

# Advances in Magnetic Resonance Imaging: From Low-Field to High-Field and Back to Low-Field MRI

Yasuhiko Terada

(Faculty of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba)

MRI was first proposed by Lauterbur in 1973[1] as an imaging method based on NMR principles. Since then, MRI has undergone remarkable technological development as well as clinical applications using mainly whole-body devices. Since the signal-to-noise ratio (S/N ratio) of MRI signals increases with the static magnetic field (or proton resonance frequency), the technological trend has been toward higher magnetic fields. Magnetic field strengths for whole-body MRI started at 0.04T [2] in the early 1980s, followed over the years by 0.35T, 1.5T [3], and 4T, and now up to 10.5T devices [4] are available for research use (although 1.5T and 3T devices are still the mainstream for clinical use).

Although MRI has thus continued to move toward higher magnetic fields, there has been a recent revival of MRI for human use at low fields (<0.5 T), ultra-low fields (10-100 mT), and very low fields (<10 mT) [5-7]. While this interest stems primarily from the urgent need to reduce the cost of MRI and improve access in medically underserved populations and developing countries, new point-of-care imaging applications, advances in hyperpolarization that allow imaging at low fields with high SNR, air-tissue interface and Imaging applications that reduce artifacts due to air-tissue interfaces and metallic implants are also reasons for this.

This talk will focus primarily on the hardware aspects of the paradigm shift from the former low field to high field and again from high field to low field, especially the unique opportunities and challenges that exist at low field strengths.

## Reference

- 1) Lauterbur, PC. Image Formation by Local Induced Interactions: Examples Employing Nuclear Magnetic Resonance. *Nature* 1973;242,190-191.
- 2) Edelstein WA, Hutchison JMS, Johnson G, Redpath T. Spin Warp NMR Imaging and Applications to Human Whole-Body Imaging. *Phys Med Biol* 1980;25:751-756.
- 3) Hart HR, Bottomley PA, Edelstein WA, Karr SG, Leue WM, Mueller O, Redington RW, Schenck JF, Scott Smith L, Vatis D. Nuclear Magnetic Resonance Imaging: Contrast-to-Noise Ratio as a Function of Strength of Magnetic Field. *AJR* 1983;141: 1195-1201.
- 4) Nowogrodzki A. The world's strongest MRI machines are pushing human imaging to new limits. *Nature* 2018;563,24-26.
- 5) Sarracanie M, Selameh N. Low-field MRI: how low can we go? A fresh view on an old debate. *Frontier Physics* 2020;8,1-14.
- 6) Wald LL, McDaniel PC, Witzel T, Stockmann JP, Cooley CZ. Low-cost and portable MRI. *Journal of Magnetic Resonance Imaging* 2020;52:686-696.

# Measurement of Magnetic Resonance Signal without Prepolarization Technique at 1 mT

Daisuke Oyama  
(Kanazawa Institute of Technology)

## Introduction

Magnetic resonance imaging (MRI) in ultra-low magnetic field is one of expecting fields for new applications of MRI. We have been developed a compact ultra-low field MRI (ULF-MRI) systems composed of a desk size coil set. The measurement field in this system was several tens of micro-Tesla, therefore, a prepolarization pulse was used for increasing a signal intensity and controlling a direction of magnetic moments. However, using the prepolarization pulse results in increasing not only the signal intensity but also the recording time. In this study, we built and tested a new coil set for ULF-MRI system around 1 mT, aiming to realize the ULF-MRI system without the prepolarization technique.

## Coil set for ULF-MRI

Fig. 1 shows a coil set for the 1 mT MRI system. The measurement field ( $B_0$ ) coil was designed based on the Merritt coil<sup>2)</sup> to generate uniform magnetic field. A radio-frequency (RF) coil was placed inside the  $B_0$  coil. An induction coil to detect the magnetic resonance (MR) signal was placed at the center of the  $B_0$  and RF coils, and these three coils were perpendicular to each other. This coil set was installed inside a magnetically shielded room.

## Measurement of Magnetic Resonance Signal

Measurement of MR signal was demonstrated with a water sample. The density of  $B_0$  was set to approximately 1 mT by applying electric current of 1.72 A to the coil. Fig. 2 shows the observed MR signal obtained by a spin-echo sequence. The echo time (TE) and the repetition period (TR) were 34 ms and 4.6 s, respectively.

Fig. 2 shows the measured signal with and without the water sample. These waveforms were obtained by applying a band-pass filter (40-46 kHz) and averaging 500 times. The echo signal clearly appeared in the waveform with water sample. The frequency of the echo signal was 42.5 kHz and it was in good agreement with the Larmor frequency of hydrogen at 1 mT. It was confirmed that the MR signal can be measured using the developed coil set at 1 mT.

## Acknowledgements

This study was partly supported by KAKENHI (20K12680). This study partly includes some results of collaborative research with RICOH Co., Ltd.

## Reference

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

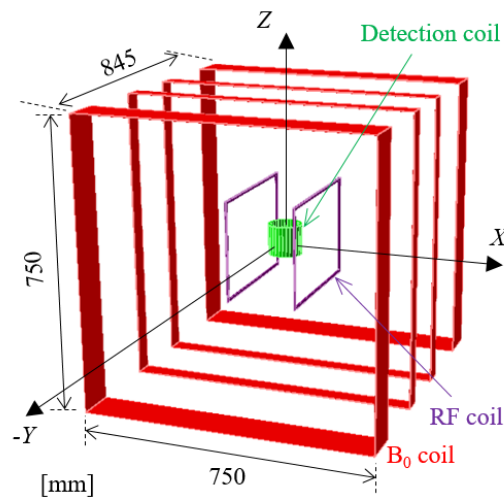


Fig. 1 Coil set for 1 mT MRI system.

