# 振動発電に及ぼす片持ち梁の振動の影響

川井哲郎・石川瑛士・大竹 充・二本正昭 (横浜国大)

## Effect of the Vibration of Cantilever Beam on the Vibration Power Generation Tetsuroh Kawai, Eishi Ishikawa, Mitsuru Ohtake, and Masaaki Futamoto (Yokohama National University)

はじめに IoT の進展に伴い多量のセンサが使われ、その電源として環境からエネルギーを取り込む、いわゆるエネルギーハーベスト型が注目されている。磁歪材料を使った振動発電はその有力な方式の一つで、多くの報告がある<sup>1)</sup>.発電効率の良いデバイスを設計するためには振動と発電電圧との関係を明確にしておく必要がある。本報告では磁歪材料を使った片持ち梁の振動発電の現象をデバイス設計に役立つ解析式として求めることを目的とする。片持ち梁の減衰定数を実測から求め、自由端の振動を減衰がある強制振動の運動方程式で記述し、その振幅が発電電圧に及ぼす影響を実測と比較しながら解析した。

実験方法 振動発電用片持ち梁には Cu 基板(長さ:40 mm,幅:10 mm,厚さ:0.3 mm)に Fe-B-Si系アモルファスリボン(日立金属製 SA1,厚さ:25 μm)をエポキシ樹脂で貼り付けたものを使用し,振動試験機で 周波数を1 Hz 刻みで強制振動させた(加速度は1重力加速度に固定).発電コイル(抵抗:1.2 kΩ)には Cu 線(0.1 mm 径)を梁の長さ全体にわたって巻いたコイル(ターン数:8,000,最内径:12 mm×16 mm)を使 用した.このコイルの両端に発生する電圧をオシロスコープで観測した.梁にはバイアス磁場等は印可せず, 純粋に振動だけの影響を解析にした.

実験結果と考察 片持ち梁の自由端を弾いて、その減衰振動の様子を動画に撮影し、振幅の時間依存性を指数関数近似して減衰定数β(β=0.0061)を求めた.共振周波数は117 Hz であった.この減数定数を使い、自由端の振動が強制振動の運動方程式に従うとして計算した結果を Fig. 1(a)に示す.意図的に共振周波数から2 Hz ずらして強制振動させた時の自由端の振幅の立ち上がりを時間の関数として示してある.充分時間が経ち安定した強制振動に至るまでにいわゆるうなりが生じていることがわかる.Fig. 1(b)はオシロスコープで観測した発電電圧の立ち上がりを示す.最も大きな発電電圧が得られた共振周波数から2 Hz ずらした状態である.Fig. 1(a)と同様に安定した電圧が得られるまでにうねりを生じていることがわかる.これら2つの図を比較することにより、振動発電現象は減衰を考慮した強制振動の運動方程式で記述出来ることがわかる.





**謝辞** Fe-B-Si 系アモルファスリボンをご提供頂いた日立金属(株)メトグラス安来工場 備前嘉雄 様に厚く お礼申し上げます.

### <u>参考文献</u>

1) 上野敏幸: 応用物理, 89, 82-86 (2020).

# 磁歪式振動発電における磁化挙動と出力電圧に及ぼす バイアス磁界の影響 <sup>石川瑛士・川井哲郎・大竹充・二本正昭</sup>

# (横浜国大)

### Influences of Bias Magnetic Field on the Magnetization Behavior and the Output Voltage in Magnetostrictive Vibration Power Generation

### Eishi Ishikawa, Tetsuroh Kawai, Mitsuru Ohtake, and Masaaki Futamoto

### (Yokohama Nat. Univ.)

**はじめに** 環境発電デバイスをセンサと無線モジュールの自立型電源として組み合わせることで, IoTデバイ スのワイヤレスかつメンテフリー化が可能になることが期待されている.磁性材料の磁化方向が応力により 変化する逆磁歪効果を活用した振動発電では,磁化の変化量を大きくするためには,適度なバイアス磁界が 必要であることが知られている<sup>1-3)</sup>.しかしながら,バイアス磁界の強度や印加方向が発電特性に及ぼす影響 を調べた報告は殆ど無い.本研究では,等方的な性質を持ち,比較的大きな磁歪を持つことが知られている Fe-B-Si系アモルファス薄帯から成る梁材料を用いて,バイアス磁界強度および印加方向が出力電圧に及ぼす 影響を系統的に調べた。

**実験方法** 梁材料は Cu 板 (50 mm×10 mm×0.3 mm) に Fe-B-Si 系アモルファス薄帯(日立金属製 SA1, 50 mm×10 mm×25 μm)をエポキシ接着材で貼り付けることにより作製した.長手方向の 10 mm の部分を固定し, 梁を片持ちの状態にし,発電コイル(抵抗:1.2 kΩ,巻数:8,000 回,最内径:12 mm×16 mm,全長:40 mm) に挿入し,梁のみを振動試験機を用いて強制振動させた.梁の共振周波数は105 Hz であった.また,ヘルム ホルツコイルを用いて梁にバイアス磁界を印加した.また,片持ち梁をビデオカメラで撮影することで自由 端の振幅を計測した.

**実験結果** はじめに、梁の長手もしくは短手方向にバイアス磁界を印加し、磁界強度が発電特性に及ぼす影響を調べた. Fig.1 に発電ピーク電圧の磁界印加強度依存性を示す. 長手方向に印加した場合,出力が最大となる磁界は10 Oe であったのに対して、短手方向では38 Oe で最大となった. また、長手方向に印加した場合,376 mV の高い出力が得られた. 一方で、長手方向に強い磁界を印加してしまうと、出力が急激に減衰してしまうのに対し、短手方向では比較的強い磁界でも、出力が殆ど低下しないことが分かった. 次に、振動の周波数が発電特性に及ぼす影響を調べた. Fig.2 に周波数依存性を示す. 長手および短手のいずれの方向にバイアス磁界を印加した場合においても、共振周波数近傍で高い出力が得られ、そこから外れると出力が低下する傾向が認められる. 当日は、これらの現象を磁化挙動のモデルに基づいて説明する.



Fig. 1 Magnetic field dependence of peak voltage. Fig. 2 Frequency dependence of peak voltage.

謝辞 日立金属株式会社メトグラス安来工場の備前嘉雄様にアモルファス薄帯をご提供頂きました.

- 1) T. Ueno: J. Appl. Phys., 117, 17A740 (2015).
- 2) 上藤枝俊, 枦修一郎, 川又透, 志村玲子, 石山和志, 福田承生, 鈴木茂: まてりあ, 59, 14 (2020).
- 3) Z. Yang, R. Onodera, T. Tayama, Z. Yang, R. Onodera, T. Tayama, M. Watanabe, and F. Narita: *Appl. Phys. Lett.*, **115**, 243504 (2019).

# 磁歪式振動発電における電力密度向上のための 片持ち梁の磁気的断面構造の設計

石川瑛士・川井哲郎・大竹充・二本正昭 (横浜国大)

Design of Magnetic Cross-Sectional Structure of Cantilever Beam for

### Improvement of Power Density in Magnetostrictive Vibration Power Generation

### Eishi Ishikawa, Tetsuroh Kawai, Mitsuru Ohtake, and Masaaki Futamoto

### (Yokohama Nat. Univ.)

**はじめに** IoT デバイスに搭載する自立型電源として,周囲の振動や衝撃から電力を取り出す振動発電デバ イスが注目されている.中でも,逆磁歪効果を利用した発電には,高出力化が可能で,耐久性や耐熱性も優 れることから,近年,盛んに研究されている<sup>1-4)</sup>.交流発電の効率向上のためには,発生電圧の最大値だけで なく,波形の積分値に関係する電力密度も増加させることが重要である.多くの磁歪式発電デバイスでは, 磁歪材料の板と磁歪材料にバイアス磁界を印加するためのヨーク材料の板を貼り合わせた梁を片持ちで支持 する構造が採用されている.そして,振動で梁に作用する交番曲げ荷重により,中立面を境とする上下で引 張と圧縮の異なる応力が発生する.通常,中立面と交わらないように磁歪材料板が配置されるため,磁歪材 料に引張と圧縮の応力が同時に働くことはない.しかしながら,同時に活用することが出来れば,電力密度 の向上に繋がる可能性がある.本研究では,現象の基礎検討を目的に,バイアス磁界をヨーク板からではな く,ヘルムホルツ・コイルにより外部から印加することにより,梁の設計制約を取り除き,梁の磁気的な断 面構造と出力電圧波形の関係を調べた.そして,電力密度を向上させるための断面構造を考察した.

**実験方法** 梁の寸法は50 mm×10 mm×0.3 mmで一定とし, Fig. 1(a)に示す4種類の梁を使用した. 1つ目は0.2 mm厚のCu板上に0.1 mm厚の方向性珪素鋼(Fe-Si) 板を圧延方向が長手方向となるようにエポキシ樹脂で貼 り合わせた(Fig.1(a-1)). 2つ目は1つ目の上下を逆にしたもの(Fig.1(a-2)), 3つ目は2枚の0.1 mm厚のFe-Si 板で0.1 mm厚のCu板を挟み込んだもの(Fig.1(a-4)), そして, 4つ目は0.3 mm厚の板(Fig.1(a-5))とした. 長手方向の10 mmの部分を掴み,梁を片持ちの状態とし,発電コイル(抵抗:1.2 kΩ, ターン数:8,000, 最内 径:12 mm×16 mm, 全長:40 mm) に挿入した. そして, コイルは振動させず,梁のみを振動試験機で振動 させた. また,バイアス磁界をヘルムホルツコイルを用いて梁の長手方向に印加した. なお,振動試験機の 加速度の波形は, 圧電式加速度ピックアップを用いて計測した.

**実験結果** 0.1 mm 厚の Fe-Si 板と 0.2 mm 厚の Cu 板を貼り合わ せ、Fe-Si 板が上面になるように振動させた場合の出力電圧の波 形を Fig. 1(b-1), 下面になるようにした際の電圧波形を Fig. 1(b-2)に示す.両者は位相が反転した関係となっていることが分か る. Fig. 1(b-4)に 0.1 mm 厚の Fe-Si 板で 0.1 mm 厚の Cu 板を挟 み込んだ梁を振動させた場合の波形を示す. 片面に Fe-Si 板を 貼り付けた場合に比べて、ピークピーク値は大きくは変わって いないものの,周波数が2倍になっていると見なすことができ, 電力密度が向上していることが分かる. また, Fig. 1(b-3)は Fig. 1(b-1)と(b-2)の波形を足し合わせたものであり, Fig. 1(b-4)とよ く一致している. このことは、上下の Fe-Si 板は独立して動作 していることを示唆しており、梁に発生する引張と圧縮の応力 を同時に活用できていることが分かる. そして, Fig. 1(b-5)に 0.3 mm 厚の1 枚の Fe-Si 板を振動させることにより得られた出力 波形を示す. Fig. 1(b-5)も Fig. 1(b-4)と同様な波形となっており, 磁歪材料として Fe-Si 合金を用いる場合,3 層構造にしなくて も、同様な効果が得られることが示された.



Fig. 1 (a) Cross-sectional structures of cantilever beam and (b) output voltage waveforms.

- 1) T. Ueno: J. Appl. Phys., 117, 17A740 (2015).
- 2) Z. Yang, K. Nakajima, R. Onodera, T. Tayama, D. Chiba, F. Narita: Appl. Phys. Lett., 112, 073902 (2018).
- 3) S. Yamaura, N. Kimura, M. Yokoyama, T. Kubota, Y. Furuya: Trans. Mat. Res. Soc. Japan. 42, 131 (2017).
- 4) T. Okade, S. Fujieda, S. Hashi, K. Ishiyama, S. Suzuki, S. Seino, T. Nakagawa, T. Yamamoto: *Mater Trans*, **61**, 1799 (2021).

# 電解めっき法により形成した Fe-Co 合金厚膜を用いた磁歪式振動発電

明田俊祐・石川瑛士・中村優太・大竹充・川井哲郎・二本正昭 (横浜国大)

Magnetostrictive Vibration Power Generation by Using Electroplated Fe-Co Thick Film Shunsuke Aketa, Eishi Ishikawa, Yuta Nakamura, Mitsuru Ohtake, Tetsuroh Kawai, Masaaki Futamoto (Yokohama Nat. Univ.)

