Jeong, J. Kim, S.H. Han, and H.J. Kim: *J. Magn. Magn. Mater.*, **239**, 487 (2002).
- 3) I. Fernandez-Martinez, M.S. Martin-Gonzalez, R. Gonzalez-Arrabal, R. Alvarez-Sanchez, F.Briones, and J.L. Cost-Kramer: *J. Magn. Magn. Mater.* **320**, 68 (2008).

Fe系ナノ結晶球形粉末コンポジット磁心の作製と特性評価

木村創一、川田奈波、曾根原誠、佐藤敏郎
(信州大学)

Fabrication and evaluation of Fe based nanocrystalline sphere powder composite core

S.Kimura, N.Kawada, M.Sonehara, T.Sato
(Shinshu University)

はじめに

近年、SiCやGaNパワー半導体の登場によりスイッチング電源モジュールのさらなる高効率化、小型軽量化が期待されているが、高周波で利用可能な磁心材料の開発がボトルネックとなっている。そこで筆者らは、フェライト磁心に代わる高周波電力用メタルコンポジット磁心を提案している。^[1]メタルコンポジット磁心はうず電流の抑制を目的とした微細な軟磁性粉末を採用し、非磁性樹脂をバインダとして作製する。本検討では、軟磁性粉末として磁歪定数の小さいFe-Si-Nb-B-Cu系ナノ結晶球形粉末に着目した。磁心にFe系ナノ結晶球形粉末を用いることで、先に筆者らが作製した微細Fe系アモルファス球形粉末コンポジット磁心よりも低保磁力・低損失の磁心を作製することが可能になると期待される。本報告は両者を用いた磁心を作製し、磁気特性を比較した結果を述べる。

実験方法

使用した軟磁性粉末は、熱酸化被膜が形成されたメディアン径3.5 μm のFe-Si-Nb-B-Cu系ナノ結晶球形粉末（以下、Fe-nanoと略記）と、メディアン径2.5 μm のFe-Si-B-Cr-C系アモルファス合金球形粉末（以下、Fe-AMOと略記）を用いた。これらの粉末をエポキシ樹脂をバインダとして大気中でキャスト成形し、熱硬化してコンポジット磁心を作製した。磁性体体積充填率はFe-nano系で64%、Fe-AMO系で67%であり、両者の違いは粉末粒度分布の違いに関係していると思われる。作製したコンポジット磁心の静磁化特性、複素透磁率と鉄損の周波数特性を測定した。

実験結果

Table 1はFe-nanoとFe-AMO粉末単体およびコンポジット磁心の保磁力を比較したものである。Fe-nano粉末とFe-AMO粉末は粉末単体での保磁力は同程度であるが、コンポジット磁心に成形後の保磁力はFe-nano粉末を採用した方がFe-AMO粉末の場合に対して1/3も小さい。低磁歪のFe-nano粉末は磁心成形時の歪みによる影響が小さいことが磁心保磁力が小さい理由であると考えられる。なお、コンポジット磁心の比透磁率は両者ともに約10であった。Fig.2に鉄損の周波数特性を示す。1MHzの鉄損はFe-nano粉末コンポジット磁心がFe-AMO粉末コンポジット磁心の半分程度であり、Fe-nano粉末とFe-AMO粉末の電気抵抗率が同程度であり、前者の方が粉末メディアン径が大きいことを考えると、Fe-nano粉末コンポジット磁心の方がうず電流損失は大きくなると推定され、1MHzの鉄損の違いはヒステリシス損失の違いが大きく寄与しているものと考えられる。コンポジット磁心の静磁化特性ならびに複素透磁率の周波数特性は学術講演会で報告する。

参考文献

- 1) K. Sugimura *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, vol.53, no.11, #2801406, Nov. 2017.

Table 1 Coercivities of Fe-nano and Fe-AMO powder and composite cores.

	Fe-nano (64vol.%)	Fe-AMO (67vol.%)
Coercivity $H_c(\text{Oe})$ (powder)	0.9	1.2
Coercivity $H_c(\text{Oe})$ (core)	1.0	3.2

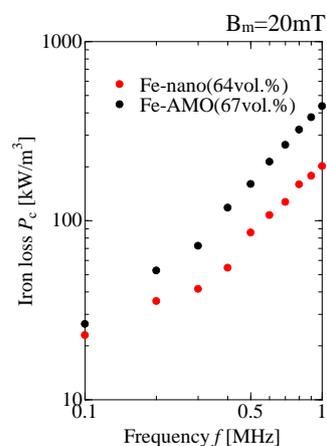


Fig.2 Iron loss of Fe-nano and Fe-AMO composite core.

対向ターゲット式スパッタ法による高周波動作用 CoZrO 薄膜の作製

河原和馬、金子忠幸、*安田智貴、*棚瀬純平、高村陽太、*藤崎敬介、中川茂樹
(東京工業大学、*豊田工業大学)

CoZrO nanogranular films for high frequency operation prepared by facing targets sputtering

K. Kawahara, T. Kaneko, T. Yasuda, J. Tanase, Y. Takamura, K. Fujisaki, S. Nakagawa
(Tokyo Tech, *Toyota Technol. Inst.)

はじめに

SiC や GaN デバイスによりパワーエレクトロニクス回路の動作周波数の高周波化¹⁾が進み、情報機器中の DC-DC コンバータでは 10 MHz 以上の動作が検討されている。このような高周波動作インダクタの磁性体コア材料には、強磁性共鳴磁気周波数(f_r , すなわち異方性)が十分に高く、かつ、うず電流損失を低減させるため極薄で電気抵抗率が高いことが求められている。このような材料候補の 1 つとして CoZrO ナノグラニューラー薄膜^{2,3)}が注目されている。本研究では、誘導磁気異方性の制御に優れた対向ターゲット式スパッタリング法(FTS)⁴⁾を用いて CoZrO 薄膜を作製し、その基本特性の評価を行った。

試料の作製方法

FTS の二つのターゲットの内、下部の Co ターゲット上に Zr チップを載せ、Ar と O₂ の混合ガスを用いた直流の反応性スパッタリングにより、ガラス基板上に膜厚 420 nm の CoZrO 薄膜を作製した。全ガス圧は 0.5 Pa, 酸素分圧は 1.6 %とした。基板温度は室温とした。

実験結果

X 線光電子分光法により、膜中の Co 原子が金属状態のまま存在することを確認した。組成比は Co₆₅Zr₁₁O₂₄であった。また、4 端子法で測定した電気抵抗率は 240 $\mu\Omega\text{ cm}^2$ とナノグラニューラー膜の典型値を示した。

CoZrO 薄膜の断面透過型電子顕微鏡 (TEM) 像 (Fig. 1) からコラムナ構造を有することがわかった。また、この領域の高速フーリエ変換解析 (Fig. 1 inset) から、Co コラムナ内は多結晶であることがわかった。

Fig. 2 に CoZrO 薄膜の直流磁場に対する磁化-磁場ヒステリシスループを示す。2つのループは面内で直交する 2 方向で測定したもので、FTS ターゲットに対して対向方向(Facing)が磁化容易軸、直交方向(Orthogonal)に磁化困難軸を持つ。これは FTS 成膜時に形成された誘導磁気異方性によるものである。直交方向のメジャーループのヒステリシス損失は、3100 J/m³と大きく、これは多結晶体であることが原因の 1 つと考えられる。飽和磁化 I_s は 1.1 T, 異方性磁界 H_k は、9100 A/m であった。 Kittel の式から算出される共鳴周波数 f_r は 3.17 GHz で、この値は 10MHz 帯で用いるには十分高いものである。

謝辞

TEM による Co-Zr-O 薄膜の断面観察は東工大オープンファシリティセンター分析部門を利用した。4 端子法による電気抵抗率測定は東京工業大学の山田・宮島研究室のご協力で実施した。本研究の一部は、文部科学省、省エネルギー社会の実現に資する次世代半導体研究開発の支援を受けて実施した。

参考文献

- 1) J. Millán et al, IEEE Trans. Power Electron., **29**, 2155 (2014).
- 2) Z. Liu et al, J. Magn. Magn. Mater., **262**, 308 (2003).
- 3) Y. Sun et al, IEEE Trans. Magn., **43**, 4060 (2007).
- 4) A. Hashimoto et al, J. Magn. Magn. Mater., **320**, 3008 (2008).

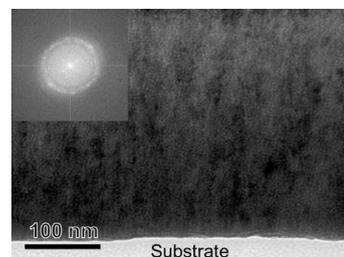


Fig. 1 Cross-section TEM images of the Co-Zr-O film prepared by FTS

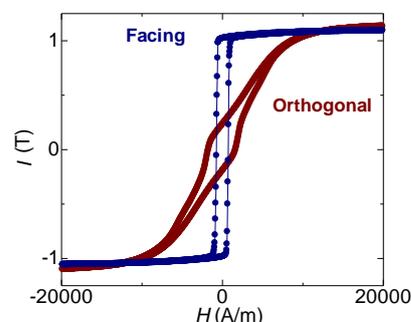


Fig. 2 In-plane dc magnetic hysteresis loop of a Co-Zr-O film prepared by FTS.

脱窒素法によるバリエーションの無い(110)配向 L1₀-FeNi 薄膜の作製

市村匠¹、伊藤啓太^{1,2}、西尾隆宏³、藏裕彰³、柳原英人⁴、高梨弘毅^{1,2,5}
(東北大金研¹、東北大 CSRN²、株式会社デンソー³、筑波大物工⁴、東北大 CSIS⁵)

Fabrication of variant-free (110)-oriented L1₀-FeNi films by a denitriding method

T. Ichimura¹, K. Ito^{1,2}, T. Nishio³, H. Kura³, H. Yanagihara⁴, K. Takanashi^{1,2,5}
(IMR, Tohoku Univ.¹, CSRN, Tohoku Univ.², DENSO CORPORATION³,
Department of Applied Physics, Univ. of Tsukuba⁴, CSIS, Tohoku Univ.⁵)

【緒言】 一軸磁気異方性エネルギー(K_u)が高い磁性材料の多くは希少元素(希土類、貴金属元素)を含んでいるため、安価な元素で代替できれば自動車分野をはじめとしたモーター用永久磁石材料の需要に応えることができる。我々は豊富に存在する Fe、Ni からなり、高い飽和磁化(M_s)および K_u を持つことが知られている L1₀-FeNi に注目して、単結晶薄膜の作製と規則度(S)および K_u の向上に取り組んできた¹⁾。これまでに共蒸着法により膜面直方向に a 軸(磁化困難軸)配向したエピタキシャル FeNiN 薄膜を作製し、脱窒素熱処理²⁾を行うことで a 軸配向した L1₀-FeNi 薄膜の作製に成功した³⁾。しかし、 $S = 0.87$ の高い規則度が得られた一方で $K_u = 5.9 \times 10^5 \text{ J/m}^3$ となり、期待される値($> 1.0 \text{ MJ/m}^3$)よりも小さかった。この要因として、膜面内で2つの c 軸(磁化容易軸)が直交した2種類のナノメートルサイズのバリエーションが形成された結果、正味の K_u が過小評価された可能性が考えられる³⁾。そこで、バリエーションが存在しないエピタキシャル薄膜を作製できれば、正確な K_u の評価が期待される。本研究では、FeNiN 薄膜に対する脱窒素法によるバリエーションの無い単結晶 L1₀-FeNi 薄膜の作製と正確な K_u の評価を目的とし、分子線エピタキシー(MBE)法により作製したバリエーションの無い FeNiN(110)薄膜に脱窒素熱処理を行うことで L1₀-FeNi(110)薄膜を作製した。

【実験方法】 Fe、Ni および高周波(RF)N₂ の同時供給による MBE 法により、適切な酸化物単結晶基板の上に FeNiN(110)薄膜(20 nm)のエピタキシャル成長を試みた。N₂ 流量を 1.0 sccm、RF 入力を 300 W、基板温度を 350 °C とし、Fe:Ni の組成比が 1:1 となるように制御した。その後、水素流量 2 L/min で 200 °C、2 h の脱窒素熱処理を行なった。解析には面外(ω - 2θ)および面内(ϕ - $2\theta_\chi$)[110]方向と[001]方向からの X 線回折(XRD)と、室温における磁化測定を行なった。

【結果】 ω - 2θ 測定では FeNiN 220 ピークが見られた。一方、 ϕ - $2\theta_\chi$ 測定では基板[110]方向からの測定では FeNiN 220 ピーク、基板[001]方向からの測定では FeNiN 002 ピークのみがそれぞれ見られた。また、磁化測定で磁化がほとんど見られなかった。以上の結果から、バリエーションの無い反強磁性 FeNiN(110)膜が得られた。脱窒素熱処理後は、 ω - 2θ 測定では L1₀-FeNi 220 ピークが、 ϕ - $2\theta_\chi$ 測定の基板[110]方向からの測定では L1₀-FeNi 220 ピーク、基板[001]方向からの測定では L1₀-FeNi 002 ピークのみがそれぞれ見られた。また、面内外部磁場の方向を[110]と[001]で変えた磁化測定から、膜面内の L1₀-FeNi[001]方向に沿った一軸磁気異方性を確認できた。 $\mu_0 M_s = 1.55 \pm 0.03 \text{ T}$ であり、二方向の磁化曲線で囲まれた面積から $K_u = (3.05 \pm 0.06) \times 10^5 \text{ J/m}^3$ と算出された。 K_u が期待される値よりも小さいことから、今後はこの試料の S を評価する予定である。

【参考文献】 1) K. Takanashi *et al.*, J. Phys. D: Appl. Phys. **50**, 483002 (2017). 2) S. Goto *et al.*, Sci. Rep. **7**, 13216 (2017). 3) K. Ito *et al.*, Appl. Phys. Lett. **116**, 242404 (2020).