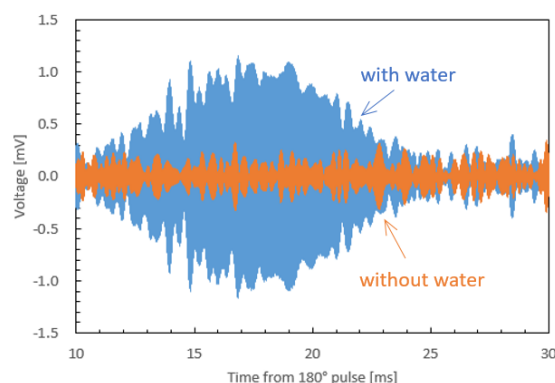


Fig. 2 Measured signals with and without a water sample.

## Ultra-low field MRI with an optically pumped magnetometer

T. Oida\*, S. Hori\*\*, T. Moriya\*, A. Saito\*, M. Suyama\*, T. Kobayashi\*\*

\*Hamamatsu Photonics K.K., Hirakuchi 5000, Hamakita-ku, Hamamatsu 434-8601, Japan

\*\*Kyoto University, Kyoto-daigaku Katsura, Nishikyo-ku, Kyoto 615-8510, Japan

In recent years, high-sensitivity magnetic field measurement using optically pumped magnetometers (OPMs) has attracted significant attention. Magnetic sensing with an OPM is performed by detecting electron spin precession in alkali metal vapors contained in a glass cell<sup>1)</sup>. In general, OPMs are utilized in spin-exchange relaxation-free (SERF) conditions to detect low-frequency magnetic signals. In contrast, a high-density OPM cells require a large bias magnetic field along the pumping laser beam to tune the resonance frequency of the OPM to several tens or hundreds of kilohertz. Studies have reported that high-density OPMs are extremely sensitive outside the SERF condition<sup>2), 3)</sup>. This high magnetic sensitivity of OPMs is suitable for MR signal detection in ultra-low-field magnetic resonance imaging (ULF-MRI). Consequently, an MR signal detector with an OPM and a flux transformer (FT) that serves to separate the magnetic condition between an MRI system and an OPM was reported by Savukov et al.<sup>3)</sup>. In this study, we demonstrate ULF-MRI with a detector using an OPM and an FT.

To confirm if an MR signal detector with an OPM and an FT is feasible for ULF-MRI, we constructed an MR system with static field ( $B_0$ ) of 7.05 mT, where the Larmor frequency of  $H_1$  was 300 kHz. Subsequently, a cylindrical bottle phantom that contained 1 mmol/L gadopentetate dimeglumine (Bayer AG., MAGNEVIST) solution, was placed in the MR system to evaluate MR imaging with an OPM and an FT. A glass cell, circular polarized pump beam (DBR laser, PH770DBR040BF, Photodigm, Inc), and linear polarized probe beam (CatEye laser, CEL002, MOG Laboratories Pty Ltd) comprised the OPM sensor system. A  $10 \times 10 \times 40$  mm<sup>3</sup> glass cell containing potassium with He as the buffer gas and  $N_2$  as the quenching gas was used as the sensor head. The He and  $N_2$  gases in the cell were in the ratio He: $N_2$  = 9:1 at a pressure of 0.9 atm. The experiments were conducted after heating the cell to 180 °C to vaporize the potassium atoms. The electromagnetic shield for the OPM was a single-layer aluminum shield with two EMS panels (EMSPLM05, Medical Aid). In addition, the input coil was a 50-turn solenoid coil with a diameter of 5.6 cm, and the output coil was a Helmholtz type coil with a diameter of 2.6 cm and 10 turns on either side. The impedance of each coil was adjusted to 50  $\Omega$  at a frequency of 300 kHz. MR imaging was performed without pre-polarization, using a spin-echo sequence with TR = 300 ms, TE = 30 ms, FoV =  $96 \times 96 \times 96$  mm<sup>3</sup>, matrix =  $32 \times 32 \times 32$ , and NEX = 16 for a total scan time of 1 h 22 min. Additionally, the frequency response model of the OPM described by Kamada et al.<sup>4)</sup> was used to correct the frequency responses of the OPM. Accordingly, sinusoidal fields of 290.00, 290.25, ..., 310.00 kHz were measured by the detector with an OPM and an FT.

However, the MR signals experienced distortions in the frequency domain owing to the narrow bandwidth of the OPM. Nevertheless, these distortions could be corrected using Kamada's frequency response model of the OPM. Furthermore, as a result of the 3D MR scan with a spatial resolution of  $3 \times 3 \times 3$  mm<sup>3</sup>, MR images with a signal-to-noise ratio (SNR) of approximately 18 were obtained. However, large noises with specific frequencies were scattered across the diagonal area of the image.

In this study, we demonstrated the feasibility of an MR signal detector with an OPM and an FT. During measurement, the OPM exhibited a sensitivity of 14.7 fT/Hz<sup>1/2</sup> at 300 kHz, which is the center frequency of the MR signals. However, the frequency response of the OPM distorts the frequency-encoded MR signals. An appropriate frequency response correction was applied to obtain flat frequency responses. In future, rapid imaging and higher SNR of MR signal detection are expected to be achieved by optimizing the OPM and FT and/or suppressing the noise caused by the MR system.