**はじめに** エネルギー・ハーベスティング技術の一つである磁歪式振動発電が注目されている. これまで, 逆磁歪効果を発現させる磁性材料として,磁歪定数の大きな Fe-Ga<sup>1)</sup>や Fe-Co<sup>2)</sup>合金に加え,磁気異方性が小さ な Fe-B<sup>3)</sup>や Fe-Si<sup>4</sup>合金が検討されている. また,出力電圧は磁性材料の断面積に比例するため,25~500 µm 厚のバルクの薄板もしくは薄帯が用いられている. 一方で,数十 µm 程度の厚さであれば,膜で置き換える ことができる. 厚膜を形成する手法として,製膜速度が速いめっき法が有効である. また,めっき膜は残留 応力によりバルクよりも大きな磁歪を持つ場合も報告されており,磁歪式発電用磁性材料に適していること が考えられる. 本研究では,磁性材料として Fe-Co 合金に着目し,電解めっき法により厚膜形成を行った. そして,発電用磁性材料への適用を試みた.

**実験方法** 膜形成には陽極が Fe 板, 陰極が Cu 基板 (25 mm×8 mm×0.1 mm) の電解めっき装置を使用した. 浴中の Fe と Co イオンの比率を 変えることで膜組成を変化させた. 膜組成分析には EDS, 構造評価に は XRD, 磁気特性評価には VSM, 磁歪特性評価には片持ち梁法を用 いた. 発電特性の評価には, ヘルムホルツ・コイルにより外部からバ イアス磁界を印加できる試験装置を用いた. めっき試料の長手方向の 5 mm の部分を固定し, 片持ち梁の状態とし, 検出コイル (抵抗:0.53 Ω, 巻数:4000 回, 最内径:14 mm×10 mm, 全長:20 mm) に挿入し た. そして, コイルは振動させず, 梁のみを振動させた. また, 長手 方向にバイアス磁界を印加した.

**実験結果** Fig.1にCu 基板上に形成した 27 μm 厚の Fe<sub>60</sub>Co<sub>40</sub> 膜を 151 Hz で共振させ,長手方向に 34 Oe のバイアス磁界を印加した場合に 得られた出力電圧波形を示す.振動の周期に伴い,100 mV 程度の電 圧が観察されており,めっき膜によっても出力が得られることが分かった.Fig.2に単位膜厚あたりの出力電圧の組成依存性を示す.出力電 圧は組成に強く影響を受けていることが分かる.当日は,めっき膜の 構造・磁気・磁歪特性と発電特性の関係について詳細に議論する.

- A. E. Clark, K. B. Hathaway, M. Wun-Fogle, J. B. Restorff, T. A. Lograsso, V. M. Keppens, G. Petculescu, and R. A. Taylor: *J. Appl. Phys.*, **93**, 8621 (2003).
- I. Hasif, T. Kubota, M. Matsumoto, S. Yamaura, and Y. Furuya: J. Jpn. Soc. Appl. Electromagn. Mech., 26, 254 (2018).
- 3) 長内史也, 枦修一郎, 石山和志: 電気学会全国大会., 2, 146 (2019).
- 4) 長内史也, 枦修一郎, 藤枝俊, 石山和志: 日本磁気学会学術講演概 要集, 43, 26aE-7 (2019).



Fig. 1 Output voltage waveform obtained by using an  $Fe_{60}Co_{40}$  thick film.



**Fig. 2** Compositional dependence of peak voltage.

# 方向性電磁鋼板の振動発電特性に及ぼす大型化の効果

岡田 拓\*、藤枝 俊\*、鈴木 茂\*\*、清野智史\*、中川 貴\* (\*阪大 工学研究科、\*\*東北大 マイクロシステム融合研究開発センター) Effect of device size on vibration power generation property of grain-oriented electrical steel T. Okada<sup>\*</sup>, S. Fujieda<sup>\*</sup>, S. Suzuki<sup>\*\*</sup>, S. Seino<sup>\*</sup>, T. Nakagawa<sup>\*</sup> (\*Graduate School of Engineering, Osaka Univ., \*\*µSIC, Tohoku Univ.)

### はじめに

逆磁歪効果(応力印加による磁気特性の変化)を利用した振動発電は、IoT デバイスの次世代電 力源として注目されている<sup>1)</sup>。発電出力向上の一つの手段としてデバイスサイズの大型化が有効で あるが<sup>2)</sup>、有望材料である Fe-Ga 合金単結晶の大型化技術は研究開発の段階である。このような状 況で、Fe-Si 合金単結晶および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 晶においても良好な振動発電特性が報告された<sup>3,4)</sup>。本研究では、方向性電磁鋼板を搭載した振動発 電デバイスの発電特性に及ぼす大型化の効果を調べた。

### 実験方法

方向性電磁鋼板を圧延方向(RD: rolling direction)に対し て平行に長く切り出すことで、試料を得た。この試料を鉄 製の U 字フレームに貼り付け、空芯コイルと永久磁石を 取り付けることでユニモルフ U 字型デバイスを構成した。 これらのデバイスを強制振動させ、発電特性を評価した。

### 実験結果

Fig. 1 (a)に示すように、16×4×0.35 mm<sup>3</sup>の試料、32×8 ×0.35 mm<sup>3</sup>の試料2枚重ね、および64×16×0.35 mm<sup>3</sup>の 試料4枚重ねを用い、全長40mmのデバイス(40mmRD)、 全長 80 mm のデバイス (80mmRD) および全長 160mm の デバイス(160mmRD)を作製した。これらのデバイスを 加振機で周波数fが100Hzとなるように振動させた。また、 デバイスの大型化に合わせて 40mmRD、80mmRD、および 160mmRDの先端変位の振幅△dはそれぞれ 2.0 mm、4.0 mm および 8.0 mm に調整した。コイルに接続した負荷抵抗 R にかかる電圧から求めた平均電力 Pave を Fig. 1 (b)に示す。 40mmRD の Pave は最大値で 0.28 mW を示した。デバイス の大型化に伴い Pave は増加し、160mm RD の Pave は 36.7 m W の最大値を示した。つまり、デバイスの寸法を4倍(体積 は 64 倍)にすることで、Pave は約 131 倍となった。よって、 方向性電磁鋼板において大型化の効果は顕著であり、高出 力な大型デバイスへの応用が期待できる。

- 1) T. Ueno *et al.*, IEEE Trans. Magn., **47** (2011) 2407.
- 2) 上野敏幸, 日本金属学会会報 まてりあ 59 (2020) 6.
- 3) F. Osanai et al., Proc. 24th Soft Mag. Mater. Conf., (2019) P-071.
- 4) T. Okada et al., Mater. Trans., 62 (2021) 1798.





Fig. 1 (a) Picture of vibration power generation devices using grain-oriented electrical steel. (b) Relationship between average output power  $P_{ave}$  and load resistance R.

# Cu<sub>x</sub>Co<sub>1-x</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>の磁歪特性と結晶構造の関係

藤枝 俊、久松美佑、小杉静花、清野智史、中川 貴 (阪大 工学研究科) Relation between magnetostrictive properties and crystal structure of Cu<sub>x</sub>Co<sub>1-x</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> S. Fujieda, M. Hisamatsu, S. Kosugi, S. Seino, T. Nakagawa

(Graduate School of Engineering, Osaka Univ.)

### はじめに

立方晶スピネル構造のCoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>系フェライトは、室温において比較的大きな磁歪を示す。例えば、Co<sub>0.8</sub>Fe<sub>2.2</sub>O<sub>4</sub>の室温における<100>方向の磁歪定数は-590 ppm であり、この絶対値はFe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>の値よりも約 30 倍も大きい<sup>1)</sup>。CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>系フェライトの磁歪材料への応用に向けて、磁歪特性を向上させる有効な部分置換元素が求められている。立方晶スピネル構造のFe<sub>2</sub>TiO<sub>4</sub>は 142 K 以下で協力的Jahn-Teller 効果により正方晶に相転移し、77 K において<100>方向の磁歪定数が 4700 ppm 程度の巨大磁歪を示すことが報告されている<sup>2)</sup>。そこで、スピネル構造を構成する 6 つの酸素で囲まれた八面体の中心、すなわち八面体サイトを Cu<sup>2+</sup>が占有すると Jahn-Teller 効果が生じることに着目し、本研究では Co を Cu で部分置換した Cu<sub>x</sub>Co<sub>1-x</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>の磁歪特性と結晶構造の関係を調べた。

### 実験方法

CoO、Cu<sub>2</sub>O および α-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を出発原料として用い、それらを混合してペレット化した後、大気中 において 950 ℃で 10 時間の熱処理を施して Cu<sub>x</sub>Co<sub>1-x</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 試料を作製した。X 線回折測定により結 晶構造を調べた。また、磁歪特性の評価には、歪みゲージを用いた。

### 実験結果

室温において Cu<sub>x</sub>Co<sub>1-x</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 試料は、 $x \le 0.7$  では立方晶構造を示し、 $x \ge 0.8$  では協力的 Jahn-Teller 効果により正方晶構造を示した<sup>3)</sup>。そこで、立方晶構造のx = 0.5 および正方晶構造のx = 0.8 の歪み  $\Delta L/L$ の磁場依存性を Fig. 1 に示す。歪みの測定方向に対し、平行および垂直方向に磁場を印加した。

正方晶構造の $x = 0.8 \text{ o}\Delta L/L$  は平行磁場印加 ( $H_{\prime\prime}$ ) により 減少し、垂直磁場印加 ( $H_{\perp}$ ) により増加する。つまり、 比較のために示したx = 0.0 (CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>) と同様に、x = 0.8において負の磁歪が生じる。x = 0.8 の最大印加磁場にお ける  $H_{\prime}$ および  $H_{\perp}$ の $\Delta L/L$  の絶対値は、x = 0.0 の値よりも 小さい。ここで注目すべき点は、立方晶構造のx = 0.5 も 負の磁歪を示すが、最大印加磁場における  $H_{\prime\prime}$ および  $H_{\perp}$ の $\Delta L/L$ の絶対値は、x = 0.0の値よりも大きいことである。 つまり、立方晶構造が安定な組成領域において CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の磁歪特性は Co の Cu 部分置換により向上することが明 らかになった。

- 1) R. M. Bozorth et al., Phys. Rev., 99 (1955) 1788.
- 2) Y. Ishikawa et al., Phys. Rev. Lett., 26 (1971) 1335.
- 3) M. Hisamatsu et al., IEEE Trans. Magn., **57** (2021) 2100804.



Fig. 1 Magnetic field dependence of strain  $\Delta L/L$  of Cu<sub>x</sub>Co<sub>1-x</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> with x = 0.0, 0.5 and 0.8.

# Fe-Ga エピタキシャル薄膜の作製と磁歪特性

丁浩<sup>1</sup>, 関剛斎<sup>1</sup>, 遠藤恭<sup>2</sup>, 高梨弘毅<sup>1</sup> (<sup>1</sup>東北大金研、<sup>2</sup>東北大院工学研究科) Preparation and magnetostriction of Fe-Ga epitaxial thin films H. Ding<sup>1</sup>, T. Seki<sup>1</sup>, Y. Endo<sup>2</sup>, K. Takanashi<sup>1</sup> (<sup>1</sup>IMR, Tohoku Univ., <sup>2</sup>Grad. Sch. Eng., Tohoku Univ.)