【謝辞】 本研究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研究プログラム「次世代自動車向け高効率モーター用磁性材料技術開発」(課題番号:JPNP14015)の成果である。

Fe₂Ni₂C および Fe₂Ni₂N の磁気異方性定数の第一原理計算

小田 洋平¹・佐久間 昭正²
(¹ 福島高専・² 東北大)

First-principles calculations of magnetic anisotropy constant in Fe₂Ni₂C and Fe₂Ni₂N

Y. Kota¹ and A. Sakuma²
(¹Fukushima KOSEN, ²Tohoku Univ.)

1 はじめに

希少元素フリー磁石材料の候補となる物質としてこれまでに FeCo, FeNi あるいは MnAl, MnGa などの規則合金に注目が集まり研究が行われてきた。これらの物質に関しては、理論計算では大きな磁気異方性を示す結果が得られているものの、実験においては理論での物質モデルのような極めて理想的な状態を作り出すのは難しく期待通りの特性が得られていないのが実状と言える。主な原因の一つとして、Fe, Co, Ni の 3d 遷移元素のみの合金では規則相と不規則相とのエネルギー差が小さいため規則構造が得られにくい問題が考えられる。加えて Mn 合金についても Al や Ga などの大きな典型元素が入ると体積あたりの磁化が大幅に減少するというそもそもの問題も実用上は見逃すことができない。したがって我々はこれらの問題点を解決するような新しい物質の設計を試みているが、Fe₁₆N₂ や Mn₄N のような正方晶の対称性を有する物質が数 MJ/m³ の一軸異方性を示すことが報告されていることから¹⁾, 3d 遷移元素と軽元素 (2p 典型元素) の化合物に注目している。また最近、脱窒化法による L1₀ 型 FeNi 作製の研究の報告もあるが²⁾, その中間物質である FeNiN も比較的大きな一軸異方性を示すことが知られている³⁾。そこで本研究では第一原理計算により FeNi に N および C を添加したときの磁気異方性定数を評価したのでその結果を報告する。

2 結果および考察

以下の表は FeNi および FeCo に C または N を添加し、いわゆる逆ペロブスカイト型の構造となった場合の磁化 M_s ならびに一軸異方性定数 K_u の計算結果である。これらの物理量の第一原理計算には Vienna *ab-initio* simulation package (VASP) を用い、先行研究^{3,4)}があるものについてはその計算結果を再現することを確認した。得られた結果より、軽元素を含まない Fe₂Ni₂ (L1₀-FeNi) と比べて M_s は同等の大きさ、または小さくなるが、MnAl ($M_s \sim 500$ kA/m) よりは大いことが分かる。ただ Fe₂Co₂C, Fe₂Co₂N については K_u が小さい、または負の値となり磁石材料としては不適である。FeCo は格子ミスフィットによって適当なひずみを与えることで大きな磁気異方性を示すことが知られているが、ひずみのない逆ペロブスカイト型の構造では期待されていた磁気異方性は得られないと言える。一方、FeNi については軽元素を含ませることにより K_u が L1₀-FeNi よりも大きくなっており、特に Fe₂Ni₂C の K_u は MnAl や MnGa ($K_u \sim 1\text{--}2$ MJ/m³) をも超える値となっている。講演では他に Disordered Local Moment 法を用いて計算した Fe₂Ni₂, Fe₂Ni₂C, Fe₂Ni₂N の K_u の温度依存性の結果についても報告する予定である。

Composition	M_s (kA/m)	K_u (MJ/m ³)
Fe ₂ Ni ₂	1328	0.563
Fe ₂ Ni ₂ C	1055	2.984
Fe ₂ Ni ₂ N	1073	1.889
Fe ₂ Co ₂ C	1150	0.296
Fe ₂ Co ₂ N	1412	-0.460

References

- 1) L. Ke *et al.*, Phys. Rev. B **88**, 024404 (2013); S. Isogami *et al.*, Phys. Rev. Mater. **4**, 014406 (2020).
- 2) K. Ito *et al.*, Appl. Phys. Lett. **116**, 242404 (2020).
- 3) 辻川 *et al.*, 第 38 回日本磁気学会学術講演会 (2014); 伊藤 *et al.*, 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会 (2017).
- 4) Y. Miura *et al.*, J. Phys.: Condens. Matter. **25**, 106005 (2013).

機械学習を用いた高磁気異方性材料の効率的探索と創製

古矢 大悟¹, 中尾 太一¹, 齋藤 彪我¹,
宇田 皓一, 三浦 良雄², 小嗣 真人¹
(東理大先進工¹, 物質・材料研究機構²)

High Through-put Exploration and Fabrication of Large Magnetic Anisotropy Materials Using Machine Learning

Daigo Furuya¹, Nakao Taichi¹, Hyuga Saito¹,
Koichi Uda¹, Yoshio Miura², Masato Kotsugi¹
(Tokyo Univ. of Science¹, NIMS²)

はじめに

高磁気異方性材料は、省電力且つ超高速の磁気メモリの実現を支える重要な磁気特性である。これまでの材料創製では、様々な構成元素や積層構造を人力で探索してきた。しかし多元素系では組み合わせ爆発が起きることから、膨大な数の候補を網羅的に作製する事が困難だった。そこで我々は機械学習の代表例である「ベイズ最適化」を活用し、高い異方性を有する磁性多層膜の効率的な探索手法を開発した^[1]。ベイズ最適化は Black-Box 関数最適化手法の一つであり、データ収集コストが高い分野においても、少ない試行数で最適解を得られる等の利点がある。本研究ではベイズ推定に基づいて高磁気異方性材料を予測し、そこで予測された材料の創製を行なった結果について報告する。

実験方法

膜構成の予測では、Fe, Co, Ni, Cu の 4 種類の元素と 4 周期までの超周期構造を対象にし、第一原理計算とベイズ最適化を融合した材料探索を行った。ベイズ推定の探索方針は、異方性の期待改善度が高い点を次の候補とする獲得関数 EI を用いた。またデータ同士の類似度を表すカーネル関数には Matern52 を用いた。実験ではベイズ最適化により予測した 2 種類の候補物質 (Fe/Cu/Co/Cu)₁₃, (Fe/Co/Fe/Ni)₁₃ について、PLD 装置を用いた単原子交互積層によって 52ML の薄膜を成膜した。表面の結晶性は反射高速電子回折、表面平坦性は原子間力顕微鏡、結晶構造は X 線回折、磁気特性評価は超伝導量子干渉磁力計を用いて行なった。

実験結果

Fig.1(a)の(Fe/Cu/Co/Cu)₁₃の磁化曲線から飽和磁化 M_s と磁気異方性エネルギー K_u は 906.4 emu/cc, 1.44×10^6 erg/cc と算出された。また Fig.1(b)の (Fe/Co/Fe/Ni)₁₃ の磁化曲線から M_s と K_u は 1312.9 emu/cc, 3.74×10^6 erg/cc と算出され、非常に高い磁気特性を示した。この結果は我々の先行研究の $L1_0\text{FeNi}$ ^[2], $L1_0\text{FeCo}$ ^[3] を超える値であり、ベイズ最適化を用いて高磁気異方性材料の予測と創製を実現したと言える。

参考文献

- 1) 古矢大悟 他, 第 68 回応用物理学会春季学術講演会, 19a-Z32-9, (2021)
- 2) H. Ito et.al., AIPAdv., 9, 045307, (2019)
- 3) M. Saito et.al., Appl.Phys.Lett. 114, 072404, (2019)

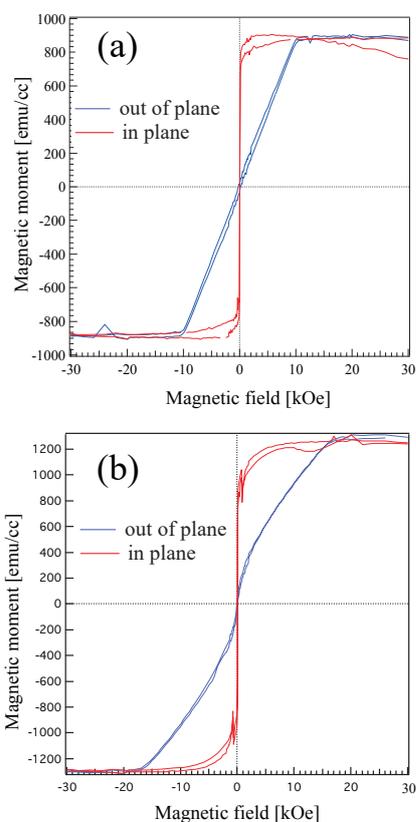


Fig.1 Magnetization curve of deposited on room temperature.
(a) (Fe/Cu/Co/Cu)₁₃, (b) (Fe/Co/Fe/Ni)₁₃

Al₂O₃(0001)単結晶基板上 CoPt 多積層薄膜における CoPt の規則化

遠山諒¹、河智史朗^{2,3,4}、山浦淳一^{2,3}、村上洋一³、細野秀雄²、真島豊^{1,2}

(¹東工大フロンティア材料研究所、²東工大元素戦略研究センター

³KEK 物質構造科学研究所、⁴兵庫県立大学理学研究科)

Ordering of CoPt in CoPt multilayer thin films on Al₂O₃(0001) single-crystal substrates

R. Toyama¹, S. Kawachi^{2,3,4}, J. Yamaura^{2,3}, Y. Murakami³, H. Hosono², Y. Majima^{1,2}

(¹MSL, Tokyo Tech, ²MCES, Tokyo Tech, ³IMSS, KEK, ⁴Graduate School of Science, Univ. of Hyogo)

はじめに

磁気抵抗ランダムアクセスメモリや超高密度ハードディスクドライブなどのナノスケールの磁石を用いるスピントロニクスデバイスでは、高い垂直結晶磁気異方性 (PMA) と大きな保磁力 (H_c) を有する強磁性材料が用いられている。Pt 基二元合金である CoPt は、熱処理により $A1$ 不規則相から $L1_0$ 規則相に構造変態すると、 10^7 erg/cm³ 台の高い PMA と 10 kOe 以上の大きな H_c を示す強磁性体となるため、これらのデバイス応用のための有用な材料である。近年、我々は、熱酸化膜付き Si 基板上に作製した CoPt 多積層薄膜におけるアニール処理後の結晶構造、磁気特性、表面形態の解析を行い、CoPt の $L1_0$ 規則化を報告してきた^[1,2]。Pt/Co 二層薄膜においては、急速熱処理に起因する相互拡散により、 $L1_0$ 規則化 CoPt を含む傾斜薄膜が形成されたことを確認した^[1]。また、(Co/Pt)₄ 八層薄膜においては、球状の $L1_0$ 規則化 CoPt が形成されることを確認した^[2]。さらに我々は、Si 基板上 CoPt の規則化に対する Ti 下地層の効果を検証し、Ti 下地層の導入により $L1_2$ 規則化 CoPt₃ が発現することを報告してきた^[2]。本研究では、基板表面の方位の揃った Al₂O₃(0001)単結晶基板上に CoPt 多積層薄膜を作製し、アニール処理後の結晶構造と表面形態の解析を行ったので報告する。

実験方法

電子線蒸着により、Al₂O₃(0001)単結晶基板上に、[Co (1.2 nm)/Pt (1.6 nm)]₄ 薄膜を作製した。これまでの報告との比較のため、下地層として Ti を導入した試料も作製した。その後、Ar/H₂ 混合ガス雰囲気下においてアニール処理を行った。結晶構造と表面形態はそれぞれ、KEK PF BL-8B におけるすれすれ入射 X 線回折 (GI-XRD) と走査電子顕微鏡 (SEM) により評価した。

実験結果

800 °C でアニール処理を行った(Co/Pt)₄ 薄膜 (下地層なし) において、GI-XRD で $L1_0$ -CoPt 001 , 110 に起因する超格子反射を確認したことから、CoPt の $L1_0$ 規則化を確認した。一方、Ti (3 nm) の下地層を導入した(Co/Pt)₄ 薄膜では、800 °C のアニール処理後に $L1_2$ 規則化 CoPt₃ を確認した。

謝辞

本研究の一部は、文部科学省「元素戦略プロジェクト<研究拠点形成型>」(Grant No. JPMXP0112101001) と日本学術振興会特別研究員奨励費 (Grant No. 21J13665) の支援により行われた。KEK PF BL-8B における GI-XRD 実験は、2016S2004, 2019V003, 2019G534 の課題のもと行われた。VSM 測定は、東京大学物性研究所共同利用 (課題番号: 7, 8, 77, 271, 202012-GNBXX-0012) のもと行われた。

参考文献

- [1] R. Toyama, S. Kawachi, S. Iimura, J. Yamaura, Y. Murakami, H. Hosono, and Y. Majima, *Mater. Res. Express* **7**, 066101 (2020).
 [2] R. Toyama, S. Kawachi, J. Yamaura, Y. Murakami, H. Hosono, and Y. Majima, *Jpn. J. Appl. Phys.* **59**, 075504 (2020).