### Reference

- 1) D. Budker, and M. Romalis: *Nature Physics*, **3**(4), 227 (2007).
- 2) I.M. Savukov, S.J. Selzer, M.V. Romalis, K.L. Sauer: *Physical Review Letters*, **95**, 063004 (2005).
- 3) I.M. Savukov, V.S. Zotev, P.L. Volegov, M.A. Espy, A.N. Matlashov, J.J. Gomez, and R.H. Kraus Jr.: *J. Magn. Reson.*, **199**(2), 188 (2009).
- 4) K. Kamada, S. Taue, and T. Kobayashi: *Jpn. J. of Appl. Phys.*, **50**, 056602 (2011).

# Nano-NMR technique based on NV center in diamond

S. Onoda<sup>1</sup> and J. Isoya<sup>2</sup>

<sup>1</sup>National Institutes for Quantum Science and Technology, Takasaki 370-1292, Japan

<sup>2</sup>University of Tsukuba, Tsukuba 305-8573, Japan

Nuclear magnetic resonance (NMR) spectroscopy is a promising technique for chemical analysis and molecular structure identification. Since it depends on the weak magnetic fields produced by a small thermal nuclear spin polarization, NMR suffers from poor molecule-number sensitivity. To overcome the low sensitivity, in 2013, a novel NMR technique based on Nitrogen-Vacancy (NV) centers in diamond has been proposed<sup>1-2</sup>. The statistical nuclear spin polarization rather than thermal polarization has been utilized for nano-NMR of (nm)<sup>3</sup> samples. Compared to conventional NMR the number of nuclear spins required to generate a detectable signal is reduced by 12 orders of magnitude.

NV center is one of the numerous point defects in diamond. The most important features of the negatively charged NV centers is spin-state dependent photoluminescence at room temperature. A laboratory-built confocal microscopy (CFM) system is widely used to detect the photoluminescence from NV centers. A series of 532-nm laser excitation and microwave (MW) pulses are used for initialization, coherent manipulations, and readout of the electron spin-state of NV center. Fig. 1 (a) shows block diagram of CFM system for nano-NMR. Excitation laser (532 nm) and MW are pulsed by acousto-optic modulator (AOM) and MW switch. These are controlled by sequence/pulse generator. Pulsed laser is irradiated to diamond via an oil immersion objective lens (NA=1.3~1.4), and photoluminescence is detected by a single photon detector and fast counter after passing through a pinhole. Fig. 1 (b) shows the schematic draw of nano-NMR by NV center. The nuclear spins (<sup>1</sup>H) in immersion oil are detected.

A dynamical decoupling technique based on the XY8-k pulse sequence which acts as a high-pass filter, to filter out low frequency noise is widely utilized for nano-NMR (Fig. 1(c)). This suppression of the noise source prolonged the electron spin coherence time of the NV centers by an order of magnitude or more. In addition to the noise suppression, the pulse sequence serves as a narrow-bandpass filter, revealing Larmor precession of the transverse magnetization of external nuclei. Signals from these statistically polarized nuclei are detected if their precession period matches the cycle of the  $\pi$ -pulse train applied to the NV centers. Fig. 1 (d) shows typical NMR signals of <sup>1</sup>H in immersion oil at the various k from 8 to 24. The higher number of k, the sharper signals because of narrow-bandpass filter. In 2013, the resolution was a few hundred thousand ppm, however, it has improved down to less than 1 ppm in more recent years. In this talk, the current progress as well as the basis of nano-NMR based on NV center in diamond are presented.

The authors would like to thank the financial supports by JST-DFG “Strategic Japanese-German Joint Research Project (SICORP)” from 2010 to 2013, and JSPS KAKENHI Grant Numbers 26220903, 26246001 and 21H04646. Part of studies on creation of NV centers was supported by MEXT Quantum Leap Flagship Program (MEXT Q-LEAP) Grant Number JPMXS0118067395 and JST Moonshot R&D Grant Number JPMJMS2062. We thank Prof. Dr. F. Jelezko and his group members for their help in measuring nano-NMR at university of Ulm, Germany.

## References

- 1) T. Staudacher *et al.*, Science **339** (2013) 561., 2) H. J. Mamin *et al.*, Science **339** (2013) 557.

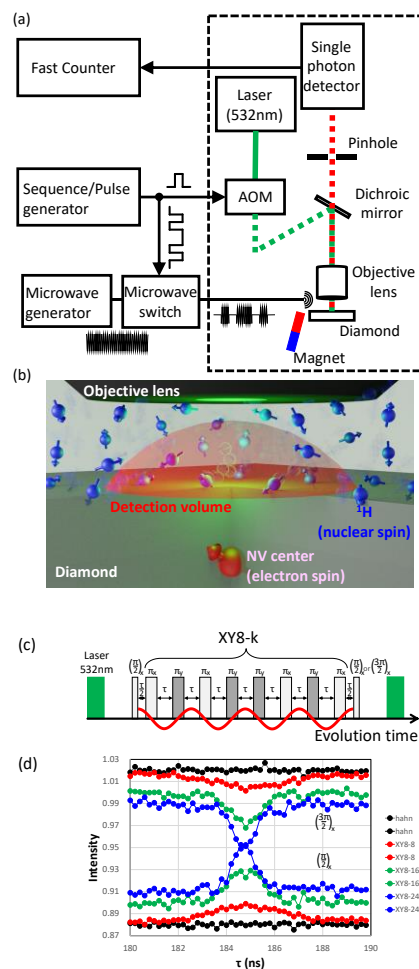


Fig. 1. (a) Block diagram of CFM system for nano-NMR, (b) schematic draw of <sup>1</sup>H nano-NMR, (c) XY8-k pulse sequence, and (d) typical <sup>1</sup>H-NMR signals at various k-values.