### <u>はじめに</u>

準粒子間の相互作用の一つである「マグノン-フォノン結合」は、フォノンを使った磁気的信号の制御などの 新機能性を実現できることから、近年注目を集めている。磁歪材料である Fe-Ga 合金は、格子変形と磁気異 方性に強い相関があり、マグノンとフォノンの強い相互作用が期待できることから、Fe-Ga 単結晶薄膜や多 結晶薄膜を用いた研究が進められている<sup>1)</sup>。しかしながら、種々の基板上に Fe-Ga 薄膜を単結晶成長させる ための条件や、それら Fe-Ga 単結晶薄膜における磁気ひずみや高周波磁気特性の合金組成依存性は十分に調 べられておらず、マグノン-フォノン結合の効率を上げるためには基本特性の理解が不可欠となっている。そ こで本研究では、マグネトロンスパッタ法を用いて Ga 組成の異なる Fe-Ga 薄膜を様々な基板材料上に成長し、 それらの構造および磁気特性、特に磁気ひずみを明らかにすることを目的とした。

### <u>実験方法</u>

基板材料には、先行研究で用いられた GaAs (100) 基板<sup>1)2)</sup>および Mg0 (100) 基板<sup>3)</sup>、さらに比較のため熱酸化 Si 基板を選択した。薄膜作製にはマグネトロンスパッタリング装置を用い、基板上に Fe<sub>100-x</sub>Ga<sub>x</sub> (20 nm) / Pt (2 nm) (x=0, 20, 30, 50)を成膜した。Fe-Ga 層成膜中の基板温度は室温および 400℃とした。X 線回折(XRD)お よび反射高速電子線回折(RHEED)を用いて構造解析を行った。さらに試料型振動磁束計を用いて磁気特性を評 価し、光てこ法を用いて磁気ひずみを評価した。

### <u>結果</u>

まず、GaAs 基板の表面清浄化のプロセスを検討した。GaAs 基板を 36%塩酸に 3 分間、超純水に 30 秒浸漬し、 その後スパッタ成膜室で 400℃×30min の熱処理を行ったところ、平坦な表面を示す RHEED パターンが観察さ れた。さらに、成長中の基板温度を 400℃とすることにより、GaAs (100) 基板および Mg0 (100) 基板の上におい て、Fe<sub>80</sub>Ga<sub>20</sub>、Fe<sub>70</sub>Ga<sub>30</sub>、および Fe<sub>50</sub>Ga<sub>50</sub> がエピタキシャル成長することが分かった。Mg0 (100) 基板上の Fe<sub>100-x</sub>Ga<sub>x</sub> の XRD パターンにおいて、Ga の組成が増えるにつれて回折ピーク角度が低角側へとシフトし、Fe-Ga 合金の 格子定数が増大することが確認された。Mg0 (100) 基板および GaAs (100) 基板の上に 400℃で成膜した Fe<sub>70</sub>Ga<sub>30</sub> 薄膜は、バルクの Fe-Ga 合金 <sup>4)</sup>と同程度の磁歪を示すことがわかり、磁気ひずみとマグノン-フォノン結合の 効率を調べるための対象となるエピタキシャル薄膜を作製することができた。

- 1) F. Godejohann et al. Phys. Rev. B 102, 144438 (2020).
- 2) D. E. Parkes, et al. Sci. Rep. 3, 2220 (2013)
- 3) H. Nakayama et al. Phys. Rev. Mater. 3, 114412 (2019).
- 4) A. E. Clark et al. J. Appl. Phys. 93, 8621 (2003)

# 異なる結晶方位のエピタキシャルγ'-Fe4N 薄膜の構造と磁歪特性

阿部航大<sup>1</sup>·中村優太<sup>1</sup>·今村光佑<sup>1</sup>·前田悠良<sup>1</sup>·大竹充<sup>1</sup>·川井哲郎<sup>1</sup>·二本正昭<sup>1</sup>· 磯上慎二<sup>2</sup>·桐野文良<sup>3</sup>·稲葉信幸<sup>4</sup> (<sup>1</sup>横浜国大,<sup>2</sup>物材機構,<sup>3</sup>東京藝大,<sup>4</sup>山形大)

Structural and Magnetostrictive Properties of Epitaxial γ'-Fe<sub>4</sub>N Thin Films with Different Orientations Kouta Abe<sup>1</sup>, Yuta Nakamura<sup>1</sup>, Kosuke Imamura<sup>1</sup>, Yura Maeda<sup>1</sup>, Mitsuru Ohtake<sup>1</sup>,

Tetsuroh Kawai<sup>1</sup>, Masaaki Futamoto<sup>1</sup>, Shinji Isogami<sup>2</sup>, Fumiyoshi Kirino<sup>3</sup>, Nobuyuki Inaba<sup>4</sup>

(<sup>1</sup>Yokohama Nat. Univ., <sup>2</sup>NIMS, <sup>3</sup>Tokyo Univ. Arts, <sup>4</sup>Yamagata Univ.)

**はじめに** 窒化鉄のひとつである  $\gamma'$ -Fe4N は L'1 型 (ピアソン記号 : cP5, 空間群 :  $Pm\bar{3}m$ )の結晶構造を持ち, 結晶磁気異方性定数が  $K_1 = 1.6 \times 10^5$  erg/cm<sup>3</sup><sup>-1</sup>)と低く,飽和磁化が  $M_s = 1556$  emu/cm<sup>3</sup><sup>-2</sup>)と高い軟磁気的な特 性を示す.また,スピン偏極率が大きいことからスピントロニクス応用に向けて注目されているだけではなく, 第一原理計算により $\lambda_{100} = -143 \times 10^{-6-3}$ の大きな磁歪定数を持つことが示唆されているため、レアメタルフリー磁 歪材料としての活用も期待できる.しかしながら、 $\gamma'$ 相の磁歪に関する研究は殆ど行われていない.そこで,最近, 我々は MgO(110)基板上に $\gamma'$ -Fe4N(110)単結晶膜を形成し、磁歪定数を実測した.その結果、 $\lambda_{100} = -80 \times 10^{-6}$ , $\lambda_{111} =$ +220×10<sup>-6</sup>の大きな磁歪定数が得られた.磁歪は異方的な特性であり、結晶配向面の違いによって生じる結晶品質 によっても影響を受けることが考えられる.本研究では、(001)、(110)、(111)配向のエピタキシャル膜およびラン ダム配向の多結晶膜を形成し、構造と磁歪特性の関係を調べた.

**実験方法** 製膜には超高真空 RF マグネトロン・スパッ タリング装置を用いた. 基板には, MgO(001), MgO(110), MgO(111)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001), poly-MgO/SiO<sub>x</sub>を用いた. 基板温 度は400 ℃ とし, Ar と N<sub>2</sub>の混合ガス雰囲気(全圧:0.67 Pa, N<sub>2</sub>分圧比:5%)の下, Fe ターゲットをスパッタす ることにより40 nm のγ'-Fe<sub>4</sub>N 膜を形成した. 構造評価 には RHEED, XRD, XPS, および AFM, 磁化曲線測定 には VSM, 磁歪測定には片持ち梁法を用いた.

**実験結果** MgO(001), MgO(110), MgO(111)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001) 基板上にはそれぞれ,  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N(001)単結晶膜, (110)単結晶 膜, (111)双結晶膜がエピタキシャル成長し, MgO/SiO<sub>x</sub> 基板上には多結晶膜が形成された. 1.2 kOe 面内磁界中で 測定した(001)単結晶膜の[100]および[110]方向の寸法変 化を Fig. 1(a), (110)単結晶膜の[001]および[111]方向の寸 法変化を Fig. 1(b)に示す.振幅と位相を解析すると磁歪 定数を算出することができ, (001)および(110)単結晶膜の 磁歪定数( $\lambda_{100}$ ,  $\lambda_{111}$ )は, それぞれ, (-40×10<sup>-6</sup>, +80×10<sup>-6</sup>)お よび(-80×10<sup>-6</sup>, +220×10<sup>-6</sup>)であった. (110)膜の配向分散  $\Delta\theta_{50}$ は 1.2°であったのに対して, (001)膜の  $\Delta\theta_{50}$ は 3.9°で あった. そのため,結晶性を反映して, (110)膜でより大 きな磁歪が得られたものと考えられる. 当日は(111)双結 晶膜および多結晶薄膜の磁歪特性や,結晶配向,構造, 磁歪特性との相関についても詳細に議論する.



**Fig. 1** (a-1)  $\Delta l/l_{[100]}(\theta)$  and (a-2)  $\Delta l/l_{[110]}(\theta)$  of a  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N(001) single-crystal film and (b-1)  $\Delta l/l_{[001]}(\varphi)$  and (b-2)  $\Delta l/l_{[1\bar{1}1]}(\varphi)$  of a  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N(110) single-crystal film measured under an in-plane rotating magnetic field of 1.2 kOe.

- 1) K. R. Nikolaev, I. N. Krivorotov, E. D. Dahlberg, V. A. Vas'ko, S. Urazhdin, R. Loloee, and W. P. Pratt: Appl. Phys. Lett., 82, 4534 (2003).
- 2) I. Dirba, M. B. Yazdi, A. Radetinac, P. Komissinskiy, S. Flege, O. Gutfleisch, and L. Alff: J. Magn. Magn. Mater., 379, 151 (2015).
- 3) Y. Zhang, Z. Wang, and J. Cao: Comput. Mater. Sci., 92, 464 (2014).

# (Fe0.7Co0.3)95Als合金単結晶薄膜の構造と磁気・磁歪特性

中村優太<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, Magnetic, and Magnetostrictive Properties of (Fe<sub>0.7</sub>Co<sub>0.3</sub>)<sub>95</sub>Al<sub>5</sub> Alloy Single-Crystal Thin Films Yuta Nakamura<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-Co 合金は代表的な軟磁性材料であり,組成や形成条件より 100×10<sup>-6</sup>以上の大きな磁歪を示す ことから <sup>1-3)</sup>,逆磁歪効果を利用した振動発電デバイスやアクチュエータ等への応用に向けて注目されている. Fe-Co 合金における磁歪増大の要因のひとつは,bcc 格子の A2 不規則相に,bcc 格子の B2 規則相や fcc 格子 の A1 不規則相がナノレベルで混在することによる応力であることが示唆されている<sup>4)</sup>. 一方で,良好な軟磁 性を得るためには,結晶磁気異方性エネルギーがほぼゼロとなるように Co 組成を 30~40 at.%に制御するこ とが有効である.最近,我々は,材料基礎物性を調べることを目的に,Fe<sub>70</sub>Co<sub>30</sub> 合金に B を 5 at.%添加した 単結晶膜を形成した<sup>5)</sup>. その結果, B 添加により B2 相への規則化が促進され,磁歪定数 $\lambda_{100}$ が+310×10<sup>-6</sup>まで 増加した. AI は Fe や Co との合金において B2 相を形成し,Fe-Co 合金への AI 添加により, B2 相の組成幅を 拡大させる可能性がある.本研究では,Fe<sub>70</sub>Co<sub>30</sub> 合金に AI を 5 at.%添加した(Fe<sub>0.7</sub>Co<sub>0.3</sub>)95Al5単結晶薄膜の形 成を試み,構造と磁気・磁歪特性を調べた.

**実験方法** 製膜には超高真空 RF マグネトロン・スパ ッタリング装置を用いた. 600 ℃ の MgO(001)単結晶 基板上に 10 nm 厚の VN(001)単結晶下地層, 10 nm 厚 の(Fe<sub>0.7</sub>Co<sub>0.3</sub>)<sub>95</sub>Al<sub>5</sub>シード層を形成し,その後,室温(RT) から 600 ℃ の一定温度で 90 nm 厚の(Fe<sub>0.7</sub>Co<sub>0.3</sub>)<sub>95</sub>Al<sub>5</sub>膜 を形成した.構造評価には RHEED, XRD, EDS, AFM, 磁気・磁歪特性測定には VSM, 片持ち法を用いた.

**実験結果** いずれの基板温度においても,エピタキシャル単結晶膜が得られた. Fig. 1(a)および(b)に, RT および 600 ℃ で形成した膜の RHEED パターンを例として示す. この温度範囲で形成した膜はいずれも同様な



**Fig. 1** (a, b) RHEED patterns and (e, f) out-of-plane XRD patterns of  $(Fe_{0.7}Co_{0.3})_{95}Al_5$  films formed at (a, e) RT and (b, f) 600 °C. (c, d) Schematic diagrams of RHEED patterns simulated for (001) single-crystal surfaces with bcc-based (c) disordered A2 and (d) ordered B2 structures.

回折パターンが観察されており, A2 不規則相もしくは B2 規則相の bcc(001)単結 晶表面に対応している. エピタキシャル方位関係は, (Fe<sub>0.7</sub>Co<sub>0.3</sub>)95Al<sub>5</sub>(001)[110]bcc || VN(001)[100]である. A2 と B2 相の違いは, Fig. 1(c)および(d)に示す RHEED パタ ーンの模式図において, 003 などの超格子反射の有無であるが, Fe と Co の原子 散乱因子の差は小さく, また, ストリーク状の回折パターンとなっているため, RHEED では検出できていない可能性がある. 低温の RT および高温の 600 °C の基 板温度で形成した膜の面外 XRD パターンを Fig. 1(e)および(f)にそれぞれ示す. い ずれの膜に対しても Fe-Co-Al(002)基本反射が観察されている. 一方で, 600 °C で 形成した膜では, Fe-Co-Al(001)超格子反射が見られ, A2 相に B2 相が混在してい ることが分かる. 以上の結果より, Fe<sub>70</sub>Co<sub>30</sub>の組成においても. Al を 5 at. %添加 し, 高基板温度で形成することにより, B2 相への規則化を促進できることが分か った. 磁化曲線を Fig. 2 に示す. 形成温度の違いにより磁気異方性も変化してい ることが見て取れる. 当日は, 規則度と磁歪を含む各物性の関係について詳細に 議論する.





