

# 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  $\text{ZnFe}_2\text{O}_4$  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<sup>1)</sup>。この強磁性は、キュリー一点が  $190^\circ\text{C}$  付近にあること、可視光短波長領域で  $80\text{ K}$  程度の低温で、 $-10^3\text{ deg/cm}$  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  $\text{ZnFe}_2\text{O}_4$  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

$\text{ZnFe}_2\text{O}_4$  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、 $\text{Zn}$  と  $\text{Fe}$  が  $1:2$  の組成比となるように混合し、溶液滴下後  $100^\circ\text{C}$  で  $30\text{min}$  乾燥し、有機物を分解させるために  $300^\circ\text{C}$  で  $30\text{min}$  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、 $600^\circ\text{C}$ 、1 時間で焼成した薄膜の  $10\text{ kOe}$  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  $190\text{ K}$  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。 $4\text{ K}$  では、 $700\text{ Oe}$  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、 $80\text{ K}$  でほぼ保磁力は消失する。 $500^\circ\text{C}_2\text{h}$  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  $80\text{ K}$  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、 $100\text{ K}$  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  $80$

$\text{K}$  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  $4\text{ K}$  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

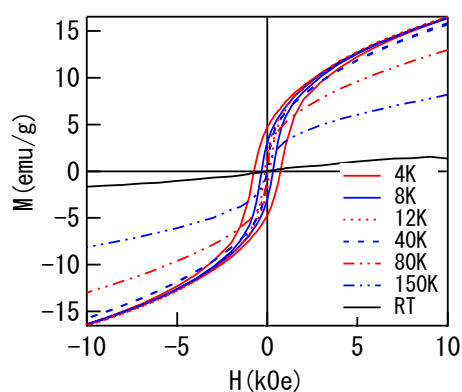


Fig.1 The temperature dependence of the magnetic hysteresis curves for  $\text{ZnFe}_2\text{O}_4$  films annealed at  $600^\circ\text{C}$ , 1hour.

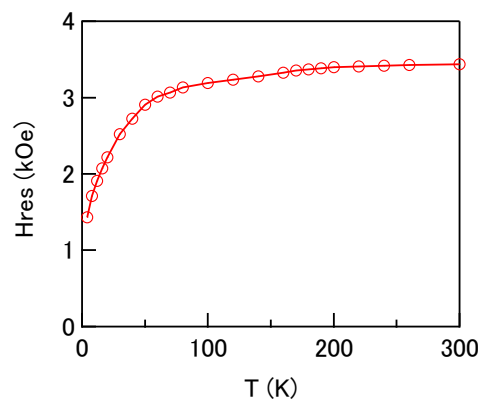


Fig.2. The temperature dependence of the magnetic resonance field of  $\text{ZnFe}_2\text{O}_4$  film annealed at  $500^\circ\text{C}$ , 2hour.

# 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

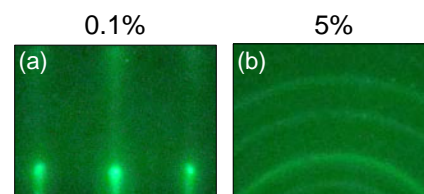
前田悠良<sup>1</sup>・今村光佑<sup>1</sup>・大竹充<sup>1</sup>・川井哲郎<sup>1</sup>・二本正昭<sup>1</sup>・桐野文良<sup>2</sup>・稲葉信幸<sup>3</sup>  
(<sup>1</sup>横浜国大, <sup>2</sup>東京藝大, <sup>3</sup>山形大)

Structural and Magnetic Properties of Fe-B-N Alloy Films Formed on MgO(001) Single-Crystal Substrates  
Yura Maeda<sup>1</sup>, Kosuke Imamura<sup>1</sup>, Mitsuru Ohtake<sup>1</sup>, Tetsuroh Kawai<sup>1</sup>, Masaaki Futamoto<sup>1</sup>, Fumiyoshi Kirino<sup>2</sup>, Nobuyuki Inaba<sup>3</sup>  
(<sup>1</sup>Yokohama Nat. Univ., <sup>2</sup>Tokyo Univ. Arts, <sup>3</sup>Yamagata Univ.)