## Development of compact proton magnetometer using TMR sensor

Kosuke Fujiwara, Hiroshi Wagatsuma and Seiji Kumagai  
Spin Sensing Factory Corp.

The proton magnetometer operates as a magnetic sensor because the resonance frequency of NMR depends on the external magnetic field. Pulsed cutting of the magnetic field applied to a sample containing hydrogen ions causes magnetic relaxation of the protons, resulting in a free-induced decay (FID) signal. The magnitude of the magnetic field can be read by measuring the frequency of this FID signal. Since the proton magnetometer is based on the principle of frequency measurement, it is not easily affected by temperature, humidity, or individual differences in equipment, and can obtain measurement accuracy on the order of ppm. Due to their high measurement accuracy, proton magnetometers are used in fields such as subsurface and seafloor surveys and astrophysics.

A conventional proton magnetometer consists of a container of water or kerosene and a coil to apply a pulsed magnetic field and detect FID. It is difficult to miniaturize the conventional proton magnetometer because the FID signal decreases as the coil becomes smaller. In this study, we investigated the feasibility of a compact proton magnetometer by using tunnel magneto-resistance (TMR) sensor as the detection sensor of the FID signal. The TMR sensor is a highly sensitive magnetic sensor using magnetic tunnel junctions (MTJs), and its signal does not become smaller with miniaturization. In addition, the amount of water or kerosene as a signal source must be reduced in order to achieve a compact proton magnetometer. In this study, we verified the feasibility of a proton magnetometer when the volume of water is reduced to 1 cc.

The TMR sensor was deposited by a sputtering system and micro-fabricated by photo-lithography and argon ion milling. To improve the signal output of the TMR sensor, magnetic flux concentrators (MFCs) made of soft magnetic material was added. The size of the TMR sensor containing MFCs was  $10 \times 6.2 \text{ mm}^2$ . The output of the TMR sensor was input to an oscilloscope and frequency counter through an amplifier circuit and a filter circuit. The sensor was placed in a coil for generating a pulsed magnetic field, and water in a plastic container was placed in the same coil. A large Helmholtz coil was placed outside the coil for the pulsed magnetic field, and the applied magnetic field from this Helmholtz coil was used as the external magnetic field. The magnitude of the external magnetic field was about  $50 \text{ } \mu\text{T}$ , assuming a geomagnetic field. The frequency of the FID signal in this case is approximately  $2.1 \text{ kHz}$ .

Fig.1 shows the results of frequency measurements with the TMR sensor when the magnitude of the external magnetic field is varied. The change in frequency corresponded linearly to the change in the external magnetic field. Fig.2 shows the repeatability of frequency when the amount of water is varied. Repeatability on the order of ppm was obtained in the 500 cc to 1 cc range, demonstrating the feasibility of a compact proton magnetometer using TMR sensor.

### Acknowledgement

This study was supported by Acquisition, Technology & Logistics Agency (ATLA).

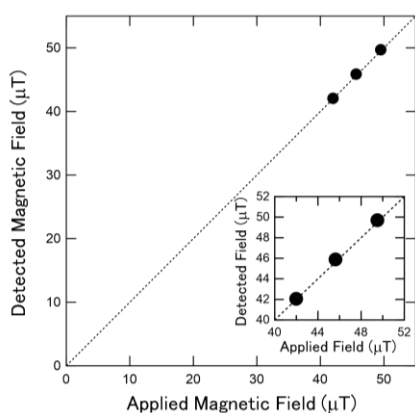


Fig.1 Change in frequency read by the TMR sensor when the external magnetic field is varied.

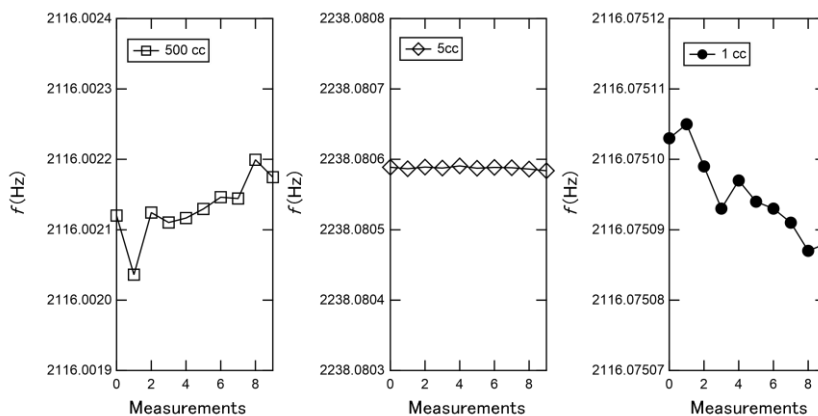


Fig.2 Repeatability of frequency measurements for 500 cc, 5 cc, and 1 cc volumes of water. Repeatability below 0.5 mHz was obtained for all water volumes.