- 1) H. M. A. Urquhart, et al.: DTIC Tech. Rep., no. AD0018771 (1953).
- 2) R. C. Hall: J. Appl. Phys., 30, 816 (1959).
- 3) D. Hunter, et al.: Nat. Commun., 2, 518 (2011).
- 4) Y. Han, H. Wang, T. Zhang, Y. He, J. M. D. Coey, and C. Jiang: J. Alloys Compd., 699, 200 (2017).
- 5) Y. Nakamura, M. Ohtake, T. Kawai, M. Futamoto, F. Kirino, and N. Inaba: J. Magn. Soc. Jpn., 45, 136 (2021).

# 組成比の異なる GdFe 薄膜における異常ホール効果の温度依存性

宋 嘉浩<sup>1</sup>, 笠谷雄一<sup>2</sup>, 吉川大貴<sup>2</sup>, 塚本新<sup>2</sup>

(1日本大学大学院理工学研究科,2日本大学理工学部)

Temperature dependence of anomalous Hall effect in GdFe thin films with different composition ratios

Yoshihiro Sou<sup>1</sup>, Yuichi Kasatani<sup>2</sup>, Hiroki Yoshikawa<sup>2</sup>, Arata Tsukamoto<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Graduate School of Science and Technology, Nihon Univ.,

<sup>2</sup>College of Science and Technology, Nihon Univ)

**はじめに** GdFe に代表される希土類遷移金属合金フェリ磁性体は全光型磁化反転現象(AOS)などのスピント ロニクスの高速動作領域への発展に向けた報告にかかわる基礎検討が多く実施されている<sup>[1]</sup>. 特に, 異常ホー ル効果(AHE)は微細高速磁化検出機構への応用や電気伝導・磁気構造の特徴の理解のために注目されている. 一方で,希土類遷移金属合金フェリ磁性体における AHE では遷移金属磁気モーメントだけでなく希土類磁気 モーメントとの相関も示唆されており<sup>[2]</sup>,合金の示す AHE や伝導機構に与える各元素の役割等の詳細につい ては未だ明らかではない.本研究は主たる構成元素が Gd または Fe となる GdFe 合金薄膜試料を用いて電流 磁気特性の温度依存性から異常ホール効果に対する各元素由来の電子系に基づく寄与を検討する.

<u>実験方法</u> スパッタリング法により作製した SiN (5 nm)/Gd<sub>20</sub>Fe<sub>80</sub> (20 nm)/SiN (5 nm)/Si sub. (試料 A), SiN (60 nm)/Gd<sub>70</sub>Fe<sub>30</sub> (20 nm)/SiN (5 nm)/Si sub. (試料 B) に対し, プローバーを用いた四端子計測によりホー ル電圧を評価した.真空度 3×10<sup>-5</sup> Pa 程度で,背景温度 100 K, 200 K, 300 K にて, 膜面内 y 方向に 0.1 mA の 直流電流を印加し,膜面垂直 z 方向に最大 24 kOe の外部磁場 H を印加したときの x 方向の異常ホール電圧

 $V_{\rm x}$ を計測した.また、同環境における縦抵抗率 $\rho_{\rm xx}$ も求めた.

**実験結果と考察** Fig.1 に 100 K における試料 A, B の  $V_x$  の 印加磁場依存性を示す. 測定範囲内の最大磁場における  $V_x$ をもとに各試料で温度毎に異常ホール抵抗率 $\rho_{AHE}$ を算出し, Fig.2 に示した.また, Fig.2 内の差し込み図に縦抵抗率 $\rho_{xx}$  の 温度依存性を示す. 低温において $\rho_{xx}$  は組成で大きく異なる 一方,  $\rho_{AHE}$  は同水準であった.また,背景温度の変化に対し  $\rho_{xx}$  の変化はいずれの組成においても小さかった.しかし,  $\rho_{AHE}$  は温度変化に対し組成により大きく異なった.

以上のことから,一般的には主として遷移金属元素に由来 するとされる希土類遷移金属合金系での異常ホール効果に 対し,希土類元素も同様に大きな寄与度を有すると考えられ る.

<u>謝辞</u>本研究の一部は, JSPS 科研費(21K04184)の支援を受け たものである.

### 参考文献

[1] Ryo Ando, Takashi Komine, Shiori Sato, Shingo Kaneta, and Yoshiaki Hara, AIP Adv. 8. 056316 (2018).

[2] Hirosige Hachisuka, Yuichi Kasatani, Hiroki Yoshikawa, Arata Tsukamoto, 第 42 回 日本磁気学会学術 講演会. 14aC-1 (2018).



Fig.2 Temperature dependence of  $\rho_{AHE}$ 

# MOD 法により作製した CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/LiNbO<sub>3</sub>積層膜の磁気―電気効果

米山 佳吾、神島 謙二、柿崎 浩一 (埼玉大学)

Magneto-electric effect of CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/LiNbO<sub>3</sub> laminated films prepared by metal organic decomposition

K. Yoneyama, K. Kamishima, K. Kakizaki

(Saitama Univ.)

### <u>はじめに</u>

強磁性と強誘電性を併せ持ち、磁場が電気分極を発現させる磁気-電気(ME)効果を示すものは、磁気センサや多値メモリへの応用が期待されている<sup>1)</sup>。本研究では強磁性体に CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>(CFO)を、強誘電体にLiNbO<sub>3</sub>(LNO)を選択し、MOD 法によりこれらの積層膜を作製し、ME 係数を評価した。その結果、LNO 層が不均一な膜となり、ME 効果が発現しない問題が生じた。この原因は LNO 層を塗布する際、溶液の粘度が高すぎることにあると考え、出発溶液の加水分解時間(*a*<sub>hyd</sub>)が異なるCFO/LNO 積層膜を作製し、それらの ME 効果を評価したので報告する。

### <u>実験方法</u>

試料は MOD 法で作製した。出発溶液は Li、Nb、Co、および Fe の有 機金属塗布材料(SYMETRIX)を用い、化学量論組成となるよう調製した。 CFO 溶液は大気中、24 時間攪拌した。一方、LNO 溶液は同様に 1~4 時 間攪拌した後、密封して更に 24 時間攪拌した。これらの溶液を FTO 電 極付きガラス基板上に CFO、LNO の順でスピンコートした。塗布後、 大気中 350℃で 30 分間溶媒を除去し、塗布と乾燥の工程を各層 3 回行 った。成膜後、CFO 層は大気中 640℃で 5 時間、LNO 層は 640℃で 3 時間熱処理を行い、試料を得た。各試料の最大 ME 係数は分極処理した 試料を用い、膜面垂直方向に直流磁場と交流磁場を印加し、誘起される 電圧をロックインアンプにより測定することで求めた。

### <u>結果および考察</u>

**Fig.**1 は加水分解時間が異なる LNO 溶液で作製した CFO/LNO 積層膜の X 線回折図を示す。すべての試料で目的とする CFO および LNO 相のみが生成した。

Fig. 2 はこれらの試料表面における Nb の分布を示す。*n*<sub>hyd</sub>=1 および 2 h.の試料では Nb 分布が均一であるのに対し、*n*<sub>hyd</sub>=2.5 および 3 h.の試料 では不均一となり、膜が不連続になった。これは加水分解時間の増加に 伴い溶液の粘度が急激に上昇し、ゲル化が不均一に進行したことが原因 と考えられる。

Fig. 3 は 4.08 kOe の直流磁場下における ME 係数を示す。加水分解時間の増加に伴い ME 係数は増大し、 $\tau_{hyd}=2$  h.の試料において最大値 46.5 mV/cm・Oe となった。これは加水分解時間の増加に伴い LNO 相の結晶 化が進行し、より大きな圧電効果を発現したためである。しかし、 $\tau_{hyd}=2.5$  および 3 h.の試料では、ME 係数が減少に転じた。これは LNO 膜が不連続になり、CFO 層からの応力伝達が不均一になり誘起電圧が得られなかったためであると考えられる。

### <u>参考文献</u>

1) T. Kimura, et al. : Nature, 426 (2003) 55.



Fig. 1 X-ray diffraction patterns of the CFO/LNO laminated films prepared by hydrolysis reaction of the LNO layer for  $\tau_{hyd}$ =1.0-3.0 h.



Fig. 2 EDX maps for Nb of the LNO films prepared by hydrolysis reaction for  $\tau_{hyd}$ =(a)1.0 h., (b)2.0 h., (c)2.5 h., and (d)3.0 h.



Fig. 3  $\tau_{hyd}$  dependence of the ME voltage coefficient of the CFO/LNO laminated films.

# 充填 β-Mn 構造カイラル磁性体における

## 磁気スキルミオンのトポロジカル量子物性

## Topological Quantum Properties of Magnetic Skyrmions in Filled β-Mn-type Chiral Magnet 強 博文、深澤 健留、羽尻 哲也、富樫 将孝、桑原 真人、伊藤 孝寛、浅野 秀文 名大院工

### B.W. Qiang, T. Fukasawa, T. Hajiri, M. Togashi, M. Kuwahara, T. Ito and H. Asano (Graduate School of Engineering, Nagoya Univ.)

【はじめに】実空間におけるスピンのトポロジカル構造である磁気スキルミオンは、実空間 でベリー位相を有することから、トポロジカルホール効果(THE)<sup>1,2</sup> やノンコリニア磁気抵抗 効果(NCMR)<sup>3</sup>などの特異なトポロジカル量子輸送を起こしうることが報告されてきている。 これまでに強磁性スキルミオンの一般的な検出手法として確立されているのはローレンツ透 過型電子顕微鏡(Lorentz-TEM)による実空間観察が挙げられる。一方で、トポロジカルスピン 構造を電気的な手法により検出する、THE と NCMR の重要性が高まってきている。そこで 本講演では、Lorentz-TEM から室温以上までスキルミオンが存在する<sup>4</sup>ことが示されている 充填  $\beta$ -Mn 型カイラル磁性体 Fe<sub>2-x</sub>Pd<sub>x</sub>Mo<sub>3</sub>N 薄膜におけるトポロジカル量子物性を調べた結果 について、Co<sub>2-x</sub>Pd<sub>x</sub>Mo<sub>3</sub>N 薄膜における系統研究の結果と合わせて報告する。

【実験及び結果】エピタキシャル薄膜 A<sub>2-x</sub>Pd<sub>x</sub>Mo<sub>3</sub>N (A = Fe, Co) はマグネトロンスパッタ法に より *c*-サファイヤ基板上に成長させた。Fig. 1 (a)に示すように、トポロジカルホール効果は スキルミオンの有効磁場による電子散乱に由来すると考えられている。Fe<sub>2-x</sub>Pd<sub>x</sub>Mo<sub>3</sub>N 薄膜 (*x* = 0.32) において 4 K で得たトポロジカルホール抵抗の結果から、ゼロ磁場近傍の強いピーク ( $\rho_{\text{TH}}^{\text{TH}}$  = 0.21  $\mu$ Ω·cm)が観測されることを見出した。この結果は、高密度のスキルミオン相 が低磁場領域に存在することを示している。Fig. 1 (c) にトポロジカルホール抵抗及び物質全 体の電子構造を反映した通常ホール定数 *R*<sub>0</sub> の温度依存性を示す。 $\rho_{\text{TH}}^{\text{TH}}$ が急激に減少し符号 が反転する 100 K 近傍において、*R*<sub>0</sub>が増大しピークが形成されることを見出した。この結果 は、100K 近傍における磁気相転移(スピンリオリエンテーション)の存在を示唆する。具体 的には、低温において巨大な正の有効磁場を持つ高密度スキルミオン相(Sk-I)から高温に おける若干弱い負の有効磁場を有するスキルミオン相(Sk-II)に電子構造の変化を伴って転移 することに起因するものと考えている。講演では、反強磁性 Co<sub>2-x</sub>Pd<sub>x</sub>Mo<sub>3</sub>N 薄膜におけるトポ ロジカル量子物性についても合わせて報告する予定である。

[1] P. Bruno, et al. Phys. Rev. Lett. **93**, 096806 (2004). [2] K. Nagasawa, et al., Phys. Rev. B **99**, 174425 (2019). [2] C. Hannelson, et al. Not. Neutrals, **10**, 1020 (2015). [4] P. W. Oieng, et al., Ann. Phys. Lett. **117**, 142401 (201





Figure 1 (a) A schematic illustration of topological Hall effect induced by magnetic skyrmion. (b) Magnetic field dependence of topological Hall resistivity, $\rho_{TH}$ , at 4 K of a Fe<sub>2-x</sub>Pd<sub>x</sub>Mo<sub>3</sub>N film with x = 0.32. (c) Temperature dependences of topological Hall resistivity, $\rho_{TH}$ , and normal Hall coefficient,  $R_0$ , of a Fe<sub>2-x</sub>Pd<sub>x</sub>Mo<sub>3</sub>N film with x = 0.32.