エピタキシャル Mn-Al 合金薄膜の構造と磁気特性に及ぼす膜厚の影響

野呂翔太¹・中野光太郎¹・大竹充¹・二本正昭¹・川井哲郎¹・桐野文良²・稲葉信幸³
 (¹横浜国大, ²東京藝大, ³山形大)

Influence of Film Thickness on the Structural and Magnetic Properties of Epitaxial Mn-Al Alloy Thin Films
 Shota Noro¹, Kotaro Nakano¹, Mitsuru Ohtake¹, Masaaki Futamoto¹, Tetsuroh Kawai¹, Fumiyoshi Kirino², Nobuyuki Inaba³
 (¹Yokohama Nat. Univ., ²Tokyo Univ. Arts, ³Yamagata Univ.)

はじめに 大きな一軸磁気異方性エネルギー (K_u), 小さな飽和磁化 (M_s), 小さなダンピング定数 (α) をもつ硬磁性膜は, スピン注入型磁気抵抗メモリの磁気トンネル接合素子への応用に向けて研究されている. $L1_0$ (CuAu 型, $tP4$) 構造をもつ Mn-Al 合金膜は, (K_u, M_s, α) = (1.5×10^7 erg/cm³¹⁾, 500 emu/cm³²⁾, 0.006³⁾ という物性を持ち, 上記条件を満たす材料のひとつである. しかしながら, これまでの Mn-Al 合金膜の報告例では, 比較的, 膜厚が厚いことが多く, 実際のデバイス応用を考えるためには数~数十 nm オーダーの膜厚における構造と磁気特性を把握する必要がある. 本研究では, RHEED による結晶成長のその場観察が可能な分子線エピタキシー法を用いて, Mn-Al 膜の成長過程の観察を行った. その上で, 膜厚を変化させ, 構造と磁気特性を系統的に調べた. 作製した膜に熱処理を施し, 特性向上を試みた.

実験方法 Cr(001)下地層上に 300 °C で Mn-Al 合金膜を成長させた. 膜厚は 2~100 nm の間で変化させた. 結晶構造評価には RHEED, 格子定数や規則度の評価には XRD, 表面形態観察には AFM, 磁化曲線測定には VSM を用いた.

実験結果 Mn-Al 膜に対して観察を行った RHEED パターンを Fig. 1 に示す. 膜成長の初期過程から 100 nm の膜厚まで, Fig. 1(f)の模式図に対応する $L1_0$ 単相のパターンが得られた. 熱処理の有無が異なる, 膜厚 100 nm の試料に対して測定した面外 XRD パターンを Fig. 2 に示す. いずれも $L1_0(001)$ 超格子反射が見られたが, 基本反射(002)に対する強度比 I_{001}/I_{002} は, 熱処理無し試料が 0.55, 熱処理有り試料が 0.67 であり, 規則度が向上していることが分かる. 当日は, 構造と磁気特性の膜厚依存性について議論する.

- 1) A. Sakuma: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **63**, 1422 (1994).
- 2) J. H. Park, Y. K. Hong, S. Bae, J. J. Lee, J. Jalli, G. S. Abo, N. Neveu, S. G. Kim, C. J. Choi, and J. G. Lee: *J. Appl. Phys.*, **107**, 09A731 (2010).
- 3) M. Hosoda, M. Oogane, M. Kubota, T. Kubota, H. Saruyama, S. Iihama, H. Naganuma, and Y. Ando: *J. Appl. Phys.*, **111**, 07A324 (2012).
- 4) M. S. Parvin, M. Oogane, M. Kubota, M. Tsunoda, and Y. Ando: *IEEE Trans. Magn.*, **54**, 3401704 (2018).

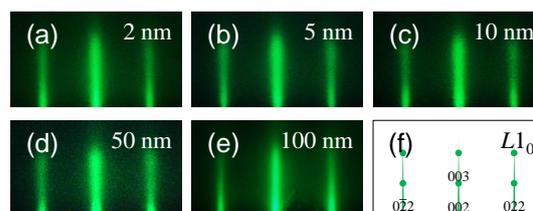


Fig. 1 (a)–(e) RHEED patterns observed for Mn-Al film. (f) Schematic diagrams of RHEED pattern simulated for (001) single-crystal surface with $L1_0$ structure.

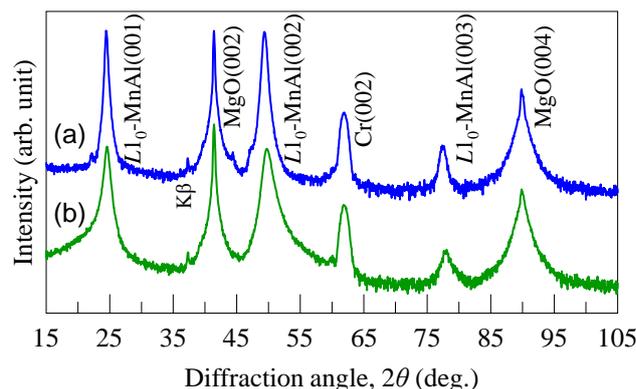


Fig. 2 Out-of-plane XRD patterns of Mn-Al films (a) after annealing and (b) before annealing. The intensity is shown in logarithmic scale.

FePt エピタキシャル薄膜の成長形態に与える 表面自由エネルギーの影響

鈴木一平、ホセイン・セペリアミン、高橋有紀子、宝野和博 (物材機構)

Effect of surface free energy on the growth mode of FePt epitaxial thin films

I. Suzuki, H. Sepehri-Amin, YK. Takahashi, and K. Hono (NIMS)

はじめに

$L1_0$ -FePt 薄膜は、その巨大な垂直磁気異方性⁽¹⁾やスピンホール効果⁽²⁾などから、次世代磁気記録媒体やスピントロニクス応用の観点で盛んに研究されている。ところが、同じ材料であっても要求される薄膜形態はその用途に応じて異なる。例えば、磁気記録媒体では島状成長が不可欠であるが、スピントロニクスでは、多くの場合で連続膜が求められる。そのため、薄膜形態を用途に応じて適切に制御することは極めて重要である。エピタキシャル薄膜の成長形態は、基板との格子不整合や表面自由エネルギーが重要な要素であることが知られている。FePt 薄膜については、格子不整合が薄膜形態に与える影響は調べられてきた⁽³⁾一方で、表面自由エネルギーの影響についての定量的な評価はほとんどなされていない。そこで我々は、格子不整合を変えずに、表面自由エネルギーを変調した際の、FePt エピタキシャル薄膜の成長形態について調べた⁽⁴⁾ので、これを報告する。

実験方法

格子定数を変えずに下地層の表面自由エネルギーを変調するために、下地層として MgO(001)基板、及び MgO(001)にエピタキシャル成長した NiO(001)、MgO 基板を窒素雰囲気中でアニールすることによって準備した MgON 表面を用いた。これら MgO, NiO, MgON の表面自由エネルギーは、純水及びジヨードメタンをプローブとした接触角測定結果を Owens-Wendt モデルに基づいて評価した。それら 3 種の表面上に、1.2 nm 及び 12 nm の FePt 薄膜をマグネトロンスパッタ法によってエピタキシャル成長させた。作製した試料の構造は TEM 及び XRD を、磁気特性は SQUID-VSM を用いてそれぞれ評価した。

結果

MgO, NiO, MgON の表面自由エネルギーはそれぞれ 39.6 mJ/m^2 , 59.4 mJ/m^2 , 63.6 mJ/m^2 であり、NiO および MgON は MgO より大きな表面自由エネルギーを有していることが分かった。Fig. 1 には MgO, NiO, MgON、それぞれの表面にエピタキシャル成長した膜厚 1.2 nm の FePt 薄膜の平面 TEM 像を示す。MgO では明瞭な島状成長が見られ、その被覆率は 50%程度であるが、MgON では粒子間がつながった組織が観察された。NiO においては、より連続膜に近い組織が見られ、その被覆率は 82%に達する。この時、格子不整合はほとんど同一であるため、これら薄膜形態の違いは表面自由エネルギーの違いに起因する。すなわち、表面自由エネルギーを変調することによって FePt 薄膜の成長モードが制御可能であることを示す。

参考文献

- 1) J. -U. Thiele *et. al.*, J. Appl. Phys. **84**, 5686 (1998).
- 2) T. Seki *et. al.*, Nat. Mater. **7**, 125 (2008).
- 3) K. F. Dong *et. al.*, J. Appl. Phys. **113**, 233904 (2013).
- 4) I. Suzuki *et. al.*, ACS Appl. Mater. Interfaces. **13**, 16620 (2021)

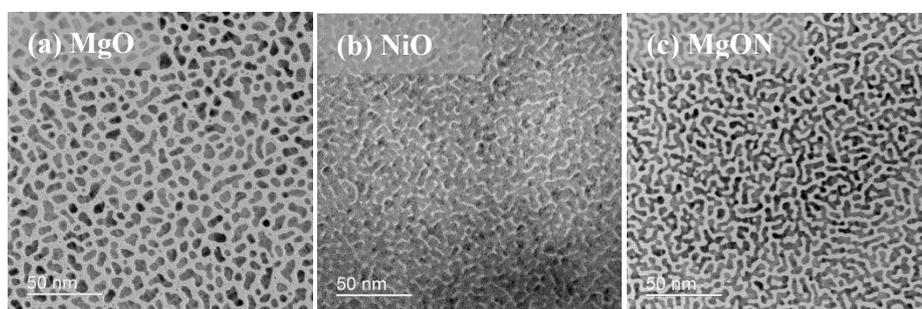


Fig.1 Plan-view bright-field-TEM images of 1.2 nm-thick-FePt films on (a)MgO, (b) NiO and (c) MgON, respectively.

90度磁気結合の材料依存性と温度依存性

劉楚寒¹、橋本直樹¹、堀池周¹、黒川雄一郎¹、湯浅裕美¹¹九州大学

Biquadratic magnetic coupling dependence on material of spacer and temperature

Chuhan Liu¹, Naoki Hashimoto¹, Shuu Horiike¹, Yuichiro Kurokawa¹, and Hiromi Yuasa¹¹(Kyushu-Univ.)

はじめに

反強磁性体は高速ダイナミクスには魅力的であるが、しかし汎用の電流で電流駆動磁化発振を観測することは困難である。そのため、我々は90度の磁気結合を利用して作製した逆平行磁化を交互に持つ磁区からなる人工反強磁性体を提案した。シミュレーションより、スピントルク発振の周波数は90度の磁気結合が増加するにつれて上昇することが示された¹⁾、²⁾。そこで本報告では、より高い90度磁気結合を発現するためスペーサーの材料探索を行い、その起源を説明するため温度依存性を調べた。

実験方法

SiO₂基板上にスパッタリングされたサンプル構造と磁化構成を図1に示す。Co₉₀Fe₁₀(A)の磁化は、IrMnからの交換相互作用によってx方向に均一に固定される。スペーサーを介したCo₉₀Fe₁₀(A)と(B)間の90度磁気結合により、Co₉₀Fe₁₀(B)は疑似反強磁性層になり、Co₉₀Fe₁₀(B)の磁化は+/- y方向に沿っている。Co₉₀Fe₁₀(C)は磁気フリー層である。我々はCr(1nm、2nm、および3nm)とCr-Oを使って磁化曲線を測定した。測定装置はVibrating Sample Magnetometer (VSM)である。

実験結果

図2(a)は、y方向の磁場にさまざまなスペーサー材料を使ったサンプルの磁化曲線を示している。ここで、保磁力の大きさは90度磁気結合の強さに対応する。保磁力はスペーサー材料に強く依存し、高い順に、Cr 1nm、Cr 2nm、Cr 3nm、Cr-O、Fe-Oとなった。Cr-OとFe-Oの保磁力が小さい理由の1つは、Cr-OとFe-Oでは非磁性領域が多く、90度磁気結合に寄与するスピンの連続的に存在しないことが考えられる。これと比較すると、金属Crは層全体にスピンの存在があり、強い90度磁気結合が発現するものと考えられる。スペーサー材料が非磁性であるAlの場合、90度磁気結合の四重極結合定数 B_{12} は温度依存性が大きいことが知られる³⁾。これと比較するため、Cr 1nmスペーサーのサンプルについて、保磁力および四重極結合定数 B_{12} の温度依存性を調べ、図2(b)に示した。まず保磁力に着目すると、温度を下げることで、Co₉₀Fe₁₀(B)の保磁力が大幅に上昇したが、自由層Co₉₀Fe₁₀(C)の保磁力は変化しなかった。これは、Co₉₀Fe₁₀(B)の保磁力の温度依存性が、材料の保磁力ではなく、90度磁気結合によって引き起こされていることを示している。一方、四重極結合定数 B_{12} も温度を下げると増加するものの、その増加量は1.2倍ほどであり、過去に示されたAlスペーサーで2倍以上であると事と比べると温度依存性は小さく、発現機構が異なることを示唆する。

参考文献

- 1) G. Nagashima, *et al*, J. Appl. Phys., **126** (2019) 093901.
- 2) S. Horiike *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **59** (2020) SGGI02.
- 3) C.J. Gutierrez, *et al*, J. Magn. Magn. Mater. **116** (1992) L305.