# 半導体/強磁性体積層構造における界面導入と周期長制御による

## 横ゼーベック係数の増大

北浦 怜旺奈<sup>1</sup>, 石部 貴史<sup>1</sup>, 水口 将輝<sup>2</sup>, 中村 芳明<sup>1</sup>  
(阪大院基礎工<sup>1</sup>, 名大未来研<sup>2</sup>)

Enhancement of transverse Seebeck coefficient in semiconductor/ ferromagnetic metal multilayer by introducing interface and controlling periodic thickness

Reona Kitaura, Takafumi Ishibe, Masaki Mizuguchi, Yoshiaki Nakamura  
(Osaka Univ.<sup>1</sup>, Nagoya Univ.<sup>2</sup>)

### はじめに

熱から直接発電可能な熱電発電における一つの効果である異常ネルンスト効果は、同じ無次元性能指数  $ZT$  が得られた際、ゼーベック効果を用いる場合と比較して、デバイスの熱電変換効率が高いと予測されるため、多大な注目を集めている[1]。異常ネルンスト効果の  $ZT$  向上には熱伝導率の低減と横ゼーベック係数の増大が必要である。近年、薄膜化に伴う電子状態変化[2]、積層化に伴う界面効果[3]などの様々な横ゼーベック係数増大法が報告されてきた。従来研究では、金属材料を用いているため、熱伝導率が高く、 $ZT$  は低い値に留まる。一方、ゼーベック効果を用いた熱電変換では、アモルファス半導体や半導体ナノ構造の導入によって、劇的な熱伝導率の低減が達成されている[4-6]。そこで我々は、低熱伝導率なアモルファス半導体層と強磁性金属層からなる積層構造に着目し、熱伝導率の低減と横ゼーベック係数の増大の同時実現に成功してきた[7]。本研究では、積層周期長の減少に伴う電子状態変化及び界面効果を同時に取り入れることで横ゼーベック係数のさらなる増大を狙う。具体的には、各層の層厚を制御した半導体 Si/強磁性金属 Co 積層構造を作製し、横ゼーベック係数増大の観測を目的とした。

### 実験方法

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

### 実験結果

Si/Co 積層構造を SEM で観察したところ、各層で均一に積層されていることが分かった。横ゼーベック係数を測定したところ、周期長 20 nm の Si/Co 積層構造は、参照用の Co 単層膜よりも 2.4 倍程度高い横ゼーベック係数を示した。さらに周期長を 10 nm まで減少させると、Si/Co 積層構造の横ゼーベック係数は、周期長 20 nm のものと比較して 1.6 倍増大し、0.34  $\mu\text{V}/\text{K}$  を達成した。本講演で詳細を報告する。

### 参考文献

- [1] M. Mizuguchi, et al, *Sci. Technol. Adv. Mater.* **20**, 262 (2019). [2] T. C. Chuang, et al, *Phys. Rev. B* **96**, 174406 (2017). [3] K. Uchida, et al., *Appl. Phys. Lett.* **114**, 113902 (2019). [4] Y. Nakamura, et al, *Nano Energy* **12**, 845 (2015). [5] T. Taniguchi, et al, *ACS Appl. Mater. Interface* **12**, 25428 (2020). [6] Y. Nakamura *Sci. Technol. Adv. Mater. Interface* **19**, 31 (2018). [7] R. Kitaura, et al., *Appl. Phys. Express* **14**, 075002 (2021).

# 強磁性共鳴発熱効果により誘引される動的熱スピン注入の定量的評価

大日方初良、飯森陸、大西紘平、木村崇  
(九大院理)

Quantitative analysis of dynamical thermal spin injection induced by FMR heating effect  
S. Obinata, R. Iimori, K. Ohnishi, T. Kimura  
(Dept. of Physics, Kyushu Univ.)

## はじめに

近年、強磁性体 / 非磁性体 2 層構造において、FMR を励起することで、強磁性体から非磁性体にスピンを注入する動的スピン注入法が注目されている。この動的スピン注入法は、素子作製が容易で、ワイヤレスにスピン流を生成可能であるという点から、スピン流関連の物理現象の評価・検証に頻繁に活用されている。動的スピン注入の主な機構としては、スピンポンピングがよく知られているが、近年、新たな機構として、FMR 時に生じる強磁性共鳴発熱効果に起因した熱スピン注入の寄与も指摘されている<sup>1</sup>。しかしながら、これら 2 つの機構を実験的に区別することは単純ではなく、更に、熱スピン注入において生成されるスピン流には、スピン偏極伝導電子とマグノンの 2 つの寄与が混在する。したがって、これらの機構の詳細解明及び、素子構造の最適化により、動的スピン注入効率の飛躍的増大が期待される。本発表では、熱スピン注入の寄与を意識した素子を作製し、様々な条件下における動的スピン注入測定結果について議論する。

## 実験方法

試料は、図 1 に示すような、強磁性体である CoFeB(10 nm) と非磁性体とである Pt(5 nm) からなる 3 層構造及び、電極である Cu(100 nm) から構成される。測定では、外部磁場を試料面内方向に印加しながら、Cu 電極に振幅変調を施した高周波電流を印加し、動的スピン注入時に非磁性体内で生成される逆スピンホール電圧を Cu 電極において、間接的かつ、高精度に検出した。ここで、この 3 層構造においては、その対称的な構造から CoFeB / Pt 界面のスピンポンピングの寄与は相殺されることが期待される。素子構造内の温度勾配を変化させ、熱スピン注入を抽出するために、室温 298 K および、液体窒素下 77 K での測定を行った。