# (Bi,L)(Fe,Co)O<sub>3</sub>(L: ランタノイド) 強磁性・強誘電性薄膜における Biに対するランタノイド置換が飽和磁化・垂直磁気異方性・ 磁気 Kerr 回転角に及ぼす効果

Soumyaranjan Ratha, 鈴木陸, 鈴木悠太, 武田航太朗, 山本大地, 江川元太, <sup>〇</sup>吉村 哲 (秋田大)

Effect of Lanthanoids substitution against Bi on various magnetic properties of multiferroic (Bi,L)(Fe,Co)O3 (L: Lanthanoids) thin films

S. Ratha, R. Suzuki, Y. Suzuki, K. Takeda, D. Yamamoto, G. Egawa, <sup>O</sup>S. Yoshimura

(Akita Univ.)

はじめに 強磁性・強誘電材料は,電場(E)もしくは磁場(H)による磁化(M)および電気分極(P)の方向制御が可 能とされていることから、電界駆動型の低消費電力な次世代電子デバイス用材料として研究が活発化してき ている.高性能磁気デバイス用磁性材料薄膜には、大きな飽和磁化(Ms)、大きな垂直磁気異方性(Ku)(1より 十分に大きな, 垂直保磁力( $H_{e_{\perp}}$ )/面内保磁力( $H_{e_{\ell}}$ )および垂直角型比( $S_{\perp}$ )/面内角型比( $S_{\ell}$ )), 大きな磁気 Kerr 回転角(*θ*<sub>k</sub>)などの高い機能性が求められるが、現行の強磁性・強誘電材料薄膜のそれらの値は大きくなく、本 薄膜の使用により磁気デバイスの低消費電力化はできても高性能化は容易でない. 著者らは近年, (Bi<sub>1-x</sub>Ba<sub>x</sub>)FeO<sub>3</sub>(BBaFO) 薄膜, (Bi<sub>1-x</sub>La<sub>x</sub>)(Fe<sub>1-v</sub>Co<sub>v</sub>)O<sub>3</sub>(BLaFCO) 薄膜における置換元素量の最適化により, BBaFO 薄膜では 90 emu/cm<sup>3</sup>程度の M<sub>s</sub>, BLaFCO 薄膜では 75 emu/cm<sup>3</sup>程度の M<sub>s</sub>, 1 を超える H<sub>e</sub> // H<sub>e</sub> // および S<sub>1</sub> / S<sub>1</sub> / S<sub>1</sub> 大きなθ<sub>k</sub>,などが得られることを報告している.またこれらの薄膜を用いて,局所電界印加によりその部分 の磁化反転にも成功し、デバイス駆動の検証も行っている<sup>1,2)</sup>.しかしながら、真にデバイス実装を実現する ためには,更に磁気特性に優れた強磁性・強誘電薄膜を探索作製することが必要となる.これまでの検討から, Aサイトの置換元素とBサイトの置換元素の組み合わせにより、各元素単独での置換の場合とは全く異なる 磁気特性が得られることが判っている.よって本研究では,種々のランタノイド元素L(=La, Nd, Sm, Gd, Dy, Er)を置換元素に用いた(Bi,L)(Fe,Co)O3薄膜を作製し,優れた磁気特性を有する材料薄膜の探索を行った.

**方法** (Bi<sub>0.6-0.4</sub>L<sub>0.4-0.6</sub>)(Fe,Co)O<sub>3</sub>(L = La, Nd, Sm, Gd, Dy, Er) (BLFCO) 薄膜 (膜厚 200 nm) を,反応性パルス DC スパッタリング法(周波数:100-200 kHz,電力:150 W,デューティー比:2:1)を用いて,熱酸化膜付き Si 基板/Ta(5 nm)/Pt(100 nm)下地層上に成膜した. 積層膜は, Ta を室温, Pt を 400 ℃, BLFCO を 700 ℃, の基板 温度で成膜した.磁気測定は振動試料型磁力計(VSM)および磁気 Kerr 効果測定装置により評価を行った.

結果 Table.1 に,作製した BLFCO 薄膜の  $M_{s}$ ,  $H_{c\perp}$ ,  $H_{c\perp}/H_{c\prime\prime}$ ,  $S_{\perp}/S_{\prime\prime}$ ,  $\theta_{k}$ , をそれぞれ示す. 各置換元素 の原子番号、イオン半径の比(対 Bi)、Fe に対する Co 置換量、もあわせて示す. BLaFCO 薄膜について、Fe に対する Co 置換量が 25 at%程度において、いずれの磁気特性も最大値を示すことが判る. この結果をふま えて, BLFCO 薄膜における Fe に対する Co 置換量も 25 at%程度とした. BLFCO 薄膜において,一様に大き な M<sub>s</sub>が得られたが,その中でも特に Nd や Er で置換した薄膜において 140 emu/cm<sup>3</sup> 程度が得られた.そして, 一様に大きな  $H_{c_{\perp}}/H_{c_{\parallel}}$ が得られたが,その中でも特に Sm や Gd で置換した薄膜において, $S_{\perp}/S_{\parallel}$ も 1.0 以上

で明確に垂直磁気異方性が得られた. 更に、一様に大きなθ<sub>k</sub>が得られたが、 その中でも特に Dy で置換した薄膜に おいて 0.12°が得られた. Bi のランタ ノイドでの置換においては,格子内の イオンバランスは変化しない(いずれ も 3+) ことから、この置換が磁気特 性に直接影響を与えるのではなく, Fe に対して置換された Co の各種磁 性に対して,各ランタノイド元素が及 ぼす効果が異なるものと考えられる.

参考文献 1) S. Yoshimura et al., JJAP, 57, 0902B7 (2018) 2) M. Kuppan et al., Scientific Reports, 11, 11118 (2021)

| Table  | 1    | Magnetic      | properties  | of  | (Bi,L)(Fe,Co)O <sub>3</sub> -based | films | with | various |
|--------|------|---------------|-------------|-----|------------------------------------|-------|------|---------|
| Lantha | noic | ls substituti | ion against | Bi. |                                    |       |      |         |

| Substitution<br>element                                     | La |      |      |      |      | Nd   | Sm   | Gd   | Dy   | Er   | Bi   |    |
|---|----|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|----|
| Atomic number   | 57 |      |      |      |      |      | 60   | 62   | 64   | 66   | 68   | 83 |
| Ratio of lon radius   |    |      | 1.   | 11   |      |      | 1.09 | 1.07 | 1.06 | 1.04 | 1.04 | 1  |
| Co <sup>2+</sup> /<br>(Fe <sup>3+</sup> +Co <sup>2+</sup> ) | 0  | 0.05 | 0.12 | 0.17 | 0.28 | 0.31 | 0.25 | 0.25 | 0.24 | 0.27 | 0.24 |    |
| $M_{s}$ (emu/cm <sup>3</sup> )                              | 15 | 25   | 50   | 70   | 80   | 55   | 140  | 110  | 65   | 75   | 135  |    |
| <b>H</b> <sub>c⊥</sub> (kOe)                                | 0  | 0    | 2.8  | 3.1  | 2.6  | 2.7  | 2.1  | 1.9  | 2.2  | 2.7  | 1.9  |    |
| $H_{c\perp}/H_{c\prime\prime}$                              | 0  | 0    | 1.1  | 1.2  | 1.6  | 1.0  | 2.6  | 2.1  | 2.8  | 1.7  | 1.5  | l  |
| <b>s</b> _/ <b>s</b> _/                                     | 0  | 0    | 0.8  | 0.9  | 1.3  | 0.5  | 1.0  | 1.4  | 1.4  | 0.6  | 0.6  |    |
| <i>θ</i> <sub>k</sub> (°@800 nm)                            | 0  | 0    | 0.02 | 0.03 | 0.08 | 0.01 | 0.09 | 0.05 | 0.08 | 0.12 | 0.05 | _  |

# BiFeO3系強磁性・強誘電薄膜におけるレーザーアシスト加熱成膜・ 後アニールが飽和磁化・磁気 Kerr 回転角に及ぼす効果

○鈴木陸, 江川元太, 吉村 哲

(秋田大)

Effect of laser-assisted heating / annealing on various magnetic properties of multiferroic BiFeO3-based thin films

<sup>O</sup>R. Suzuki, G. Egawa, S. Yoshimura

(Akita Univ.)

**はじめに** 室温において反強磁性・強誘電性を有する BiFeO<sub>3</sub> において Bi<sup>3+</sup>や Fe<sup>3+</sup>を適切な価数を有する元 素で置換することで,強磁性が発現することが報告されている.我々は,反応性パルス DC スパッタリング 法を用いて 695 ℃で作製した(Bi,Ba)FeO<sub>3</sub>, (Bi,Nd)(Fe,Co)O<sub>3</sub> 薄膜において 90 emu/cm<sup>3</sup>, 140 emu/cm<sup>3</sup>程度の高 い飽和磁化(*M*<sub>s</sub>)が得られることを報告している<sup>1)</sup>.しかし,電界駆動型磁気デバイスへ応用するにはさらに高 い*M*<sub>s</sub>が求められる.BiFeO<sub>3</sub>系薄膜は,成膜後にアニール処理を行うことによる相形成の促進によって特性が 向上すること,薄膜作製時の基板加熱温度の上昇により結晶性が向上すること,が一般的に知られている. 本研究では(Bi,Ba)FeO<sub>3</sub>, (Bi,Nd)(Fe,Co)O<sub>3</sub>薄膜において,真空成膜装置に取り付けた例はあまり報告されてい ないレーザーアシスト加熱機構を新規に用い,その基板温度に及ぼす性能を評価し,それを用いて更に高温 での成膜および後アニールを行い,それぞれが構造と特性に与える効果の大きさについて検討した.

**方法** (Bi,Ba)FeO<sub>3</sub>, (Bi,Nd)(Fe,Co)O<sub>3</sub> (BBFO, BNFCO) 薄膜(200 nm)を反応性パルス DC スパッタリング法に よって成膜した. 熱酸化膜付き Si 基板上に Ta(5 nm)/Pt(100 nm)を下地層として成膜した. このとき Ta 層は DC 電源を用いて室温で, Pt 層は RF 電源を用いて 400 ℃で成膜した. BBFO, BNFCO 層は, 薄膜作製装置 に付属のランプヒーターを用いて 695 ℃で成膜(通常成膜), 695 ℃で成膜した後に酸素雰囲気中で 30 分間の 後アニール(後アニール成膜), ランプヒーターが ON の状態において更にレーザー光を照射するアシスト加 熱を行って成膜した後にそのまま酸素雰囲気中で 30 分間の後アニール(レーザー照射後アニール成膜), の各

手法を用いて作製した. Fig.1 にレーザーアシスト加熱機構を取り付け た超高真空スパッタリング装置の概略図を示す. Pt および BBFO, BNFCO 薄膜を成膜する際,結晶性の向上を図るため,VHF プラズマ を照射した.スパッタリングターゲットには,BBFO 層は Ba-Fe-O 粉 末,Fe 粉末を,BNFCO 層は Nd-Fe-O 粉末,Fe 粉末,Co 粉末を焼結 させて作製した導電性ターゲットにBi シートを配置したものを用い た.反応性パルスDC スパッタリング法におけるパルス条件として,

BBFO, BNFCO 薄膜は,周波数をそれぞれ 100 kHz, 200 kHz,電力は 150 W, ON:OFF 比は 3:2 とした.磁化曲線の測定には振動試料型磁力 計(VSM)を,磁気 Kerr 回転角の評価には磁気 Kerr 測定装置を用いた.

**結果** ランプヒーター加熱に加えてレーザーアシスト加熱(6 W)を併 用することで、基板温度を 695 ℃から 858 ℃へと増大させることが できた. Fig.2 に通常成膜(緑)、後アニール成膜(青)、レーザー照射後 アニール成膜(赤)、の各手法を用いて作製した BBFO 薄膜の M<sub>s</sub>におけ る Bi に対する Ba の置換量依存性および代表的な *M*-H 曲線を示す. Ba 置換量が 50~60 at%の薄膜において、通常成膜と比較して後アニ ール成膜では、M<sub>s</sub>は増加し、さらにレーザー照射後アニール成膜にお いて M<sub>s</sub>は 98 emu/cm<sup>3</sup>と増加し、これまでの BBFO 薄膜の中では最も 高い値が得られた. 薄膜の結晶性の向上や表面平坦性の改善によるも のと思われることから、大きな M<sub>s</sub>が得られたと考えられる. 当日の学 術講演会では、レーザー照射後アニール成膜が BNFCO 薄膜の磁気特 性に及ぼす効果、BiFeO<sub>3</sub>系薄膜の磁気 Kerr 回転角に与える影響につい ても述べる予定である.