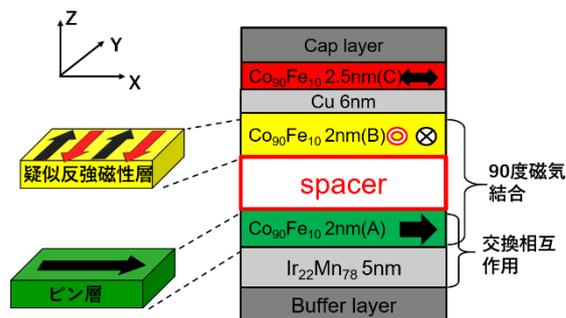
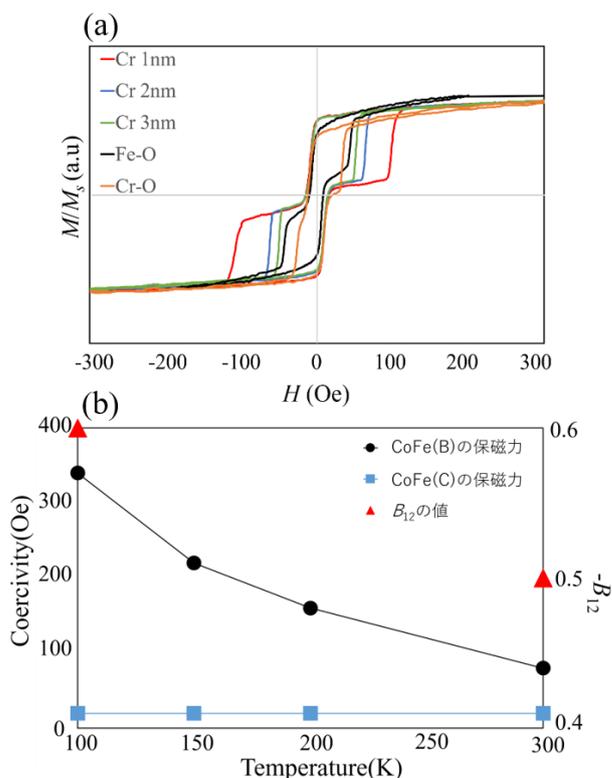


図1 サンプルの構造

図2 (a) スペーサー層膜厚と材料による磁化曲線形状の変化、(b) 温度によるCoFeの保磁力と B_{12} の変化

強磁性超薄膜／反強磁性薄膜における交換バイアスおよび超常磁性 ブロッキング温度に対する反強磁性秩序の影響

白土 優、陶 亦然、豊木研太郎、中谷亮一
(大阪大学大学院工学研究科)

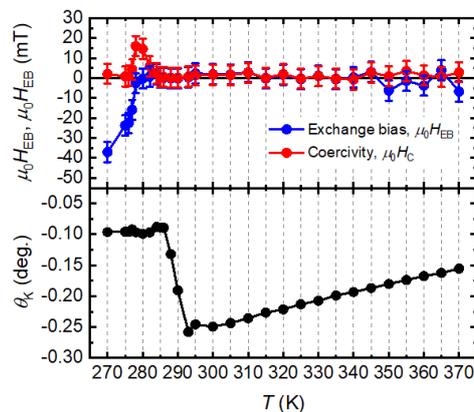
Influence of antiferromagnetic ordering on exchange bias and superparamagnetic blocking temperature in
ferromagnetic/antiferromagnetic thin film

Yu Shiratsuchi, Yiran Tao, Kentaro Toyoki and Ryoichi Nakatani
Graduate School of Engineering, Osaka University

【緒言】 超薄膜やナノ粒子などのナノサイズの磁性体においては、磁化反転のエネルギー障壁が熱エネルギーと同程度となる場合に超常磁性が観測される。超常磁性は、磁場を除去した際に正味の磁化が消失することから、多くの磁気デバイスにおいては抑制することが必要とされる。反強磁性体／強磁性体界面における交換磁気異方性は、超薄膜やナノ粒子等の実効的な磁気異方性エネルギーを上昇させる効果として利用されることがある。この系においては、超常磁性ブロッキング温度 (T_{B_SPM}) が反強磁性層のネール温度 (T_N) と一致することが期待され、また、交換磁気異方性によって生じる交換バイアスのブロッキング温度 (T_{B_EB}) も、両者 (超常磁性ブロッキング温度、ネール温度) と一致するものと仮定されることが多い。本研究では、Pt/Co/Au/Cr₂O₃/Pt 積層膜に対して、 T_{B_SPM} 、 T_{B_EB} 、 T_N の対応について検討した。

【実験方法】 試料作製には、DC マグネトロンスパッタリング装置 (到達真空度 $<1 \times 10^{-6}$ Pa) を用いた。作製した積層膜の構成は、Pt(2 nm)/Co(0.25 nm)/Au(1.0 nm)/Cr₂O₃(30 nm)/Pt(20 nm) とし、本構成の薄膜を α -Al₂O₃(0001) 単結晶基板上に作製した。構造評価には、反射高速電子線回折 (RHEED) 法、X 線回折法を用いた。試料作成方法と各層の構造については、別紙 1) を参考して頂きたい。磁気特性評価には、磁気光学 Kerr 効果 (MOKE) 測定、および、交流帯磁率測定を用いた。

【実験結果】 室温 (~297 K) において、膜面内 (縦 Kerr 効果測定) と膜面垂直 (極 Kerr 効果測定) の磁化曲線において、いずれも保磁力と残留磁化は観測されず、作製した薄膜は室温で超常磁性状態にあると考えられる。また、交流帯磁率の温度依存性において、磁化の同期成分 (in-phase) が 285 K でピークを示すことから、 T_{B_SPM} を 285 K とした。右図に、極 Kerr 効果測定において得られた保磁力 (H_C)、交換バイアス磁場 (H_{EB})、および、Kerr 回転角 (θ_K) の温度依存性を示す。保磁力は 285 K 以上ではゼロであるが、温度の低下により 285 K で保磁力が観測され、278 K で最高値を示した後、再度低下する。278 K における保磁力の低下と同時に、交換バイアス磁場が観測され始める。この結果から、交換バイアスに対するブロッキング温度 T_{B_EB} を 278 K とできる。興味深いことに、285 K における保磁力の上昇とほぼ同じ温度領域において、Kerr 回転角が変化する。本研究で使用した積層構造においては、Cr₂O₃ 層内の光学的な干渉効果によって見かけ上の Kerr 回転角は変化する。図に示した Kerr 回転角の変化は、反強磁性秩序の生成にともなう Cr₂O₃ 層における光学定数の変化を反映したものであると考えられ、この結果を基に、 $T_N = 290 \pm 3$ K とすることができる。講演では、以上の結果と基に、 T_{B_SPM} 、 T_{B_EB} に対する反強磁性秩序の影響について議論する。



$\mu_0 H_C$, $\mu_0 H_{EB}$, θ_K の温度依存性

参考文献

- 1) Y. Shiratsuchi, Y. Tao, K. Toyoki, and R. Nakatani, *Magnetochemistry*, 7, 36 (2021).

光励起超短時間磁化応答の光学干渉層厚依存性

高橋 壽生¹, 田島 大輝¹, 吉川 大貴², 塚本 新²

(¹ 日本大学大学院理工学研究科, ² 日本大学理工学部)

The effects of optical interference layer thickness on photo-excited ultrafast magnetization response

Tokio Takahashi¹, Daiki Tajima¹, Hiroki Yoshikawa², and Arata Tsukamoto²

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

² College of Science and Technology, Nihon Univ.)

はじめに: 磁性薄膜材料の微細・多層構造化と共に高速化の要請が高まるスピントロニクスデバイスでは, 超短時間領域における高速磁化挙動の詳細な理解と制御技術の進展が求められている. 超短パルス光を用いた実時間分解磁化ダイナミクス計測・光制御において, 積層構造を有する素子内での磁化ダイナミクスを含む光物質作用を明らかにするため, 超短時間における光学干渉特性の考慮・設計が重要となる. 本報告では, 異なる光学干渉構造, 同一金属磁性層を有する SiN 光学干渉層/GdFeCo 磁性層からなる薄膜試料群を用いて, 光学干渉構造・励起光強度が及ぼす超短時間減磁及び磁化回復過程への寄与につき検討を行った.

実験方法: 光励起磁化挙動の光学干渉効果による寄与解明を目的として, 同一金属磁性層を有する SiN (t nm) / Gd₂₅Fe_{65.62}Co_{9.38} (20 nm) / SiN (5 nm) / glass sub. ($t = 20, 40, 60, 100$ nm) 試料群を DC/RF マグネトロンスパッタ法を用いて作製 (以下試料 A, B, C, D) した. 超短パルスレーザー (半値全幅 35 fs) を励起・観察光源とした全光型 Pump ($\lambda = 800$ nm) - Probe ($\lambda = 400$ nm) 法により, 励起後約 10 ps に渡る磁気光学効果の時間発展を計測した. 同一の光照射強度であり照射後減磁化量に相当する信号強度変化は飽和磁化信号強度比で最大でも 10% 未満の条件である. さらに試料 A ($t = 20$ nm) において励起光強度依存性として, 照射光強度 4~10 $\mu\text{J}/\text{pulse}$ の範囲にて同様の計測を行った. また, 測定環境として室温下にて外部磁場 $\mu_0 H_{\text{ext}} = 282$ mT を膜面法線から 54° の角度で印加した.

実験結果: Fig. 1 に試料 A, B, C, D における同一光強度励起下での超短時間減磁応答特性を示す. 連続光 ($\lambda = 800$ nm) での光吸収率が SiN 膜厚に対し線形に変化する範囲で設計した試料群に対し, 膜厚の増大とともに励起後の準安定状態における信号は減少するが, 約 2 ps の時間領域では, 光吸収による減磁量が非線形かつ特異的に変化することが明らかとなった¹⁾. また, Fig. 2 に試料 A に対し, 励起光強度を 4~10 $\mu\text{J}/\text{pulse}$ で変化した超短時間減磁及び磁化回復過程を示す. 減磁量は Fig. 1 より大きく約 8~30% であるが, いずれも試料 C に現れる急峻な減磁緩和応答は見られない. 連続光同様の実効的光吸収特性のみならず, 超短パルスレーザー光での光学干渉による, ps スケールの超短時間磁化ダイナミクスへの寄与が示唆された.

謝辞: 本研究の一部は, JST, 未来社会創造事業, JPMJMI20A1 の支援を受けたものである.

参考文献: 1) T. Takahashi, D. Tajima, H. Yoshikawa, A. Tsukamoto, *Technical Meeting on "Magnetics", IEE Japan, MAG-21-008 (2021).*

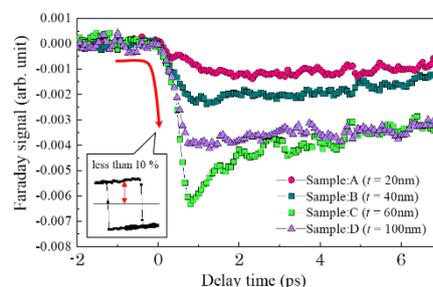


Fig. 1 Ultrafast demagnetization process using ultrashort pulsed laser ($\lambda = 800\text{nm}$) in samples A, B, C and D.

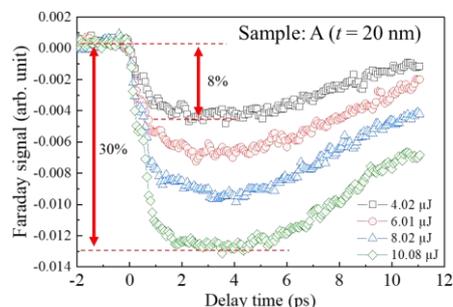


Fig. 2 Laser power dependence of ultrafast demagnetization using ultrashort pulsed laser ($\lambda = 800\text{nm}$) in sample A

強磁性プローブを用いた NiFe-Cu ナノキューブの電気伝導測定

佐久間洋志¹, 竹内亮太¹, 坂倉 響², 竹田真帆人²,

Suko Bagus Trisnanto², 大多哲史³, 竹村泰司²

(¹宇都宮大学, ²横浜国立大学, ³静岡大学)

Electrical conductivity measurements of NiFe-Cu nanocubes with ferromagnetic probes

H. Sakuma¹, R. Takeuchi¹, H. Sakakura², M. Takeda², S. B. Trisnanto², S. Ota³, Y. Takemura²

(¹Utsunomiya Univ., ²Yokohama National Univ., ³Shizuoka Univ.)