## 実験結果

図 2 に、(a) 室温および、(b) 液体窒素下で動的スピン注入測定を行った結果を示す。室温では正の対称的なスペクトルが得られたのに対し、液体窒素下では、負の対称的なスペクトルが観測された。このスペクトルの符号反転は、3 層構造内の温度勾配が変化することで、スピン注入方向が変化したことを表しており、動的スピン注入における熱スピン注入の存在を示している<sup>2</sup>。本発表では、この結果に加え、熱スピン注入におけるスピン偏極伝導電子とマグノンの寄与を明らかにするために、動的スピン注入における強磁性体の膜厚依存性を調査した結果についても議論する。

## 参考文献

- 1) K. Yamanoi *et al.*, Appl. Phys. Lett. **107**(18), 182410 (2015)
- 2) S. Obinata *et al.*, Scientific Reports. **12**, 3467 (2022).

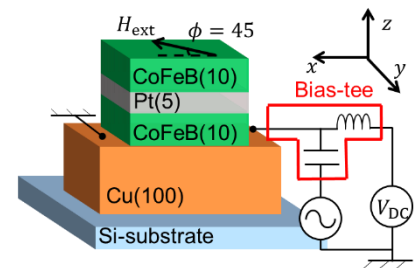


図 1 素子構造

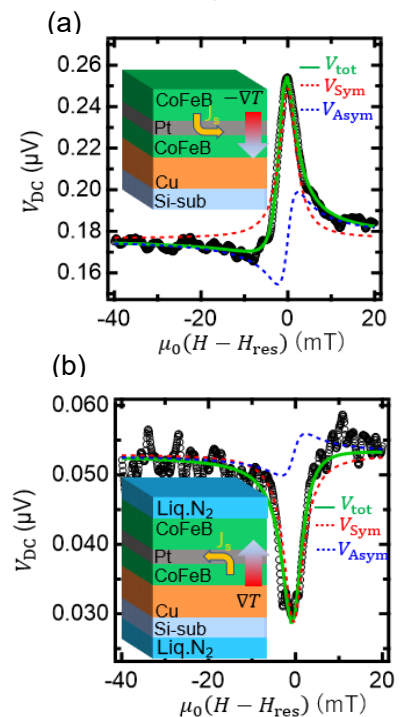


図 2 動的スピン注入スペクトル

# アモルファス GdFe フェリ磁性薄膜における異常ネルンスト係数への異常ホール抵抗率の寄与

小林祐希<sup>1</sup>, 笠谷雄一<sup>2</sup>, 吉川大貴<sup>2</sup>, 塚本新<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>日本大学大学院理工学研究科, <sup>2</sup>日本大学理工学部)

The effect of Anomalous Hall resistivity on Anomalous Nernst coefficient in amorphous GdFe ferrimagnetic thin film

Yuki Kobayashi<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** 磁性が介在する熱電デバイスへの礎となる結晶系強磁性体における異常ネルンスト係数  $S_{ANE}$  の体系的な検討がされており<sup>[1]</sup>, 温度勾配(y 方向)が勾配に直交(x)方向の電界に直接変換される寄与とゼーベック効果により生じた電流と異常ホール効果による横電圧への寄与との和  $S_{ANE} = \rho_{yy}\alpha_{yx} - \rho_{AHE}\alpha_{yy}$  として表されることが報告されている<sup>[2]</sup>. 本報告ではこの表式を用い, アモルファスフェリ磁性体における各項の寄与を検討するため, GdFe 薄膜にて合金組成比を変えた際の  $S_{ANE}$  と異常ホール抵抗率  $\rho_{AHE}$  の相関につき検討・報告する.

**実験方法** 異なる合金組成比の試料群 SiN(60 nm)/Gd<sub>x</sub>Fe<sub>100-x</sub>(20 nm)/SiN(5 nm)/glass sub. ( $x = 16.7, 20, 25, 30, 40, 50, 60$  at.%) をマグネトロンスパッタリング法により作製(以下試料 A, B, C, D, E, F, G)した. 室温における磁化補償組成は  $20 < x < 25$  にあることを試料振動型磁力計による磁化曲線測定で確認した. 低温側試料温度  $T_1$  を 310 K として膜面垂直(z)方向に外部磁界  $H$  を印加し, 膜面内(y)方向に温度勾配  $\nabla T$  を与え, それらに直交する膜面内(x)方向の電極間電圧  $V_x$  を測定した. また, 温度勾配を 0 K/cm として, y 方向に直流電流 0.1 mA を印加した際の x 方向の異常ホール電圧  $V_{AHE}$  を測定した.