参考文献 1) 吉村 他, 第 45 回日本磁気学会学術講演会, 31aB-5



Fig.1 Schematic diagram of ultra-high vacuum sputtering equipment with laser assisted heating system.



Fig.2 Dependence of Saturation magnetization of BBFO thin films on amount of Ba substitution against Bi. Typical *M*-*H* curves are also shown in figure.

# Perpendicular magnetic anisotropy of an interface of Fe/NiO investigated by polar magneto-optic Kerr effect

S. Jung<sup>1</sup>, A. Hidaka<sup>1</sup>, and H. Yanagihara<sup>1</sup>

1. Department of Applied Physics, University of Tsukuba, Tsukuba 305-8573, Japan

The voltage controlled magnetic anisotropy (VCMA) is of great interest in that its properties can lead to useful low energy consuming, high speed spintronics devices. According to Maruyama *et al.*, the VCMA property and perpendicular magnetic anisotropy (PMA) were found at the interface of ultrathin Fe and MgO<sup>1</sup>). However, the change in its VCMA is not enough to be utilized for devices as it is. Inspired by the result, Kobayashi *et al.* recently found that the interface of ultrathin Fe and NiO shows PMA which is measured by VSM<sup>2</sup>). They also evaluated the thickness dependency of the interface with AHE measurements, from which the interfacial magnetic anisotropy energy of 1.07 mJ/m<sup>2</sup> was derived. As it is hard to investigate VCMA properties with conventional magnetization measurement, a suitable method should be considered. In this research, the magnetic properties of the interface investigated by polar magneto-optic Kerr effect (PMOKE) are presented.

For the measurement, a Cr (2)/Fe (0-3)/NiO (10) thin film was prepared with reactive RF magnetron sputtering method grown on MgO (001) substrate. A NiO layer was grown at 500°C, while Fe and Cr layers were grown at room temperature. The thickness gradient with a range of 0 to 3nm was applied to the Fe layer. The Cr layer was used as a cap layer. After the fabrication, the sample was annealed at 450°C for 1 hour. The crystal structure and saturation magnetization of the film were investigated by an x-ray diffractometer (XRD) and VSM measurement, respectively. The magnetic properties at the interface were investigated using PMOKE. From the analysis, the evaluated interfacial magnetic anisotropy energy was 0.93 mJ/m<sup>2</sup>.

In order to study the VCMA effect of the Fe/NiO interface, a thin film of conductive spinal oxide  $CoV_2O_4$  was inserted as a bottom electrode between the NiO and MgO substrate, which makes it possible to apply voltage to the interface of Fe/NiO layer. The insertion of the electrode layer did not greatly affect the interfacial magnetic anisotropy energy of the interface.

### References

- 1) T. Maruyama et al., Nat. Nanotechnol 4, 158 (2009)
- 2) S. Kobayashi et al., 16p-Z19-7, JSAP Spring Meeting (2021).





Fig 1. Normalized Kerr signal which is derived from two sites on a wedged Fe layer with thickness of 0.8 and 1.6 nm grown on NiO, for applied magnetic fields.



# Co/Ru/Co人工フェリ磁性体の磁化過程

久田優一、小森祥央、井村敬一郎、谷山智康 (名古屋大学)

## Magnetization process of Co/Ru/Co Synthetic Ferrimagnets Yuichi Hisada, Sachio Komori, Keiichiro Imura, and Tomoyasu Taniyama (Department of Physics, Nagoya University, Japan)

### <u>はじめに</u>

反強磁性結合において、磁気モーメントが打ち消しあわず、有限の値を示すフェリ磁性体は、強磁性体の ように容易に磁場に応答し、かつ反強磁性体のような高速な磁場応答を示す[1,2]ため、近年研究が盛んに行 われている。その中でも、本研究では、強磁性体/非磁性体/強磁性体構造から実現される人工フェリ磁性体に 着目した。この構造では、非磁性層を介し、二つの強磁性層がフェリ磁性のように結合されることが知られ ているが、その磁化過程については十分な研究がなされていない。今回我々は、人工フェリ磁性体の磁化過 程において特異な現象を見出したので、報告する。

### <u>実験方法</u>

**RF**マグネトロンスパッタリングを用いて、(011)配向の Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub> (PMN-PT) 基板上に、人工 フェリ磁性体 Nb(3 nm)/Co (3 nm)/Ru(*d*<sub>Ru</sub>)/Co (3 nm)/Nb(5 nm)を成膜し、磁気特性を磁気光学 Kerr 効果及び振 動試料型磁力計によって測定した。

### <u>実験結果</u>

Fig. 1 に、Nb(3 nm)/Co (3 nm)/Ru( $d_{Ru}$ )/Co (3 nm)/Nb(5 nm)人工フェリ磁性体における飽和磁場の Ru 膜厚依存 性を示す。 $d_{Ru} = 0.5$  nm 付近において、飽和磁場の値が極大となり、Ru を介した二つの Co 間の反強磁性結合 が強くなることが確認された。 $d_{Ru} = 0.5$  nm の試料の磁化曲線を Fig. 2 に示す。ゼロ磁場付近では、フェリ磁 性特有の強磁性成分が確認された。また、500 Oe 付近において、反強磁性体と類似したスピンフロップのよ うな磁化過程が確認された。この現象については現在調査中である。講演当日には、フェリ磁性体の磁気異 方性や、さらには電界効果についても報告をする。

- [1] K. J. Kim *et al.*, Nat. Mater. **16**, 1187 (2017)
- [2] L. Caretta et al., Nat. Nanotechnol. 13, 1154 (2018)









# FeCo-SiN ナノグラニュラー薄膜の磁気光学ヒステリシスの解析

# 池田 賢司,小林 伸聖,荒井 賢一 (公益財団法人 電磁材料研究所) Magneto-optical hysteresis analysis in FeCo-SiN nanogranular films Kenji Ikeda, Nobukiyo Kobayashi, Ken-Ichi Arai

### (Research Institute for Electromagnetic Material, DENJIKEN)

### <u>はじめに</u>

ナノグラニュラー薄膜は、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ラー膜が光透過性を示 し<sup>1)</sup>、巨大なファラデー効果を示すことを見出した<sup>2)</sup>。ナノグラニュ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<sup>2)</sup>。 ナノグラニュラー構造では、ナノ磁性粒子に起因する超常磁性を示すことが多いが、強磁性としてファラデ ーヒステリシスを形成することが可能となれば、磁界が印加されていない状態であっても磁気光学効果を発 現することが期待される。本研究では、磁気光学ヒステリシスを有するナノグラニュラー薄膜の作製を目的 として、SiN をマトリックスとしたナノグラニュラー薄膜を解析した。本報告では、FeCo-SiN ナノグラニュ ラー膜の、ファラデーループの解析結果について報告する。

### <u>実験方法</u>

ナノグラニュラー薄膜の成膜には、シリコンナイトライドターゲット上に Fe<sub>60</sub>Co<sub>40</sub> 合金チップを配置した 複合ターゲットを用い、Ar+N<sub>2</sub>の混合ガス雰囲気において作製した。成膜は 400℃の加熱雰囲気で行い、膜 厚が約 800 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。

#### <u>実験結果</u>

スパッタ中の混合ガス雰囲気を変えて成膜した FeCo-SiN ナノグラニュラー薄膜の磁化曲線を Fig.1 に示す。 窒素ガス比率が高くなるに従い、超常磁性から強磁性に変化することが確認される。Fig.2 に N2 雰囲気で作 製した薄膜のファラデー回転角ループ(1310 nm)を示す。明瞭なファラデー回転ヒステリシスを示すことが確 認される。10 kOe 印加時の Faraday 回転角が 1.9 deg./µm であるのに対し、ゼロ磁界での回転角は 0.8 deg./µ m であり、磁界の印加がない状態であっても高い Faraday 回転角を示すことが分かる。今回の結果は、スパッ タ時のガス雰囲気を変えることにより FeCo 粒子の磁気異方性が変化したことが影響していると推測できる。

### <u>謝辞</u>

本研究はJST<sup>-</sup>CREST、

- JPMJCR19T1 および JSPS 科研費
- 20K03843, 20H02468, 19K21959 Ø

助成を受けたものです。

### <u>Reference</u>

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 Magnetization hysteresis curves of FeCo-SiN films.

Fig.2 Faraday hysteresis loop of FeCo-SiN film.

# Co-SiO<sub>2</sub>グラニュラー薄膜の光学および磁気光学特性

# 舩木佑也,北原旭,橋本良介\*,内田裕久 (豊橋技科大,\*鈴鹿高専) Optical and magnetooptical properties of Co-SiO<sub>2</sub> granular thin films Yuya Funaki, Akira Kitahara, Ryosuke Hashimoto, Hironaga Uchida (Toyohashi University of Technology, \*NIT. Suzuka College)

### <u>はじめに</u>

新しい磁気光学(Magneto-optical: MO)材料として磁気光学グラニュラー薄膜が注目されている.この材料は,誘電体媒体中に強磁性粒子が分散したグラニュラー構造を持ち,近赤外波長域で高い光透過率と大きなMO効果が発現することが報告されている<sup>1)</sup>.我々は,このグラニュラー薄膜について,高い透過率や大きなファラデー回転角を得るために誘電体や強磁性材料の種類や組み合わせ,作製方法の検討を行ってきた<sup>2)</sup>.先行研究では,Co-SiO<sub>2</sub>磁気光学グラニュラー薄膜で基板加熱無しで作製した試料で,波長900 nm 近傍で光透過率25%,ファラデー回転角 -1.6 deg./µm の試料を作製することができた<sup>3)</sup>.本研究では,この試料を用いて,光学および磁気光学測定を行い,その機構について考察を進める.

### 実験結果および考察

Co-SiO<sub>2</sub>磁気光学グラニュラー薄膜は, RF マグネトロンスパッタ法 で室温(厚さ 330 nm, Co 41 atom%) および 200°C(厚さ 280 nm, Co 39 atom%)で加熱して作製した. Fig. 1 に,室温と 200°Cで加熱して製膜し た Co-SiO<sub>2</sub>磁気光学グラニュラー薄膜の透過率スペクトル(UV-3150, Shimadzu)を示す. 200°Cで成膜したグラニュラー薄膜のこの実験では, 薄膜中の Co の割合は同程度であったが, 200°Cで加熱製膜した場合の透 過率は低下してしまった. さらに高い温度である 400°Cと 600°Cで加熱 成膜した場合でも同様に透過率は低下した.

エリプソメータ(RC2-DI, J.A. Woollam)によって導出した室温と 200℃で成膜した薄膜の屈折率 n と消衰係数 κを Fig. 2 に示す. 600nm 以下の波長では光の透過はほとんどなくなるが,これは大きな消衰係数 によるものである. 600 nm 以上で室温成膜した薄膜の透過率が大きいの は,室温成膜した試料の消衰係数がより小さいことに起因するものであ る.

磁気光学効果測定装置(J-1700FK,日本分光)によって室温で作成し たグラニュラー薄膜のファラデー楕円率角スペクトルを測定し,さらに クラマース・クローニッヒの式を用いて,ファラデー楕円率角を求めた. それらのスペクトルを Fig.3 に示す.ファラデー回転角は400~600nm では正の方向に回転し,800 nm 以上では負の方向に回転するのが,この 試料の大きな特徴であり,赤外光域での利用の可能性がある.ファラデ 一楕円率角のスペクトルは回転角の変化に対応したものになる.今後, このグラニュラー薄膜の誘電率テンソルを求め,シミュレーションなど により解析を進める.

### 参考文献

- 1) N. Kobayashi et al., Scientific Reports 8, 4978 (2018).
- 2) 西本光佑 他, マグネティックス研究会資料, MAG-19-227, 35-29 (2019).
- 3) 北原旭 他, 第44回日本磁気学会学術講演概要集, 17pB-4, 207 (2020).