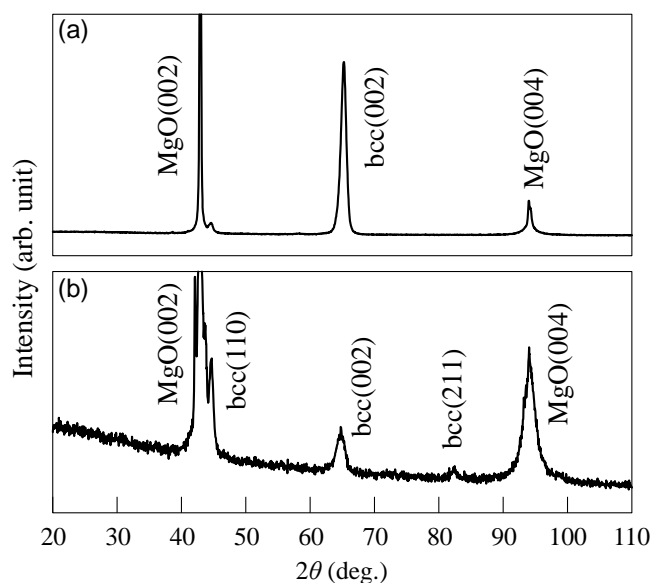
**はじめに** Fe-B 合金は高い透磁率と飽和磁化を持ち、バルク材料は変圧器の低損失コアとして、薄膜材料は磁気センサなどで用いられている。これまで、軟磁気特性を向上させるために窒素 (N) を添加する試みが行われている<sup>1-3)</sup>。しかしながら、B と N 組成を系統的に変化させて、構造と磁気特性を調べた報告はほとんどない。本研究では、基本特性を明らかにすることを目的に薄膜材料を活用し、反応性スパッタリング法により、Fe-B-N 膜の形成を試みた。そして、膜成長、構造および磁気特性を調べた。

**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 N<sub>2</sub> 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 Fe<sub>92</sub>B<sub>8</sub> 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]<sub>bcc</sub> || 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<sub>N<sub>2</sub></sub>.



**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<sub>N<sub>2</sub></sub>.

- 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。<sup>[1]</sup>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  $\mu\text{m}$ 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  $\mu\text{m}$ 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

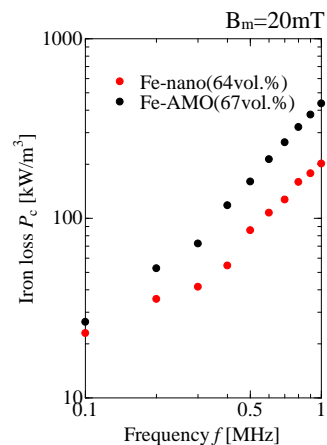


Fig.2 Iron loss of Fe-nano and Fe-AMO composite core.

# 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<sup>1)</sup>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 ナノグラニューラ薄膜<sup>2,3)</sup>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)<sup>4)</sup>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 O<sub>2</sub> 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 Co<sub>65</sub>Zr<sub>11</sub>O<sub>24</sub>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/m<sup>3</sup>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).

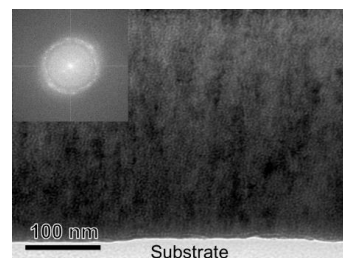


Fig. 1 Cross-section TEM images of the Co-Zr-O film prepared by FTS

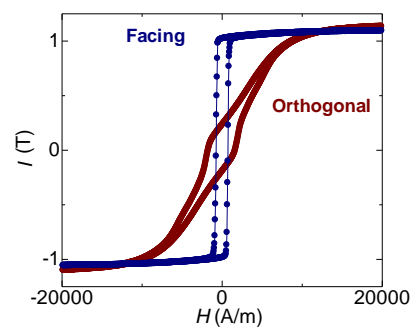


Fig. 2 In-plane dc magnetic hysteresis loop of a Co-Zr-O film prepared by FTS.