はじめに

Cu₇₅Ni₂₀Fe₅の単結晶を特定の条件で時効処理すると、Ni と Fe の含有量が高い、平均サイズが 70 nm のナノキューブが母相と同じ結晶配向を持って析出することが明らかになっている⁽¹⁾。これまでこの NiFe-Cu ナノキューブに対して、直流/交流磁化測定⁽²⁾やレーザー励起光電子顕微鏡による観察⁽³⁾が行われてきた。本研究では、金属プローブを試料表面に接触させることにより、表面付近の局所的な電気的特性を測定することを目的とする。

測定方法

試料は、NiFe-Cu ナノキューブを含む Cu₇₅Ni₂₀Fe₅単結晶を一辺約 2 mm の立方体に切り出したものである。立方体の各面は{100}に平行である。プローブとして、非磁性の Pt-Ir、強磁性の Fe、Co、Ni 線を用いた。ピエゾ素子を備えた XY ステージ上に試料を設置し、Z ステージにプローブを設置することにより、試料とプローブの相対位置を制御した⁽⁴⁾。試料とプローブ間には電圧源を設置し、電流をモニターした。磁場の印加には永久磁石式磁場源⁽⁵⁾を用いた。

測定結果

Fig. 1 に Co プローブを用いて約 4.4×2.4 μm²の領域を走査した結果を示す。各点において、プローブと試料が離れた状態からスタートし、徐々にプローブを近づけていった。ある距離でコンダクタンスが最大となるが、その時の高さ (Z) 方向のピエゾ印加電圧を図示したもので、つまり形状像が上段である。下段はコンダクタンスの最大値を図示したものである。測定前に -50 mT 以上の磁束密度を印加し、3~51 mT の間で磁束密度を強くしながら測定を行った。磁場の変化による強磁性プローブの移動が懸念されたが、位置の大きなずれはないようである。一方、右上に見える山が徐々に低くなっており、プローブを押し当てたことにより形状が変化した可能性がある。コンダクタンスは磁場による変化があるようにも見えるが、接触状態による変化の可能性もあり、より詳細な実験・解析が必要である。

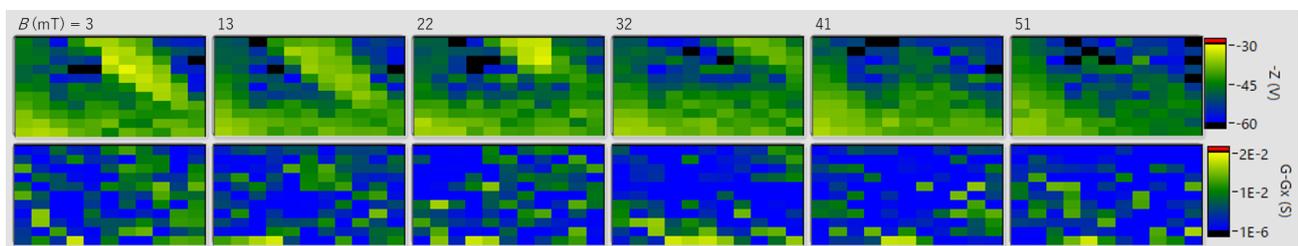


Fig. 1. Topographic images (upper panels) and conductance maps (lower panels) acquired with Co probe.

参考文献

- (1) J.-S. Kim *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **55**, 123002 (2016). (2) 例えば, S. Kobayashi *et al.*, *Molecules* **25**, 3282 (2020). (3) J.-S. Kim *et al.*, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **49**, 335006 (2016). (4) 佐久間洋志ほか, 電気学会論文誌 A **137**, 380 (2017). (5) H. Sakuma, *J. Magn. Soc. Jpn.* **44**, 21 (2020).

STM/UPS による有機分子磁性金属へテロ構造の研究

山田 豊和

(千葉大学 大学院工学研究院 物質科学コース)

STM and UPS study of Organic Molecule – Magnetic Metal Hetero Structures

Toyo Kazu Yamada

(Chiba University, Graduate School of Engineering, Department of Materials Science)

有機分子と磁性金属の強固な π -d 電子結合：有機分子スピントロニクスを目指して

無機材料によるスピントロニクス替わる、新たな材料として有機分子がある。有機分子は、窒素、炭素、水素など、軽元素からなる。グラフェンのような炭素材料に比べると耐久性には課題があるが、特異な対称性を有する低次元格子膜を人工的に創出できる利点がある。

有機分子は、一般に、350 – 500 K 程度で真空昇華する。多くの単分子の厚さは約 0.2-1.0 nm であり、単分子レベルで昇華制御できるため、エピタキシャル成長で製膜が可能である。分子サイズが大きく昇華する前に熱で壊れてしまう分子は、分子溶液を直接真空スプレーする方法もあるが^{2,3)}、本研究では真空昇華による製膜法を用いた。有機分子の中で比較的耐久性が高い分子として、フタロシアニン(Pc)分子やポルフィリン(TPP)分子がある。これらは、600-700 K まで分子構造が壊れず保持することが分かっている。

我々は、過去 10 年にわたり、Pc / TPP 分子の単分子レベルでの真空昇華技術の確立と¹⁾、3d 磁性金属と分子との電子結合に関して、走査トンネル顕微鏡(STM)および紫外光電子分光(UPS)を用いて研究してきた。右図に、試料作製と STM/UPS 計測の概要を示す。全ての実験は超高真空中で行った。

単一 Pc 分子による磁気伝導計測(4 K)^{4,5)}、強固な p-d 電子結合による Fe(001)上 Pc 分子の室温での熱拡散防止^{6,7)}、そして、Pc / TPP や環状分子の二次元規則配列への磁性原子吸着構造の解明である⁸⁻¹⁰⁾。

これまでの経緯と、有機分子を使った、表面合成ポリマーによる新たな磁気格子創製、に関して報告する。

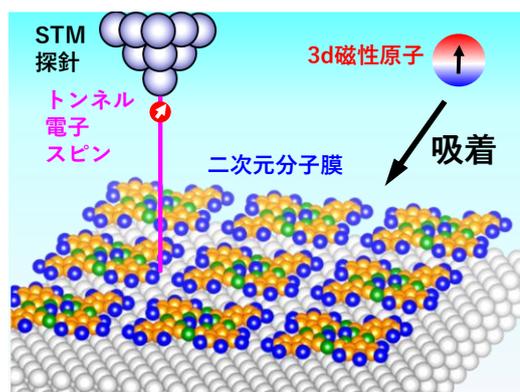


Fig.1 STM による二次元有機分子配列への磁性原子吸着構造の研究。

参考文献

- 1) Analytical Chemistry 90, pp. 8954-8959 (2018).
- 2) Nanotechnology 29, 315705 (2018).
- 3) 表面と真空 64 (No.1) pp.40-46 (2021).
- 4) Nature Nanotechnology, 6, (2011) 185-189.
- 5) Nano Letters, 12, (2012) 5131-5136.
- 6) Scientific Reports 8, 353 (2018).
- 7) Phys. Rev. B 94, 195437 (2016).
- 8) The Journal of Physical Chemistry C 124, 3621-3631 (2020).
- 9) The Journal of Physical Chemistry C 123, 18939-18950 (2019).
- 10) 表面と真空 63 (No.9) pp.465-469 (2020).

(Fe-Pt, Co-Pt)-フッ化物系ナノグラニューラー膜のファラデー効果

小林伸聖, 岩佐忠義, 池田賢司, 荒井賢一
(公益財団法人 電磁材料研究所)

Faraday effect of (Fe-Pt, Co-Pt)-fluoride nanogranular films

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

(Research Institute for Electromagnetic Materials, DENJIKEN)

はじめに

ファラデー効果を有する材料は、光アイソレーター等の光通信デバイスに用いられており、高度情報化社会に欠かせないものである。我々は、ナノグラニューラー膜のファラデー効果を検討した結果、光通信の波長帯において Bi-YIG の約 40 倍もの大きなファラデー効果を示すことを明らかにした⁽¹⁾。これらは、スパッタ法で作製される膜厚がサブミクロンから数ミクロン程度の薄膜材料であり、これを用いることによって、光通信デバイスの微細化・集積化が可能となる。一方、磁気光学材料が磁気光学効果を発現させるためには磁界を印可することが必要であり、デバイスに磁界印加機能を組み込むことは、デバイスの小型化・簡素化を困難にする要因となるであろう。ここでは、ナノグラニューラーが、高保磁力を有する FePt, CoPt または FeCoPt 合金から成るナノグラニューラー膜のファラデー効果について報告する。保磁力を持つナノグラニューラーを採用することにより、材料自身の残留磁化によって、磁場を印可しなくてもファラデー効果を発現することができる。

実験方法

薄膜試料は、RF スパッタ装置を用いタンデム法⁽²⁾によって作製した。2つのターゲットホルダーの一方に、Fe, Co もしくは FeCo 合金ターゲット(76 mm φ)上に Pt チップ(5×5mm)を配置した複合ターゲット、他方に MgF₂, CaF₂ もしくは BaF₂(76 mm φ)粉末焼結ターゲットを配置し、Ar ガス雰囲気中にて同時にスパッタした。基板には、50×50×0.5 mm の石英ガラスを用いた。成膜中の基板温度は 300 °C に設定し、成膜後には真空中にて 400~800°C の所定の温度で 1 時間保持した。膜組成は、波長分散型分光分析法(WDS)を用いて分析し、磁化曲線は、振動試料磁力計(VSM)を用いて測定した。光透過率の測定は分光光度計を用いた。ファラデー回転角は、ネオアーク社製 BH-501F-SV1-DJK を用いて 500~1700nm の波長範囲で測定した。膜の構造解析には、X 線回折法を用いた。

結果

Fig.1 には、(Co_{0.7}Pt_{0.3})₁₅Ca₂₅F₆₀ 膜の波長 1550nm でのファラデーロープを示す。ファラデーロープは保磁力と残留磁化に伴うヒステリシスを有し、零磁界で約 0.25deg./μm のファラデー回転角を示す。XRD の結果から、この膜のナノグラニューラーは Co₃Pt 規則相から成ることが分かった。

謝辞

本研究の一部は、JSPS 科研費 JP20H02468、JP20K03843、JP19K21959、JST-CREST JPMJCR19T1 の助成、および東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センターの援助を受けて行われました。

参考文献

- 1) N. Kobayashi, K. Ikeda, Bo Gu, S. Takahashi, H. Masumoto, and S. Maekawa, Scientific Reports, 8, 4978 (2018)
- 2) N. Kobayashi, S. Ohnuma, T. Masumoto, and H. Fujimori, J. Magn. Soc. Jpn. 23, 76-78 (1999).

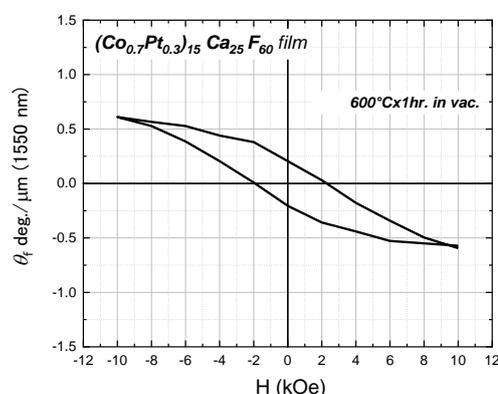


Fig.1 Faraday loop of (Co_{0.7}Pt_{0.3})₁₅Ca₂₅F₆₀ film at 1550nm.

ナノ粒子を扁平化したナノグラニューラ膜の粒子形状が及ぼす強磁性・超常磁性への影響

青木英恵¹、打越雄央¹、大沼繁弘^{1,2}、小林伸聖²、増本博¹

(1 東北大学、2 電磁材料研究所)

Shape effect of granule of lateral nanogranular films on ferromagnetic and superparamagnetic properties

Hanae Aoki¹, Katsuhiko Uchikoshi¹, Shigehiro Ohnuma^{1,2}, Nobukiyo Kobayashi², Hiroshi Masumoto¹

(1.Tohoku University, 2.DENJIKEN)

はじめに

デバイスの小型化・高周波化・省電力化への要求から、磁気-誘電-光などの複数の機能性をあわせ持つ薄膜材料への期待が高まっている。球形の磁性ナノ粒子が誘電体中に均一分散するナノグラニューラ膜は、トンネル磁気誘電(TMD)効果、トンネル磁気抵抗(TMR)効果および高周波軟磁気特性などの様々な電磁気効果が得られることが知られる。著者らは、ナノ粒子を球形状ではなく、膜面内に横扁平化することによって、Co-BaF₂膜の面内磁気異方性が増加し、さらに TMR, TMD の両特性で、弱磁場における応答性が向上することを見出した¹⁾。このことから、粒子を扁平化した膜の TMD・TMR 特性は、従来の超常磁性だけでなく強磁性に由来することが考えられる。本研究では、TMR・TMD が得られる 30-40at.% Co 組成域の Co-BaF₂ ナノグラニューラ膜を対象に、扁平 Co 粒子の粒子サイズを一定とし粒子間のみ変化させた膜、ならび比較として球形粒子がランダム分散した膜の低温磁化測定を行い、粒子形状が強磁性(磁気異方性)と超常磁性におよぼす影響を明らかにすることを目的とした。

実験方法

扁平 Co-BaF₂ ナノグラニューラ膜の作製には、Co と BaF₂ を交互に成膜するタンデムスパッタ法を用いた¹⁾。ターゲットにはそれぞれ 2 および 3 inchφ の Co と BaF₂ を使用し、基板回転速度を一定とし、Co 側の投入電力を 100W で固定し BaF₂ 側の投入電力を 100-200W の範囲で変化させ、Co 粒子間の BaF₂ 厚みを変化させた。作製した膜の微細組織は TEM、膜面内の電気比抵抗(ρ)は 4 端子法、静磁気特性は SQUID を用いてそれぞれ評価した。

実験結果

BaF₂ 側の投入電力が 150W で作製した Co-BaF₂ 膜は、32at.%Co 組成であり、扁平形の Co 粒子(幅 4.2, 厚み 2.7 nm)が BaF₂ 層(2.5nm)と交互に積層した構造である。粒子形状が膜の超常磁性および強磁性に与える影響を調べるために球形粒子の Co-BaF₂ 膜²⁾とともに低温磁化測定を行った。Fig. 1 に 15K-300K における球形粒子(a)および扁平粒子(b)のナノグラニューラ膜の面内方向に測定した磁化曲線を示す。横軸は温度 T で規格化した。Fig.1(a)球形粒子では、50-300K でほぼ同じ超常磁性の挙動を示し、ランジュバン関数に良い一致を示した。一方、Fig.1(b)扁平粒子では、300K で飽和磁化が大きく、70K で保磁力が増大しており、強磁性を示した。