Fig. 1 Transmissivity spectra for films deposited at room temperature and 200°C



Fig. 2 Refractive index and extinction coefficient spectra



angle and faraday ellipticity angle

# 反強磁性結合を有する CoPt/Ru 積層膜における表面プラズモン共鳴

山根治起、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)

# Magneto-optical surface plasmons on CoPt/Ru stacked films with antiferromagnetic coupling H. Yamane, M. Kobayashi\*, Y. Yasukawa\*

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

### <u>はじめに</u>

大きな磁気光学応答は、光アイソレータや光検知式バイオ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、*hcp*(001)-Co<sub>80</sub>Pt<sub>20</sub>垂直磁化膜にナノ構造を付与することで、プラズモン共鳴や光 学干渉による磁気光学効果の増強/変調、ならびに、化学センサへの応用について検討を進めている[1],[2]。 本研究では、反強磁性結合を有する[CoPt/Ru/CoPt]垂直磁化積層膜において、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。

### <u>実験方法</u>

試料の膜構造は、Fig. 1 に示すように、  $[Al_2O_3(5 \text{ nm})/CoPt(4.8 \text{ nm})/Al-ZnO(30 \text{ nm})]/ガラス基板とし、Ru$ 中間層の厚さを変えることで CoPt 層間の磁気結合を制御した。試料の作製にはマグネトロンスパッタ装置を用い、垂直磁気特 $性の向上を図るために Al-ZnO 下地層、および、Al_2O<sub>3</sub> 表面保$ 護層を形成した。直角プリズムと光学結合させた全反射光学系にて、表面プラズモンを励起した。基板裏面側から、p 偏光(半 $導体レーザ: <math>\lambda = 658 \text{ nm}$ )を照射した状態で、膜面垂直方向に磁 場を印加する極 Kerr 配置にて磁気光学効果の測定を行った。

### <u>実験結果</u>

[CoPt/Ru/CoPt]積層膜では、Ru 中間層を介して CoPt 層間に 働く RKKY 的な交換相互作用によって磁化の反平行配列状態 が実現される。Fig.2に、通常の極Kerr装置にて測定したマイ ナーループのシフト磁界(交換結合磁界: HEX)のRu層厚依存性 を示す。Ru 層厚: 0.26~1.0 nm の範囲で、反強磁性結合(AFC) が実現されているのが分かる。次に、Fig.1で示した全反射光 学系において、AFC-CoPt 積層膜の反射光強度および偏光状態 の磁場依存性を測定した。その結果、表面プラズモンの共鳴条 件では、大きな磁気 Kerr 効果(偏光角: 0k = 74.5 度)とともに、 反射光強度も磁場印加によって大きく変化することが確認さ れた。Fig.3は、Ru 層厚が 0.77 nm の試料の結果であり、CoPt 層の磁化配列(平行/反平行)に依存して、反射光強度が大きく 異なることが分かる。本現象は、偏光度に依存する表面プラズ モン共鳴に起因した光学吸収の違いによって説明できる。飽和 磁化状態では、反射光は主にs偏光成分で構成されるのに対し て、反平行配列では疑似的な非磁性状態となり、磁気光学効果 が消失してs偏光成分は生じないために反射光強度が減少する。 本研究は、科研費(20K05375)の助成を受けて実施した。

### <u>参考文献</u>

H. Yamane *et al*, J. Appl. Phys. **124**, 083901 (2018)
H. Yamane, Jpn. J. Appl. Phys. **60**, SCCG01 (2021)



Fig. 1 Schematic illustration of AFC-CoPt magneto-plasmonic system.



Fig. 2 Dependence of exchange coupling field on Ru thickness for AFC-CoPt films.



Fig. 3 Change in reflective intensity of AFC-CoPt by magnetic applied field.

# 透磁率時間変調メタマテリアルを用いたマイクロ波の周波数変換

児玉俊之<sup>1</sup>、黒澤裕之<sup>2</sup>、大野誠吾<sup>3</sup>、菊池伸明<sup>4</sup>、畑山正寿<sup>4</sup>、岡本聡<sup>4,5</sup>、冨田知志<sup>1,3</sup> (<sup>1</sup>東北大高教機構、<sup>2</sup>京都工繊大電子、<sup>3</sup>東北大院理、<sup>4</sup>東北大多元研、<sup>5</sup>東北大 CSIS)

Microwave Frequency Conversion Using Time-Varying Permeability Metamaterials

Toshiyuki Kodama<sup>1</sup>, Hiroyuki Kurosawa<sup>2</sup>, Seigo Ohno<sup>3</sup>, Nobuaki Kikuchi<sup>4</sup>, Masatoshi Hatayama<sup>4</sup>, Satoshi Okamoto<sup>4</sup>, Satoshi Tomita<sup>1,3</sup>

(<sup>1</sup>IEHE, Tohoku Univ., <sup>2</sup>Kyoto Inst. Tech., <sup>3</sup>Dept. of Physics, Tohoku Univ., <sup>4</sup>IMRAM, Tohoku Univ., CSIS, Tohoku Univ.)

### <u>はじめに</u>

第6世代移動通信システムの社会展開のためにはミリ波やテラヘルツ(THz)光の小型でチューナブルな THz光源が必要不可欠である。透磁率が時間領域で変化する媒質を通過した電磁波は、周波数に変調を受け ると期待される。そこで我々は透磁率を変調させる時間変調メタマテリアルを用いて、マイクロ波の周波数 を変換し、ミリ波やTHz波を得ることを目指している<sup>1)</sup>。本報告では数値シミュレーションの結果を示す。

### <u>シミュレーション条件</u>

電磁場計算には COMSOL Multiphysics と RF モジュールを用いる。長方形の 2 次元モデルで、長手方向に 空気層、透磁率時間変調メタマテリアル(MM)を想定した媒質、空気層と 3 つの層を構成する。平面波が片方 の空気の層から入射され、透磁率時間変調 MM を通過し、他方の空気の層へと伝搬する。短手方向の幅は 2.5 mm である。空気の層の厚さは入射するマイクロ波の波長の 4 分の 1 である。マイクロ波の電場は短手方向 に偏光させる。マイクロ波が入射または出射する空気の層と外部との境界は散乱境界条件を与える。短手方 向の外部との境界面は周期境界条件を与える。透磁率時間変調 MM を想定した媒質の比透磁率を $\mu_r = 1 + A_0\{1 - \cos(2\pi f_{mod} \times t)\}$ として与える。ここで $f_{mod}$ は変調周波数であり、変数tは時間である。透磁率時間変調 MM を通過して空気層から出射するマイクロ波の電場強度を計算した。時間波形を得るためにマイクロ波の入射時刻を 0 として 80 nsec までの計算を実施した。

### <u>結果と考察</u>

図1に計算結果の一例を示す。入射するマイクロ波の周波数は10 GHz とした。比透磁率の振幅A<sub>0</sub>は100 とした。変調周波数f<sub>mod</sub>は2 GHz とした。透磁率時間変調 MM の厚さは0.1 mm とした。挿入図は時間波形である。これをフーリエ変換して得られた周波数スペクトルを示している。周波数分解能は約0.01 GHz である。入射波と等しい周波数10 GHz のマイクロ波の信号強度が最も大きい。一方で10 GHz の高周波側と低周波側にも信号が得られている。これらの信号は10 GHz から離れるにつれて強度が低下していることが分かる。またこれらの信号は周期的に現れており、周期間隔は2 GHz である。これは透磁率の変調周波数とよく一致し

ている。この結果は、透磁率時間変調 MM に よりマイクロ波の周波数変換が生じている ことを示している。発表では実験結果も紹介 する。

### <u>謝辞</u>

金森義明博士との有益な議論に感謝しま す。本研究は JST-CREST (JPMJCR2102) に よって支援されています。

### 参考文献

 菊池伸明 他,第69回応用物理学会春 季学術講演会,22p-P01-7



**Fig. 1** : Frequency-domain spectrum of transmitted microwave through a time-varying permeability medium. (Inset: Time-domain waveform)

# ディスク状微細加工磁性ドットアレイによる高周波電磁波吸収材特性

彭牧天<sup>1</sup>、大沼智幸<sup>1</sup>、畑山正寿<sup>1</sup>、菊池伸明<sup>1</sup>、田丸慎吾<sup>2</sup>、岡本聡<sup>1,3</sup> (1 東北大多元研、<sup>2</sup>産総研、<sup>3</sup>東北大 CSIS)

High-frequency electromagnetic wave absorption in micropatterned magnetic disk array M.Peng<sup>1</sup>,T.Onuma<sup>1</sup>,M.Hatayama<sup>1</sup>,N.Kikuchi<sup>1</sup>,S.Tamaru<sup>2</sup>,S.Okamoto<sup>1,3</sup> (<sup>1</sup>IMRAM, Tohoku Univ.,<sup>2</sup>AIST,<sup>3</sup>CSIS, Tohoku Univ.)

### <u>はじめに</u>

第5世代移動通信方式(5G)の普及によって、より高速な通信が実現できる一方、高周波ノイズが課題となる。 ノイズ抑制シート(NSS)は電磁干渉問題の対策部品として用いられており、5G用途では電磁波吸収特性を従 来のUHF帯(300MHz ~3.0GHz)からSHF帯(3GHz – 30GHz)へ高周波化する必要がある。NSSは、扁平磁性 金属とポリマーの複合構造であり、その電磁波吸収特性は扁平磁性紛内部の磁気構造が渦状磁化状態(磁気 Vortex)となっており、特徴的なバイモダル型透磁率スペクトルが説明できることが分かった<sup>1)</sup>。本研究では、 磁気 Vortex モデルに基づく解析の検証を目的として、微細加工されたディスク状磁性ドットアレイを作製し、 その透磁率特性を評価した。

### <u>実験方法</u>

本研究では、電子線微細加工を用いて、カプトンフィルム上にディスク状 FeSi ドットアレイを作製した。FeSi ドットの直径は $D = 2 \sim 20 \ \mu m$  で、厚みは  $t = 200 \ nm$ , 400 nm とした。透磁率スペクトル はトランス結合型透磁率測定法(以下 TC-Perm)<sup>2)</sup>を用いた。 TC-Perm では外部磁場印加中の透磁率測定が可能であり、ここで は $\mu_0 H_{dc} = 0 \sim 200 \ nm$  を印加した。周波数は 10 MHz ~ 40 GHz とし た。

### <u>実験結果</u>

Fig.1 に磁性ドットアレイ(t = 200 nm, D = 10 µm)の虚部透磁率ス ペクトルを示す。これまでの扁平磁粉を用いた NSS と同様にバイ モダル型透磁率スペクトル<sup>3</sup>となっており、磁気 Vortex 状態がそ の起源であることを改めて確認した。Fig.2 に磁性ドットアレイ (t = 200 nm)の高周波側ピーク  $f_{HR}$ 及び低周波ピーク周波数  $f_{LR}$  の直 径依存性を示した。磁気 Vortex 理論に基づいて計算される Gyrotropic mode<sup>4</sup>と Flux closure mode での計算結果をそれぞれ赤 線と青線で示した。 $f_{HR}$  と  $f_{LR}$  はドット径の減少に伴い高周波側に シフトしており、NSS の高周波対応は磁性紛の直径を下げるこ とが有効であることが示される。また  $f_{LR}$  は Gyrotropic mode の計 算値とほぼ一致しているが、 $f_{HR}$  は Flux closure mode よりも低い 値となっている。この違いはドット形状が理想的な円筒形状か らのズレなどが原因と考えており、今後詳細に検討する。

### <u>参考文献</u>

- 1) 五十嵐 利行、東北大学博士論文、2021
- 2) S. Tamaru, et al. IEEJ Trans. FM, Vol.141, No.5, 2021
- 3) J. Neige, et al. Appl. Phys. Lett., vol. 102, p. 242401, 2013.
- 4) B. A. Ivanov, C. E. Zaspel, J. Appl. Phys. 95, 7444 (2004)



Fig.1 Imaginary part of permeability of magnetic dot array



 $f_{\text{HR}}$  and  $f_{\text{LR}}$  of magnetic dot array

# 微粒子試料における異方性磁場の定量的評価手法の検討

窪田寬久、岸本幹雄、柳原英人 (筑波大学)

Study of quantitative evaluation methods for anisotropic magnetic field in magnetic particles

H.Kubota, M. Kishimoto, and H. Yanagihara

(Univ. of Tsukuba)

### はじめに

配向性の低い微粒子や粉末形態の磁性材料においては、一般的に磁気異方性 定数や異方性磁場の定量的な評価は困難である。従来から粉末試料や多結晶試 料の磁気異方性評価手法として磁気トルクの回転ヒステリシスを用いる方法[1] や高磁場での磁化曲線を用いる方法[2]が知られているが、これらの手法で得ら れる磁気異方性定数の比較や手法を適用できる条件などが系統的に十分整理さ れているとは言い難い。そこで本研究では、磁気異方性が既知の粉末材料につ いて、静磁場配向の度合いを変化させた試料を用意し、これら2つの手法によ り磁気異方性の解析を行い、評価方法の定量的な比較を試みた。