**実験結果と考察**  $\nabla T = 20$  K/cm の際の  $V_x$  の外部磁界依存性を Fig. 1 に示す. いずれの試料においても温度勾配と磁化方向に応じた  $V_x$  が測定された. 外部磁界  $H$  における異常ネルンスト電圧  $V_{ANE}(H)$  を  $2V_{ANE}(H) = V_x(+H) - V_x(-H)$  と定義し, 電極間距離を  $W$  として,  $V_{ANE}(H) = S_{ANE} \nabla T \cdot W$  より求めた異常ネルンスト係数  $S_{ANE}$  と, 異常ホール抵抗率  $\rho_{AHE}$  の組成依存性を Fig. 2 に示す. Gd 含有量が増大すると  $|S_{ANE}|, |\rho_{AHE}|$  は試料 B, C で極大値を示し, それ以降  $|S_{ANE}|, |\rho_{AHE}|$  は単調に減少する傾向を示した.  $\rho_{AHE}$  と  $S_{ANE}$  の GdFe 組成比依存性が極めて類似し,  $\alpha_{yy}$  は組成比に対し符号は変わらず単調変化すると考えられることからアモルファス GdFe フェリ磁性薄膜では  $S_{ANE} = \rho_{yy}\alpha_{yx} - \rho_{AHE}\alpha_{yy}$  に対し右辺第二項の寄与が支配的であると考えられる. 当日は, ゼーベック係数  $S_{SE}$  の GdFe 組成比に対する変化傾向も併せ, 各項の寄与につき検討を行う.

**謝辞** 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] K. Hasegawa *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **106**, 252405 (2015).  
 [2] W. Zhou *et al.*, *Nat. Mater. Lett.* **20**, 463-467(2021).

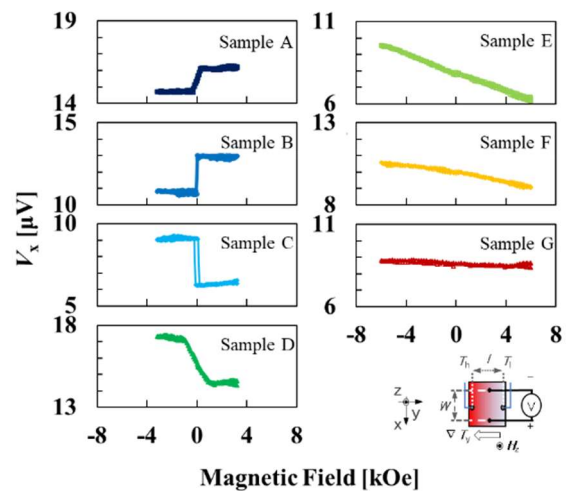


Fig. 1 External magnetic field dependence of transverse voltage  $V_x$  of GdFe thin films

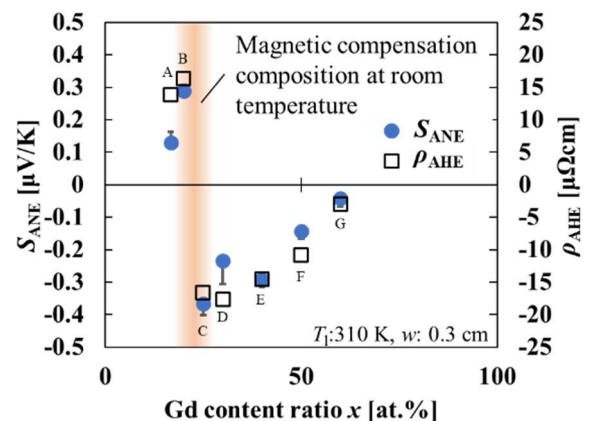


Fig. 2 Composition dependence of Nernst coefficient of GdFe thin films



## SrTiO<sub>3</sub> 基板上の窒化物薄膜における異常ネルンスト効果の変調

伊藤啓太<sup>1</sup>、Himanshu Sharma<sup>1,2</sup>、水口将輝<sup>1,2,3</sup>、高梨弘毅<sup>1,4</sup>  
(東北大金研<sup>1</sup>、名古屋大<sup>2</sup>、阪大 CSRN<sup>3</sup>、原子力機構先端研<sup>4</sup>)

Modulation of the anomalous Nernst effect in nitride films on SrTiO<sub>3</sub> substrates

Keita Ito<sup>1</sup>, Himanshu Sharma<sup>1,2</sup>, Masaki Mizuguchi<sup>1,2,3</sup>, Koki Takanashi<sup>1,4</sup>

(IMR, Tohoku Univ.<sup>1</sup>, Nagoya Univ.<sup>2</sup>, CSRN, Osaka Univ.<sup>3</sup>, ASRC, JAEA<sup>4</sup>)

**【背景】**近年、新たなエネルギーハーベスト技術として金属強磁性体材料における異常ネルンスト効果(ANE)を利用した熱電変換が注目されている。しかし、現状では半導体材料におけるゼーベック効果(SE)を利用した熱電変換に対して、熱電能が大幅に及ばない点が課題となっている。したがって、ANEによる発電出力の向上には、大きな異常ネルンスト係数( $S_{ANE}$ )を示す、新奇強磁性体材料の開発が必須の状況である。強磁性金属窒化物の Fe<sub>4</sub>N および Mn<sub>4</sub>N 薄膜では、それぞれ  $2.2 \mu\text{V/K}^1$  および  $0.50 \mu\text{V/K}^2$  の Fe 等の 3d 遷移金属よりも大きな  $S_{ANE}$  が報告されている。本研究では、異なる酸化物基板上に Fe<sub>4</sub>N および Mn<sub>4</sub>N 薄膜をエピタキシャル成長することで、窒化物薄膜における  $S_{ANE}$  の成長基板依存性を評価した。