参考文献

- 1) 打越雄央、青木英恵、小林伸聖、大沼繁弘、増本博、日本金属学会春季講演大会、G28、2021年3月19日
- 2) H. Kijima-Aoki, Y. Cao, N. Kobayashi, S. Takahashi, S. Ohnuma, H. Masumoto., *J. Appl. Phys.* 128(13), 133904(2020)

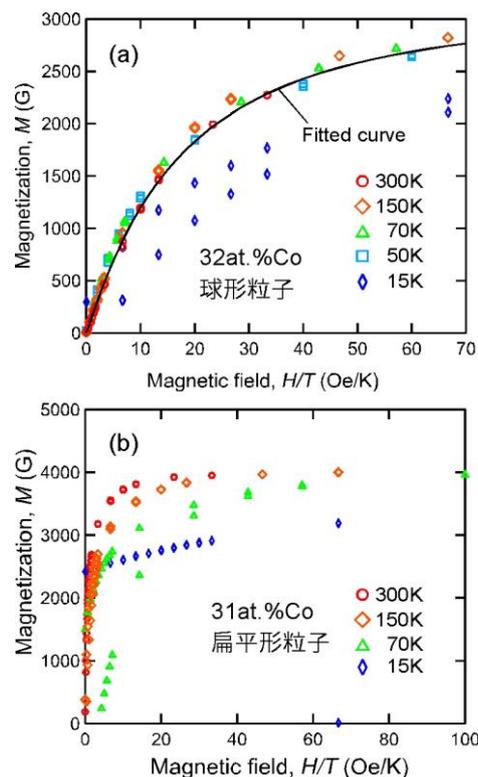


Fig.1 15K-300K における球形粒子(a) および扁平粒子(b)のナノグラニューラ膜の磁化曲線。横軸は温度 T で規格化した。

グラニューラー薄膜を用いたひずみセンサの開発 2

上野駿平, 天満光佑, 上部智也, 藤原裕司, 大島大輝*, 加藤剛志*, 神保睦子**
(三重大, *名古屋大, **大同大)

Development of strain sensor with granular film 2

S.Ueno, K.Temma, T.Uwabe, Y.Fujiwara, *D.Oshima, *T.Kato, **M.Jimbo
(Mie Univ., *Nagoya Univ., **Daido Univ.)

はじめに

近年 IoT 社会の実現に向け、多くの分野で微小ひずみの検出が求められている。また、多数の自動車、航空宇宙用途およびさらなる産業分野における機械量の測定のために小型センサが求められており、様々な原理のひずみセンサが研究されている¹⁾²⁾。本研究では、印加磁界によって抵抗が変化するグラニューラー薄膜を FeSiBNb アモルファス薄膜(a-FeSiBNb)ヨークのギャップ中に埋め込んだ構造のひずみセンサの試作を行い検出可能なひずみを見積もった。

実験方法

成膜は DC 電源・RF 電源を持つマグネトロンスパッタリング装置を使用した。a-FeSiBNb 薄膜は 0.5Pa, Co-AlO 薄膜は 1Pa で成膜した。膜厚はともに 300nm である。基板はマイクロカバーガラスを使用した。ひずみセンサ素子はリフトオフにより a-FeSiBNb 電極を作製し、ギャップ部に Co-AlO を成膜することで作製した。素子の設計値は、ギャップ長は 3 μm , 幅は 600 μm である。磁気抵抗(MR)測定は直流二端子法で行った。磁気特性は VSM, トルク磁力計で評価した。

実験結果

本研究のひずみセンサ素子の概略図を Fig.1 に示す。a-FeSiBNb ヨークの磁気モーメント M を飽和させるために、外部磁界 H_{DC} を特定の方向に印加する。今回は比較のために、ギャップに対して垂直な方向と(H \perp gap)と平行な方向(H//gap)の2方向に磁界を印加した。H//gap 方向にひずみにより a-FeSiBNb ヨークの磁気モーメント M の方向を制御し、Co-AlO グラニューラー薄膜の抵抗を変化させる。これにより、Co-AlO グラニューラー薄膜の抵抗変化としてひずみを検出する。

Fig.2 は作製した素子に印加した引張ひずみ ε に対する出力電圧変化であり、磁界の印加方向は(a)H \perp gap, (b)H//gap である。また、青のプロットはひずみ増加時の測定結果、赤のプロットはひずみ減少時の測定結果である。(a)ではひずみの増加に伴い出力電圧が増加し、ひずみが 6×10^{-5} を超えると飽和する傾向を見せている。(b)では初期の磁気モーメントの向きとひずみの方向が同じであるために、原理的には抵抗変化がないはずであるが、若干の出力電圧が上昇している。今回試作した素子では、 6×10^{-5} 程度以下のひずみを検出できることが示された。今後は、電圧変化率の増加が課題である。

謝辞

本研究は、名古屋大学未来材料・システム研究所における共同研究として実施された。

参考文献

- 1) M.Lohndorf et al.: J. Magn. Magn. Mater. **316**, e223 (2007)
- 2) Y.Hashimoto et al.: J. Appl. Phys. **123**, 113903 (2018)

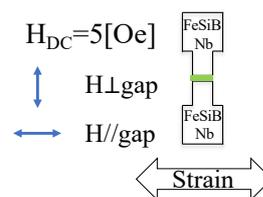
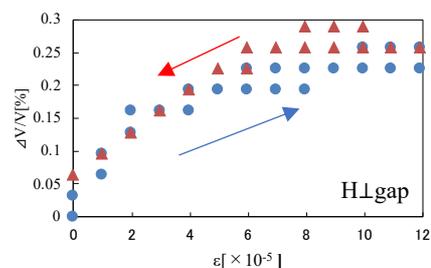
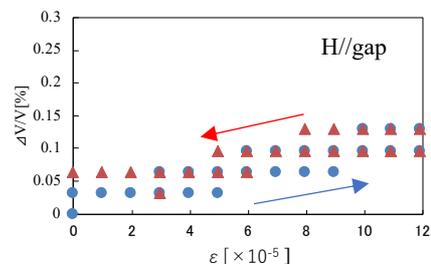


Fig.1 Schematic of strain sensor



(a)



(b)

Fig.2 Output voltage change on strain.

(a)Simulation and (b)Experimental results

凍結した磁性流体のメスバウアー効果と磁気緩和

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

Mössbauer study and magnetic relaxation of frozen magnetic fluid

E. Kita^{1,2,3)}, R. Onodera³⁾, M. Kishimoto²⁾ and H. Yanagihara²⁾

(University of Tsukuba TAC^{1,2)}, University of Tsukuba FPAS²⁾ NIT Ibaraki college³⁾)

はじめに

酸化鉄ナノ粒子については、強磁性領域だけではなく超常磁性領域のナノ粒子も医療用 NMR 造影などに利用されている。ナノ粒子における磁気緩和は、ハイパーサーミアの発熱源としての発熱特性や磁性流体の凝集などに大きな影響を与える。磁気緩和を議論する際には異なる観測時間による計測データが有効である。そこで準静的な磁気測定と 10^{-6} 秒程度の観測時間を有すると考えられるメスバウアー効果を測定手段とし、MRI 造影剤として市販されている酸化鉄ナノ粒子磁性流体などの磁気緩和を明らかにする。

実験

試料には市販の超常磁性ナノ粒子 MRI 造影剤、Resovist¹⁾ と Co 添加球形マグネタイトナノ粒子の分散体を用いた。測定試料として 2~3mm 厚のアルミ板にあけた直径 10mm の穴に、液体試料を 0.5mm 厚の PET 板を接着剤 (3M) により封着した。気泡を逃がすため、小さな空間を作った。試料は冷凍機において冷凍固化させた。また比較のため乾燥試料も測定した。メスバウアー効果の試料冷却には無振動型冷凍機を用い、到達温度は 2.5K であった。メスバウアースペクトルのフィッティングには、市販ソフト MossWinn4.0 を用いた。

結果

図 1 に 2.5K から 250K で測定した、メスバウアー分光の結果を示す。2.5K のスペクトルは Maghemite の A,B サイトとしてフィッティングでき、そのパラメータを Table.1 に示す。100K 以上ではベースラインが明確ではなく、磁気緩和の特徴が見え始めて高温になるほど顕著となる。

結果的には乾燥状態と凍結試料でのメスバウアースペクトルには大きな差は見られなかった。100K 以上では、磁気緩和の影響を考慮しても、単純に一種類のサイトではフィットできず、緩和状態の異なる 2 成分の存在を示唆する。200K で Jump Rate から見積もった緩和時間は、 5.7×10^{-9} [s]、 1.2×10^{-7} [s] と得られた。さらにこの分布の影響が他の計測結果にも現れているか検討する。

Table I. Mossbauer parameters from fitting of the spectrum recorded at 2.5K.

Site	Hhf (kOe)	IS* (mm/s)	Area ratio (%)
A	509.7	0.535	44.8
B	530.0	0.492	55.2

*IS : with respect to α -Fe at RT

参考文献

- 1) Resovist、富士フイルム RI ファーマ

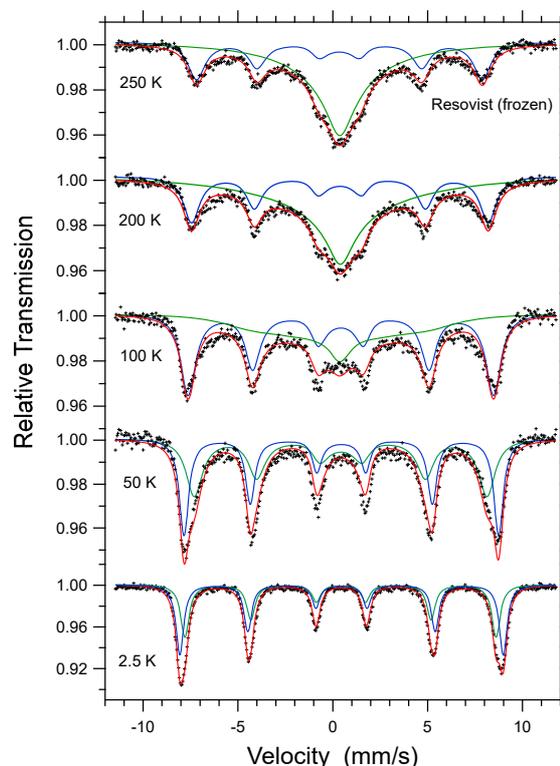


Fig. 1 Mössbauer spectra of Fe oxide nano-particles in a frozen magnetic fluid of Resovist®. Sample temperatures were changed from 2.5 K to 250 K.

一次反転曲線法による立方体型 Fe_3O_4 サブミクロン粒子の磁気渦解析

野村英志, 小林悟, 野田千晶, J. Manjanna*

(岩手大理工, *Rani Channamma Univ.)

Analysis of magnetic vortex formation of cubic Fe_3O_4 submicron particles by FORCs method

E. Nomura, S. Kobayashi, C. Noda, J. Manjanna*

(Iwate Univ., *Rani Channamma Univ.)

1 はじめに

近年、スピン渦 (SV) 状態を示すサブミクロン強磁性体粒子が、磁気ハイパーサーミアや磁気機械効果などの医療応用特性の向上に期待されている。医療応用特性の向上には SV 形成過程を理解することが重要であるが、SV の形成過程は形態・サイズ・次元に大きく依存する。特に立方体型粒子は単純な形状かつ作製も容易なため医療応用分野で注目されているが、サブミクロンサイズ粒子における SV 状態の磁気特性について十分理解されていない。そこで本研究では立方体型 Fe_3O_4 サブミクロン粒子について一次反転曲線 (FORC) 測定を行い、SV の安定性と温度依存性を、以前報告した球状中空粒子の結果²⁾と比較して報告する。

2 実験方法

立方体形状を有した Fe_3O_4 微粒子 (一辺 265 ± 34 nm) について、SQUID 磁化測定装置を用いて FORC 測定を実施した。印加磁場範囲 $H = \pm 3$ kOe、 H と反転磁場 H_r のステップ幅 100 Oe、測定温度 $T = 10 \sim 300$ K の条件で測定を行い、FORC 分布 ρ を求めた²⁾。

3 結果および考察

Fig.1 に FORC 分布の温度依存性を示す。(a) に示す $T = 10$ K では FORC 分布の強いダブルピークが現れた。 $T = 30$ K では、ダブルピークは接近し、新たなピークが発生した (Fig.1(b) 矢印)。 $T = 70$ K 以上でダブルピークは消滅し、シングルピークとして観測された。シングルピークは、 $T = 30$ K から見られた新しいピークが昇温につれてシャープに成長したものである。 $T = 70$ K まで観測されたダブルピークは、磁化状態が flower 状態から SV 状態への不可逆的な発生消滅過程に起因すると考えられる。発生消滅を示すピークの反転磁場をそれぞれ H_n 、 H_a とする。

中空粒子では、立方体粒子において $T = 30$ K 以上で見られた単一のピークは観測されず、 $T = 300$ K までの広い温度領域で明瞭なダブルピークが観測された。さらに、中空粒子における H_n 、 H_a は立方体粒子よりも高い値を得た。以上より、立方体粒子の SV は中空構造より形成しにくく、また立方体粒子で新たに観測されたシングルピークは、渦のコアの反転が不可逆的な磁化過程に大きな変化を与えると推定される。

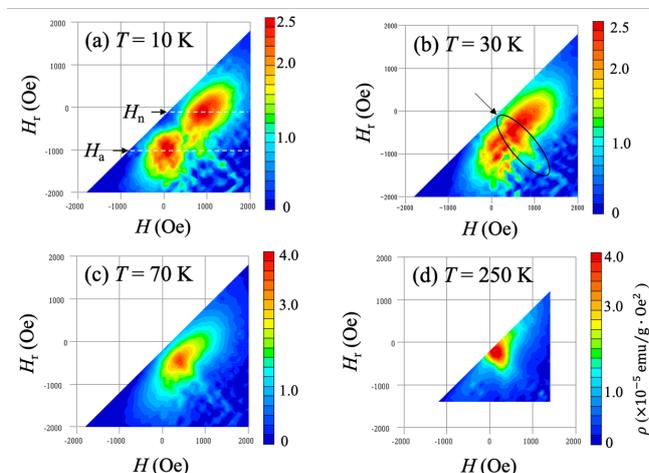


Fig. 1 Temperature dependence of the FORC diagram. (a) $T = 10$ K. H_n and H_a denote the nucleation and annihilation field of the SV state, respectively. (b) $T = 30$ K. (c) $T = 70$ K and (d) $T = 250$ K.