# 実験方法

磁性材料として、市販の針状  $\gamma$  -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 微粒子を用いた。共重合樹脂(ソル バイン TAO)と MIBK 溶媒を撹拌して作製した 20 wt%のバインダー溶液 10 g と  $\phi$  =5.0 mm のビーズ 60 g、  $\gamma$  -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を 1.0 g、ボールミルを用いて十分 時間撹拌して分散させた。試料をプラスチックフィルム上に薄く塗り、印 加する磁場や時間を調整して配向させた。調整した試料を振動試料型磁束計 (VSM)による磁化測定を行い、角型比( $M_r/M_s$ )を算出した。磁気異方性につい ては、磁気トルク測定を行い、各磁場で得られた回転ヒステリシスを用いる 手法と振動試料型磁力計等による磁化測定を行い、高磁場での飽和漸近則 (LAS)を用いる二つの手法で異方性磁場を見積もった。

### 実験結果

Fig.1 に各試料の磁化測定結果を示す。無配向試料(角型比 *M<sub>r</sub>/M<sub>s</sub>* = 0.5)に対し、印加する磁場や時間が増加すると角型比は増加し、最大で *M<sub>r</sub>/M<sub>s</sub>* = 0.79 を示した。形状磁気異方性が支配的であるとすると、針状 γ-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の異方性

を示した。形状磁気異方性が支配的であるとすると、針状  $\gamma$  -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の異方性 磁場は 2.5 kOe である。Fig.2 に回転ヒステリシス損失  $W_r$ の磁場変化を示す。ピークを越えた後の変曲点か ら直線的に  $W_r=0$  に外挿し、x 切片から異方性磁場  $H_A$ を決めた。各試料の角型比に関わらず  $H_A = 1.7$  kOe 程度であった。Fig.3 に試料と平行方向に磁場を印加して磁化測定した後に LAS を用いて解析した結果を示 す。x 軸が 1/ $H^3$ 、y 軸が dM/dHのグラフに磁気測定値をプロットして得られた一次式の切片と傾きから異方 性磁場を算出した。 $M_r/M_s = 0.5$ の場合、 $H_A = 4$  kOe であった。講演では Stoner-Wohlfarth model[3]の数値シミ ュレーションと実験の比較についても報告する。

- [1] H.Nishio, H.Humihiko, H.aguchi, and T.Takeishi: J.Jpn.Soc.Powder and Powder Metallurgy, 41,701(1994)
- [2] T. Kuno, S. Suzuki, K. Urushibata, K. Kobayashi, N. Sakuma, K. Yokota, M. Yano, A. Kato and A. Manabe: J. Jpn. Soc.Powder Powder Metallugy 63 (2016) 1053–1059.
- [3] Stoner, E. C. & Wohlfarth, E. P. A mechanism of magnetic hysteresis in heterogeneous alloys. Philos. Trans. R. Soc. Lond. Ser. A 240(826), 599–624 (1948)



Fig.1 VSM measurements for different  $M_r/M_s$ 





# XMCD を用いた Co フェライトの陽イオン欠陥の定量解析

<u>岡林潤</u>、田中雅章\*、森下雅也\*、柳原英人\*\*、壬生攻\* 東大理、\*名工大、\*\*筑波大

Quantitative analysis of cation defects in Co ferrites studied by XMCD

<u>J.Okabayashi</u>, M.A. Tanaka<sup>\*</sup>, M. Morishita<sup>\*</sup>, H. Yanagihara<sup>\*\*</sup>, and K. Mibu<sup>\*</sup> U. Tokyo, <sup>\*</sup>Nagoya Inst. Tech., <sup>\*\*</sup>U. Tsukuba

**はじめに** スピネル型フェライト CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (CFO)は、スピンフィルター、高周波デバイス、磁気弾性効果な どの応用から多くの研究が行われてきている。近年では、基板からの格子ひずみによる垂直磁気異方性(PMA) も報告されている[1]。CFO は、O<sub>h</sub>対称サイトの Co<sup>2+</sup>, Fe<sup>3+</sup>, Fe<sup>2+</sup>, T<sub>d</sub>対称サイトの Fe<sup>3+</sup>から構成される。これ らの構成比を調べるには、元素選択的かつサイト選択的な計測が必要となり、内殻励起を用いた X 線吸収分 光(XAS), X 線磁気円二色性(XMCD)が強力な手法となる。今回、XAS, XMCD から求まる Co と Fe の組成比、陽 イオンサイトの原子数の比、電荷中性条件を連立することによって、陽イオンサイトの欠損量を定量的に求 める方法を検討したので報告する。

<u>実験方法</u> 試料について、パルスレーザー堆積法にて MgO(001) 基板上に膜厚 13 nm の Co<sub>x</sub>Fe<sub>3-x</sub>O<sub>4+6</sub>(x=0.2, 0.6)を堆積した。x=0.2 では PMA を示し、x=0.6 では面内磁化容易軸を示す。表面には Cu を 1 nm 堆積した。 X 線回折から CFO の面内に引っ張りひずみが印加されていることも判っている[1]。Fe, Co L 吸収端の XAS, XMCD 測定について、高エネ研 Photon Factory BL-7A(東大理)にて、室温にて行った。

<u>結果と考察</u> XAS の強度比が Fe:Co=14:1 程度となり、x=0.2 と一致することを確かめた。Fe<sup>2+</sup>( $0_h$ ), Fe<sup>3+</sup>( $0_h$ ) の磁気モーメントが平行で、これらは Fe<sup>3+</sup>( $T_d$ )の磁気モーメントと反平行結合であることが図 1 の XMCD の符 号から明確に観測できる。サイト別の成分に分離するために、配位子場理論計算によるスペクトルの再現を 行った。Co<sup>2+</sup>( $0_h$ )は一成分から成り立つことがスペクトル形状から判った。PMA の起源は、Co の大きな軌道磁 気モーメントに起因することが判った[2]。

x=0.2 の場合の欠損量の評価のために、陽イオンサイト数、単位胞内の電荷中性、XMCD 強度について以下の4式が成り立つ。

 $14\text{Co}^{2+} = \text{Fe}^{2+} + \text{Fe}^{3+}(O_h, T_d)$ (1)

 $2\text{Co}^{2+} + 2\text{Fe}^{2+} + 3\text{Fe}^{3+}(O_h, T_d) = 8$ (2)

Fe<sup>3+</sup>( $T_d$ ): Fe<sup>3+</sup>( $O_h$ ): Fe<sup>2+</sup>( $O_h$ ) = 1:1.3:0.25 (3,4) パラメータはCo, Fe(3種)の陽イオン数の4つであり、 方程式の数はFe XMCDの強度比(2つ)を含めて4つ あり、連立方程式から各サイトを占める原子数が算出 される。酸素欠陥量はないものとする。その結果、カ チオン数の形式価数からのずれを陽イオン欠陥数とし て見積もれる。実際に陽イオン欠損数は0.185となり、 主にBサイト欠損によることが判った。Co組成の異な る場合でも試み、欠損量の組成依存性を捉える手法と して有用であることを実証している。この解析は、サ イト別にスピン軌道状態を観測できる内殻磁気分光に より初めて行えるものである。講演では、X線磁気線二 色性(XMLD)を用いた定量解析の詳細、モデルの妥当性 についても議論する。



Fig. 1, XAS and XMCD of  $Co_{0.2}Fe_{2.8}O_{4+\delta}$  film. (a) Fe *L* edge and (b) Co *L* edge. Dot curves in XMCD are the calculation using ligand-field theory. [2]

### 参考文献

[1] K. Naruse et al., J. Magn. Magn. Mater. 475, 721 (2019).

[2] J. Okabayashi et al., Phys. Rev. B 105, 134416 (2022).

# 強磁性共鳴測定による EuBi₂Fe₅-xGaxO12 薄膜の評価

朝野 航<sup>1</sup>、西 敬生<sup>2</sup>、大島大輝<sup>3</sup>、加藤剛志<sup>3</sup>、李 基鎮<sup>4</sup>、河原正美<sup>5</sup>、西川雅美<sup>1</sup>、石橋隆幸<sup>1</sup> (<sup>1</sup>長岡技科大、<sup>2</sup>神戸高専、<sup>3</sup>名古屋大学、<sup>4</sup>西江大学、<sup>5</sup>高純度化学)

Characterization of EuBi<sub>2</sub>Fe<sub>5-x</sub>Ga<sub>x</sub>O<sub>12</sub> thin films by Ferromagnetic Resonance Measurements

W. Asano<sup>1</sup>, T. Nishi<sup>2</sup>, D. Oshima<sup>3</sup>, T. Kato<sup>3</sup>, K. Lee<sup>4</sup>, M. Kawahara<sup>5</sup>, M. Nishikawa<sup>1</sup>, T. Ishibashi<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Nagaoka Univ. Tech., <sup>2</sup>Kobe City College Tech., <sup>3</sup>Nagoya Univ., <sup>4</sup>Sogang Univ., <sup>5</sup>Kojundo Chem.)

### 1. はじめに

我々はこれまでに、Nd<sub>0.5</sub>Bi<sub>2.5</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub>薄膜を開発し、磁気光学イメージングにおいて 6 GHz までの高周波に 応答することを確認した<sup>1)</sup>。高周波特性をさらに向上させるためには磁気回転比を増大させる必要がある。 我々は、角運動量補償組成付近で大きな磁気回転比が得られることに着目した。そして、希土類元素に Eu を選択することで、角運動量補償組成付近で面内磁気異方性を維持したまま、高周波特性の改善ができる可 能性があると予想した。そこで今回は、EuBi<sub>2</sub>Fe<sub>5-x</sub>Ga<sub>x</sub>O<sub>12</sub> (x=0, 0.5, 1, 1.5, 2)薄膜を作製し、強磁性共鳴(FMR) 測定により評価した結果について報告する。

### 2. 実験方法

EuBi<sub>2</sub>Fe<sub>5-x</sub>Ga<sub>x</sub>O<sub>12</sub> (x=0, 0.5, 1, 1.5, 2)薄膜は、MOD 溶液(BiFeEu(2/5/1), BiFeEuGa(2/3/1/2), 高純度化学研究所) を用いて各 Ga 置換量になるように調製した溶液を Gd<sub>3</sub>Ga<sub>5</sub>O<sub>12</sub> (GGG) (100)基板上に滴下、スピンコーターで 3000 rpm, 30 秒の条件で塗布した。その後、100°C のホットプレートで 10 分間乾燥させ、450°C のホットプ レートで 10 分間仮焼成を行った。この操作を 5 回繰り返した後、770°C のマッフル炉で 3 時間本焼成を行っ た。FMR 測定は、マイクロ波周波数 9.09 GHz、掃引磁場範囲 0 - 10 kOe、電力 5 mW、磁場印加角度β=0-180° (面直方向を 0°)として行った。

### 3. 結果および考察

Fig.1 に Ga 置換量=1 の FMR の磁場印加角度依存性の測定結果 を示す。共鳴磁場  $H_{res}$  は印加磁場を面直方向( $\beta$ = 0°)から面内方 向 ( $\beta$ = 90°)に変化させると 2.45 kOe から 1.70 kOe まで変化した。  $H_{res}$  は $\beta$ = 90°で最小値を示していることから、面内方向に磁化容 易軸を持つことがわかる。Fig.2 に $\beta$ = 0°での Ga 置換量と  $H_{res}$  お よび磁気回転比 $\gamma$ の関係を示す。 $H_{res}$ は Ga 置換量=0 - 0.5 で約 5 kOe を示したが Ga 置換量=1 - 1.5 で約 2.5 kOe と急激に下がった。 一方、 $\gamma$ は Ga 置換量=0 - 0.5 で約 15 MHz/Oe を示したが Ga 置換 量=1 - 1.5 で約 30 MHz/Oe と急激に増加した。この理由は、Ga 置換量が 1 付近に角運動量補償組成が存在しているためと考え られる。また、Ga 置換量 1 の $\gamma$ の値は、過去に報告された Nd<sub>0.5</sub>Bi<sub>2.5</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub>の $\beta$ = 0°での $\gamma$ <sup>1</sup>と比較すると約 1.3 倍大きい。詳 細は、当日報告する。

謝辞:本研究の一部は、JSPS 二国間交流事業(JPJSBP120208805) 名古屋大学未来材料・システム研究所共同研究の支援を受けて実施された。

### 参考文献

1) T. Ishibashi et al., J. Magn. Soc. Jpn., 44, 108 (2020)



Fig.1 FMR spectra of EuBi<sub>2</sub>Fe<sub>4</sub>Ga<sub>1</sub>O<sub>12</sub> thin films measured at  $\beta = 0 - 90^{\circ}$ .



Fig.2 Resonance magnetic fields of EuBi<sub>2</sub>Fe<sub>5-x</sub>Ga<sub>x</sub>O<sub>12</sub> thin films with Ga content of 0 - 2 measured at  $\beta = 0^{\circ}$ .