References

- 1) N. A. Usov et al., *Scientific Reports*, **8**, 1224 (2018)
- 2) M. Chiba et al., *AIP. Adv.*, **9**, 035235 (2019)

C11_b Cr₂Al 薄膜の結晶構造評価および Néel 温度の決定

豊木研太郎, 濱口峻祐, 白土優, 中谷亮一
(大阪大学大学院工学研究科)

The evaluation of crystal structure and Néel temperature of C11_b Cr₂Al thin films

Kentaro Toyoki, Shunsuke Hamaguchi, Yu Shiratsuchi, Ryoichi Nakatani

(Graduate school of engineering, Osaka University)

【研究背景】 トンネル磁気抵抗効果, 巨大磁気抵抗効果といった磁気抵抗(MR)効果はスピントロニクスデバイスの基幹をなす. 近年では, 双方ともに単結晶膜において高い MR 比が実現されることが報告されている. これに対して, 交換バイアスを通じて上下強磁性層間の反転磁場の差を生じしむための反強磁性層に関しては, 単結晶からなる膜構成を考慮すると, 未だ検討の余地があると言える. すなわち, 従来から主として用いられてきた Ir-Mn(111)系を代替し, 高 MR 比の Co-Fe(-B)/MgO(001)/Co-Fe(-B)系¹⁾や Co₂MnSi/Ag/Co₂MnSi(001)系²⁾に対して格子整合の良い反強磁性体に関して検討する必要がある. そこで我々は単結晶 MR 積層膜に適合した反強磁性体として C11_b Cr₂Al に関して検討している. C11_b Cr₂Al は 600~700 K の高い Néel 温度や, MgO に対して 0.7%程度の低いミスフィットとなる格子定数などが報告されている³⁾. 我々は, これまでに C11_b Cr₂Al 膜における組成および製膜温度に対する相構成やエピタキシャル方位関係などに関して報告した. 本研究では, C11_b Cr₂Al 膜における Néel 温度および規則度の組成依存性に関して検討した.

【実験方法】 試料作製には分子線エピタキシー法を用いた. 基板は MgO(001)とした. Cr-Al 薄膜の設計膜厚および成長温度はそれぞれ 50 nm, 1073 K とした. 薄膜の Cr-Al 組成は製膜レート比によって変化させ, 製膜後波長分散型蛍光 X 線分析を用いて組成を同定した. 作製した試料の Al 組成は, 0~44at.%の範囲であった. 結晶構造評価には X 線回折を用いた. Néel 温度は電気抵抗率の温度依存性によって決定した.

【実験結果】 Figure 1(a)に Al 組成を 44at.%とした試料の電気抵抗率の温度微分 $d\rho/dT$ の温度依存性を示す. 480 K 以下と 710 K 以上の領域では, $d\rho/dT$ はほぼ一定であった. その間のおおよそ 653 K で $d\rho/dT$ は極小値をとった. この極小値は Cr-Al の反強磁性秩序によって生じた擬ギャップが, Néel 温度を超えた際に消失し, キャリア密度が変化したこと起因すると考えられる. すなわち, この $d\rho/dT$ が極小となる温度が Néel 温度に対応する.

Al 組成に対する Néel 温度の変化を Fig. 1(b)に示す. 図中の黒丸および白丸はそれぞれ本研究で得られた C11_b Cr-Al 薄膜の Néel 温度およびバルクにおける報告値³⁾に対応する. C11_b 相の単相領域 (Al 組成 28.6~34.5at.%) では Cr 組成の増加に伴い, Néel 温度増加する傾向および, その範囲外では Néel が概ね一定となる傾向に関して, 報告値と本研究とでは一致した結果が得られたと言える. また, Néel 温度の絶対値に関してもバルクの報告値と概ね合致した結果が得られた. 規則度に関しては特に Cr リッチ側組成では大きく低下する傾向が得られた. これらのことから, C11_b Cr-Al の規則度は Néel 温度に対して比較的影響を与えないと推測される.

参考文献

- 1) K. Yakushiji *et al.*, Appl. Phys. Lett., **115**, 202403 (2019).
- 2) Y. Sakuraba *et al.*, Phys. Rev. B, **82**, 094444 (2010).
- 3) W. Köster and K. Grube, Z. Metallkund., **54**, 393 (1963).

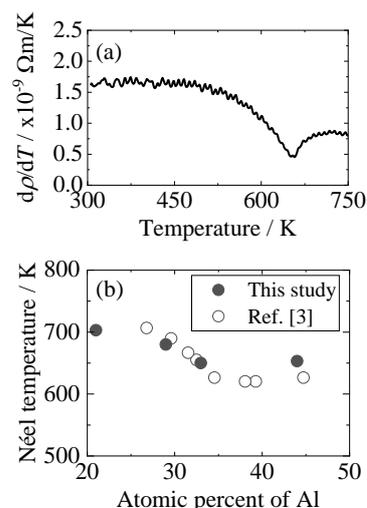


Fig. 1. (a) Cr-Al 薄膜(44at.%-Al)の抵抗率における温度微分 $d\rho/dT$ の温度変化. (b) Al 組成に対する C11_b Cr-Al の Néel 温度の変化.

MgO および SrTiO₃(001)単結晶基板上における Fe-N 薄膜のエピタキシャル成長

今村光佑¹・前田悠良¹・大竹充¹・二本正昭¹・川井哲郎¹・桐野文良²・稲葉信幸³
(¹横浜国大, ²東京藝大, ³山形大)

Epitaxial Growth of Fe-N Thin Films on MgO and SrTiO₃ Single-Crystal Substrates of (001) Orientation
Kosuke Imamura¹, Yura Maeda¹, Mitsuru Ohtake¹, Masaaki Futamoto¹, Tetsuroh Kawai¹, Fumiyoshi Kirino², Nobuyuki Inaba³
(¹Yokohama Nat. Univ., ²Tokyo Univ. Arts, ³Yamagata Univ.)

はじめに γ' -Fe₄N はスピン偏極率が大きいことから、スピントロニクス分野での応用が検討されている。これまで、スパッタリングや MBE 法を用いて、形成条件を変えて磁気特性などが調べられている¹⁻³。本研究では、反応性スパッタリング法により(001)基板上に Fe-N 薄膜を形成し、基板材料、基板温度、N₂分圧が構造と磁気特性に及ぼす影響を系統的に調べた。

実験方法 超高真空 RF マグネトロンスパッタリング法を用いて、Ar と N₂ の混合ガス雰囲気下（全圧 7×10^{-1} Pa）で、Fe と N を反応させることにより MgO および SrTiO₃(001)基板上に 40 nm 厚の Fe-N 膜を形成した。このとき、N₂分圧比を 0~5%、基板温度を RT~600 °C の間で変化させた。評価には、結晶構造の解析に RHEED および XRD、表面形態の観察に AFM、磁気特性の測定に VSM を用いた。

実験結果 MgO 基板上に形成した膜に対して観察した RHEED パターンを Fig. 1 に示す。N₂分圧比 0%で基板温度 RT~600 °C では、 α -Fe(001)[110]||MgO(001)[100]の結晶方位関係で α -Fe 膜が、N₂分圧比 2.5~5%で基板温度 200~600 °C では、 γ' -Fe₄N(001)[100]||MgO(001)[100]の結晶方位関係で γ' -Fe₄N 膜がエピタキシャル成長したことが分かる。N₂分圧比 2.5~5%で基板温度 RT では、多結晶のリングパターンが現れている。 γ' -Fe₄N 単結晶薄膜に対して測定した XRD パターンの例を Fig. 2 に示す。RHEED 解析結果と同様に γ' 相からの回折を確認することができる。また、Fig. 3 に γ' -Fe₄N および α -Fe から構成される膜の磁化曲線を示す。いずれの膜も[100]方向が磁化容易となっていることが分かる。当日は、SrTiO₃基板上に形成した Fe-N 膜の結果も報告する。

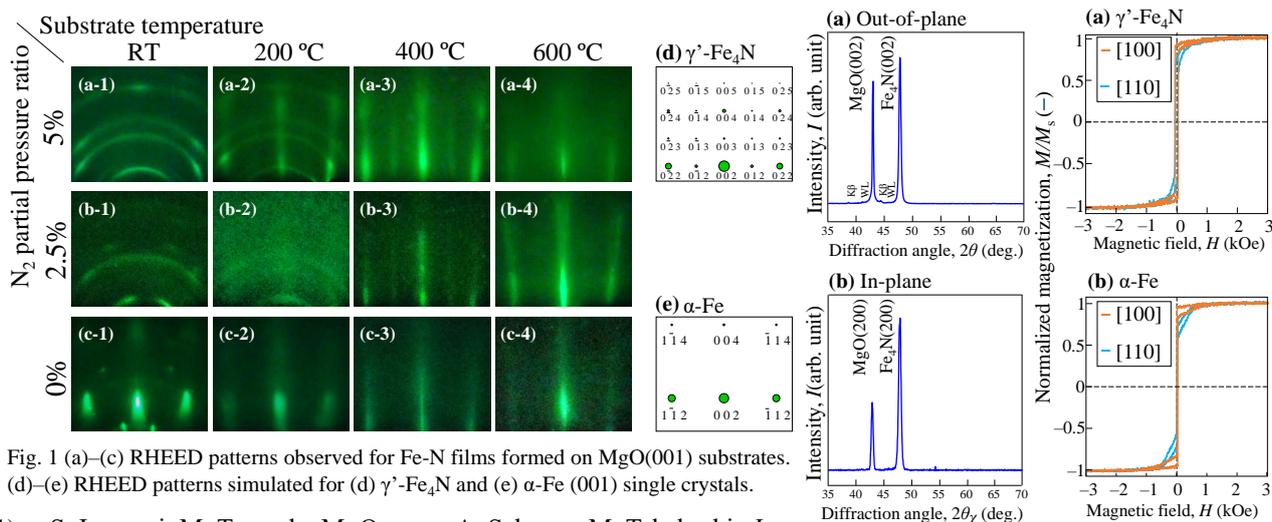


Fig. 1 (a)–(c) RHEED patterns observed for Fe-N films formed on MgO(001) substrates. (d)–(e) RHEED patterns simulated for (d) γ' -Fe₄N and (e) α -Fe (001) single crystals.

- 1) S. Isogami, M. Tsunoda, M. Oogane, A. Sakuma, M. Takahashi, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **38**, 162, (2014).
- 2) K. Ito, S. Higashikozono, F. Takata, T. Gushi, K. Toko, T. Suemasu, *J. Cryst. Growth*, **455**, 66, (2016).
- 3) D. Gölden, E. Hildebrandt, L. Alff, *J. Magn. Magn. Mater.*, **422**, 407, (2017).

Fig. 2 (a) Out-of-plane and (b) in-plane XRD patterns of Fe₄N film formed on MgO(001) substrate at 400 °C. N₂ partial pressure ratio is 5% (Fig.1 (a-3)).

Fig. 3 Magnetization curves measured for films consisting of (a) γ' -Fe₄N (Fig.1 (a-3)) and (b) α -Fe (Fig.1 (c-3)) single crystals.

電解めっき法により作製した Co-Ni 合金膜の構造と磁気特性

明田俊祐¹・中村優太¹・近藤輝¹・大竹充¹・川井哲郎¹・二本正昭¹・桐野文良²・稲葉信幸³
(¹横浜国大, ²東京藝大, ³山形大)

Structural and Magnetic Properties of Co-Ni Alloy Films Prepared by Electroplating

Shunsuke Aketa¹, Yuta Nakamura¹, Hikaru Kondo¹, Mitsuru Ohtake¹,
Tetsuroh Kawai¹, Masaaki Futamoto¹, Fumiyoshi Kirino², Nobuyuki Inaba³
(¹Yokohama Nat. Univ., ²Tokyo Univ. Arts, ³Yamagata Univ.)

はじめに 軟磁性薄膜は、磁気センサや電磁シールドなどの幅広い分野で活用されており、用途によりマイクロメートル・オーダーの膜厚が要求される。厚膜形成には、めっき法が有効である^{1,2)}。しかしながら、代表的な磁性元素である Fe は耐薬品性が低く、めっき浴中に含まれる酸や塩基と反応しやすい。そのため、めっき法により Fe 基合金の膜を形成することは容易ではない。一方、同じく磁性元素の Co や Ni は比較的安定性が高く、Co-Ni 合金膜の結晶構造を fcc に制御することができれば、軟磁性特性を得ることができる。本研究では、電解めっき法により Co-Ni 合金膜の形成を試み、構造と磁気特性を調べた。

実験方法 膜形成には揺動機構を備えた電気めっき装置を使用した。陽極には純度 99.98% の Ni 板を使用し、陰極には銅基板を使用した。また、浴温度を 50 °C、pH を 2.2、陰極電流密度を 0.95 A/cm² とした。浴構成試薬には、Co, Ni イオンの供給源としてそれぞれ硫酸コバルト (CoSO₄・7H₂O)、硫酸ニッケル (NiSO₄・6H₂O)、pH 緩衝剤としてクエン酸 (C₆H₈O₇・H₂O)、陽極溶解促進剤として塩化ナトリウム (NaCl)、応力緩和剤としてサッカリンナトリウム (C₇H₄NNaO₃S・2H₂O) を用いた。Co と Ni イオンの合計の濃度を 0.20 mol/L とし、これらのイオンの比率を変えることにより膜組成を変化させた。構造評価には XRD を、磁気特性評価には VSM を使用した。

実験結果 Fig. 1 にめっき浴の Co と Ni イオンの濃度比 x を変化させた際の膜の XRD パターンを示す。Co リッチ組成の膜では、hcp(1100), (0002), (1011) 反射が現れていることから、hcp 相が形成されており、Ni リッチ組成では、fcc(111), (200) 反射を確認することができることから、fcc 相が得られていることがわかる。Fig. 2 に x と M_s , H_c の関係を示す。 $x=0$ では、 $M_s=1400$ emu/cm³ となり、バルクの Co の値と近い値になった。また $x=0.5$ 付近までは M_s が緩やかに減少し、 $x=0.5$ を超えると大きく減少している。このことは、浴組成と膜組成が異なっていることを示唆している。 H_c は Ni イオンの割合との相関的な関係は顕著には現れなかった。

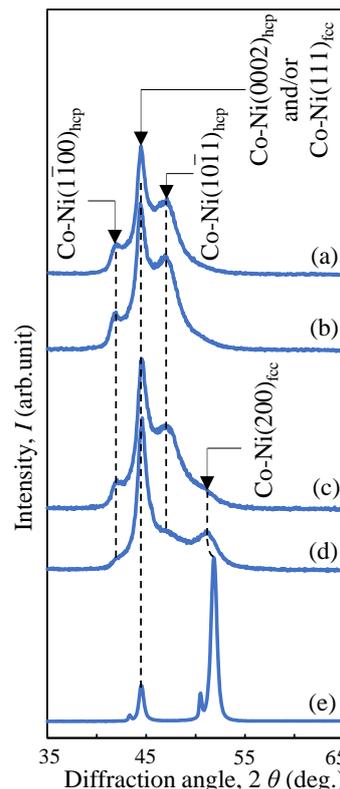


Fig. 1 XRD patterns of Co-Ni thick films grown in Plating bath; (a) $x=0$ (b) $x=0.3$, (c) $x=0.5$, (d) $x=0.7$, (e) $x=1.0$

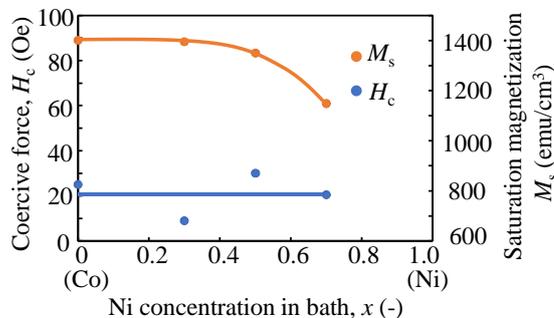


Fig. 2 Coercive force, H_c and Saturation magnetization, M_s vs Ni concentration in bath, x

- 1) T. Yanai, K. Koda, J. Kaji, H. Aramaki, K. Eguchi, K. Takashima, and H. Fukunaga: *AIP Adv.*, **8**, 056127 (2018).
- 2) A. Nakamura, M. Takai, K. Hayashi, and T. Osaka: *J. Surf. Finish. Soc. Jpn.*, **47**, 934 (1996).

Fe-Ga-C 薄膜における 構造と静的・動的磁気特性の C 組成依存

村松省吾、宮崎孝道、遠藤恭

(東北大学)

Dependence of structure and static and dynamic magnetic properties of Fe-Ga-C thin films on C composition

Shogo Muramatsu, Takamichi Miyazaki, Yasushi Endo

(Tohoku Univ.)

はじめに

巨大な飽和磁歪を有する Fe-Ga 合金薄膜は高速かつ小型な高周波磁気デバイスへの応用が期待されている。我々はこれまでに Fe-Ga 多結晶薄膜における静的・動的磁気特性の Ga 組成による変化を検討し、それらの保磁力とダンピング定数が高くなることを報告した⁽¹⁾。この結果は Fe-Ga 多結晶薄膜を高周波磁気デバイスへ応用するためには、それらの磁気特性を改善する必要があることを示している。そこで本研究では、Fe-Ga 膜の軟磁性化および高周波磁気特性の改善を目指して、C を添加した Fe-Ga-C 薄膜を作製し、C 組成の異なる Fe-Ga-C 薄膜の構造と静的・動的磁気特性について検討・議論する。

実験方法

50 nm 厚の $(\text{Fe}_{0.75}\text{Ga}_{0.25})_{100-x}\text{C}_x$ ($x=3.7-15.5$) をガラス基板上に DC マグネトロンスパッタリングを用いて製膜した。作製した試料の組成に関しては飽和磁化値から算定した。表面形状については AFM を、結晶構造については XRD および TEM を用いて評価した。また、静的・動的磁気特性については VSM、光てこ法を用いた高感度薄膜磁歪測定装置およびブロードバンド FMR(B-FMR)測定法を用いて評価した。

実験結果

Fe-Ga-C 薄膜における容易軸方向の保磁力 (H_c) およびダンピング定数 (α) の C 組成依存性を図 1 示す。 H_c に関しては C 組成 7.5 at.% を除いて、C 組成の増加にともない減少する傾向であった。これらの値は先行研究で見られた Fe-Ga-C 膜 (10-30 Oe)⁽²⁾ に比べて少し高い値となった。この違いは製膜方法の違いに由来すると考えられる。また、これらの値は C 組成が 8 at.% 以上の領域において、Fe-Ga 多結晶膜 (50 Oe)⁽¹⁾ に比べて低い値となった。 α に関しては C 組成の増加にともない 0.02 から 0.01 まで減少したのち、8 at.% 以上の C 組成領域では 0.01 程度でほとんど一定となった。これらの値は、C 組成の高い領域において Fe-Ga 多結晶膜 (0.04)⁽³⁾ と比べて 4 分の 1 程度と低く、高周波磁気特性を著しく改善できたことを提案している。8 at.% 以上の C 組成領域では他の軟磁性材料と同等の値となることがわかった。

以上の結果は Fe-Ga 合金への C の添加により Fe-Ga 多結晶膜の軟磁気特性および高周波磁気特性を改善できることを表している。

謝辞 本研究の一部は、JSPS 科研費 JP17H03226 の助成と、東北大学国際集積エレクトロニクス開発センター (CIES)、東北大学先端スピントロニクス研究開発センター (CSIS)、東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センター (CSRN) および情報ストレージ研究推進機構 (ASRC) の支援のもとで行われました。

参考文献 (1) 川辺泰之ら, T. Magn. Soc. Jpn, (Special Issues), **3**, 34-38 (2019). (2) Xianfen Liang et al, IEEE MAGNETIC Lett. **10**, 5500705 (2019). (3) Daniel B. Gopman et al., IEEE TRANSACTIONS, VOL. 53, NO.11, (2017).

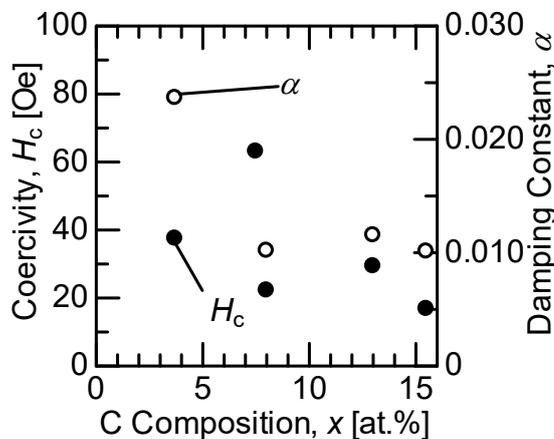


Fig.1 Dependence of coercivity and damping constant on the C composition for the Fe-Ga-C thin films

Co 組成の異なる Co-Fe-B 薄膜における 静的・動的磁気特性に関する研究

田中治憲, 宮崎孝道, 栢修一郎*, 遠藤恭 (東北大学, *東北学院大学)

Study on Static and Dynamic Magnetic Properties of Co-Fe-B Thin Film with Various Co Compositions

H. Tanaka, T. Miyazaki, S. Hashi*, Y. Endo (Tohoku Univ., *Tohoku Gakuin Univ.)

はじめに

STT-MRAM, スピンロジック素子, スピン MEMS センサなどの新規スピントロニクスデバイスの創製に向けて, これらのデバイスを構成する Co-Fe-B 薄膜の静的・動的磁気特性に関する研究が盛んに行われている. なかでも, 飽和磁気ひずみ (λ_s) とダンピング定数 (α) は, デバイス創製に直結する主要な磁気パラメータの一つであり, λ_s と α を詳細に理解する必要がある. 従来の研究では, Co-Fe-B 薄膜における λ_s と α の B 組成による変化¹⁾などについて報告されている. 一方で, これらのパラメータの相関の有無について報告された例はない. 本研究では, Co 組成の異なる Co-Fe-B 薄膜における静的・動的磁気特性について詳細に検討を行い, λ_s と α の性質および相関について議論する.

実験方法

5, 10, 30 nm 厚の $\text{Co}_x\text{Fe}_{80-x}\text{B}_{20}$ (Co-Fe-B) 薄膜を, 145 μm のガラス基板上に RF スパッタ装置を用いて作製した. 作製した Co-Fe-B 薄膜の Co 組成 (x) は, 0 ~ 80 at.% と変化させた. 作製した薄膜の構造は, XRD および AFM を用いて評価した. また, 静的・動的磁気特性は VSM, 光てこ法による高感度薄膜磁歪測定装置および VNA と伝送線路からなるブロードバンド FMR 測定法を用いて評価した.

結果および考察

図 1 は膜厚の異なる Co-Fe-B 薄膜における飽和磁気ひずみ (λ_s) の Co 組成依存性である. いずれの膜厚においても, λ_s は Co 組成の増加にともないいったん増加しその後単調に減少した. これらの結果は, バルクにおける λ_s の Co 組成に対する変化²⁾と類似している. また, いずれの膜厚および Co 組成においても, λ_s 値はバルク値に比べておおむね高くなった. この原因は, 製膜時に膜と基板の間に応力が誘起されたことによるものと考えられる. 面内有効ダンピング定数 ($\alpha_{//}$) は, いずれの膜厚においても, Co 組成 (x) の増加にともない, Co 組成リッチ側で増加する傾向が見られた (図 2). これらの傾向は, 異方性分散等の磁気的不均一性に由来するものと考えられる. また, λ_s と $\alpha_{//}$ の相関に関しては, 膜厚により異なっていて, その原因は現在検討中である. 以上の結果より, λ_s と $\alpha_{//}$ は膜厚によらず Co 組成に大きく依存することがわかった.

謝辞

本研究の一部は, 科研費基盤研究 (B) (No. 17H03226) の補助と, 東北大学 CSRN, 東北大学 CSIS, 東北大学 CIES および ASRC の支援のもので行われた.

参考文献 1) C. L. Platt et al., IEEE Trans. Magn. 37, 2302 (2001)., 2) R. C. O'Handley, PRB 18, 930 (1978).

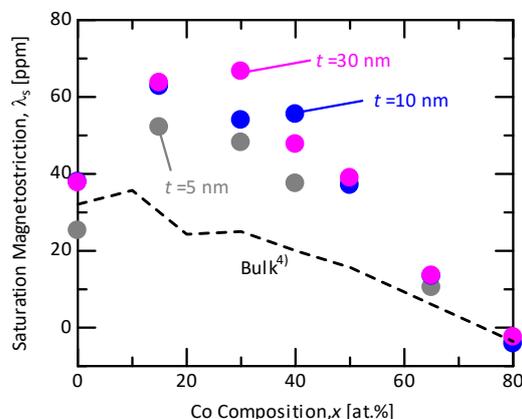


FIG. 1. Relationship between λ_s vs x for various thick $\text{Co}_x\text{Fe}_{80-x}\text{B}_{20}$ thin films.

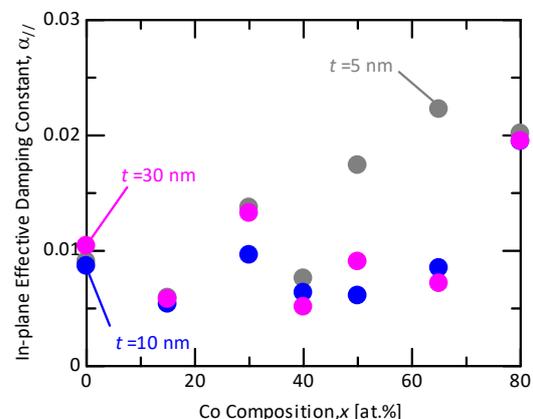


FIG. 2. Change in $\alpha_{//}$ of various thick $\text{Co}_x\text{Fe}_{80-x}\text{B}_{20}$ thin films with Co compositions (x).