**【実験方法】**Fe または Mn および高周波ラジカル N の同時供給による分子線エピタキシー法により、MgO(001) および SrTiO<sub>3</sub>(STO)(001)基板上に、基板温度 450 °C で Fe<sub>4</sub>N および Mn<sub>4</sub>N 薄膜(27 nm)のエピタキシャル成長を試みた。構造は X 線回折(XRD)で評価した。作製した薄膜をホールバー形状の素子に加工し、ANE、SE、異常ホール効果(AHE)を評価した。熱電効果の測定時には、温度勾配( $\nabla T$ )を膜面内のホールバー長手方向(Fe<sub>4</sub>N, Mn<sub>4</sub>N[110])に、外部磁場を膜面外方向に印加した。 $\nabla T$  の測定には素子上に作製したオンチップ温度計を用いた<sup>3)</sup>。

**【結果】**XRD 測定の結果から、各基板上への Fe<sub>4</sub>N および Mn<sub>4</sub>N 薄膜のエピタキシャル成長を確認できた。MgO(001)基板上の Fe<sub>4</sub>N 薄膜の  $S_{ANE}$  は  $1.4 \mu\text{V/K}$ 、ゼーベック係数( $S_{SE}$ )は  $-2.9 \mu\text{V/K}$  となった。STO(001)基板上の Fe<sub>4</sub>N 薄膜では、MgO(001)基板上の試料の 2 倍程度の  $S_{ANE} = 2.8 \mu\text{V/K}$  と、10 倍程度の  $S_{SE} = -27 \mu\text{V/K}$  が得られた。Fe<sub>4</sub>N 薄膜の成膜温度や膜厚を変えた実験の結果から、STO(001)基板の表面付近に酸素空孔が形成され、酸素欠損領域において大きな負の  $S_{SE}$  が発現し<sup>4)</sup>、それにより生じたゼーベック電流が Fe<sub>4</sub>N 層へと流れ込み、AHE により横方向電流へと変換され、実効的な  $S_{ANE}$  が増強されたと考えられる。 $|S_{SE}|$  が大きな層を基板との界面付近に形成することで、隣接する強磁性体薄膜の実効的な  $S_{ANE}$  が増強できることを示せた。MgO(001)基板上の Mn<sub>4</sub>N 薄膜では  $S_{ANE} = 0.20 \mu\text{V/K}$ 、 $S_{SE} = -13 \mu\text{V/K}$  が得られた。一方で、STO(001)基板上の Mn<sub>4</sub>N 薄膜においては  $S_{ANE} = 0.15 \mu\text{V/K}$ 、 $S_{SE} = -19 \mu\text{V/K}$  となり、MgO(001)基板上に作製した Mn<sub>4</sub>N 薄膜よりも小さな  $S_{ANE}$  が得られた。縦抵抗率を  $\rho_{xx}$ 、横ペルチェ係数を  $\alpha_{xy}$ 、異常ホール角を  $\tan\theta_{AHE}$  とすると、 $S_{ANE} = \rho_{xx}\alpha_{xy} - S_{SE}\tan\theta_{AHE}$  で示される。Fe<sub>4</sub>N は  $\alpha_{xy}$  と  $\tan\theta_{AHE}$  の双方が正であり、酸素欠損した STO 層の影響で試料全体としての  $S_{SE}$  が負に増強されたことで、実効的な  $S_{ANE}$  が正に増強された。しかし、Mn<sub>4</sub>N は  $\alpha_{xy}$  が正である一方で  $\tan\theta_{AHE}$  が負であり、 $S_{SE}$  が負に増強されたことで実効的な  $S_{ANE}$  が減少したと考えられる。

**【参考文献】** 1) S. Isogami *et al.*, Appl. Phys. Express **10**, 073005 (2017). 2) S. Isogami *et al.*, Appl. Phys. Lett. **118**, 092407 (2021). 3) J. Wang *et al.*, Adv. Electron. Mater. **8**, 2101380 (2022). 4) H. P. R Frederikse *et al.*, Phys. Rev. **134**, A442 (1964).

**【謝辞】**本研究は JSPS 科研費基盤 C(JP21K04859)および基盤 S(JP18H05246, JP21H05016)、東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センター、東北大学金属材料研究所先端エネルギー材料理工共創研究センター、東北大学電気通信研究所共同プロジェクトの支援を受けた。

## Characterization of the anomalous Nernst effect in $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$ films

W. Yin<sup>1</sup>, K. Ito<sup>1</sup>, Y. Tsubowa<sup>2</sup>, M. Tsujikawa<sup>2</sup>, M. Shirai<sup>2</sup>, K. Takanashi<sup>1,3</sup>  
(IMR, Tohoku Univ.<sup>1</sup>, RIEC, Tohoku Univ.<sup>2</sup>, ASRC, JAEA<sup>3</sup>)

### 【Introduction】

Thermoelectric power generation devices have a promising prospect because they can directly convert thermal energy to electric energy without pollution and noise. As one of the thermoelectric effects, the anomalous Nernst effect (ANE) generates an electric field ( $E_{\text{ANE}}$ ) orthogonal to both magnetization and temperature gradient ( $\nabla T$ ) in ferromagnetic materials.  $\text{Fe}_4\text{N}$  is a promising ferromagnetic material with relatively large anomalous Nernst coefficient ( $S_{\text{ANE}}$ ) of 2.2  $\mu\text{V}/\text{K}$  [1]. In this study,  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  films were fabricated and their ANEs were characterized. The Fermi level of  $\text{Fe}_4\text{N}$  was tuned by adding Ni atoms and  $S_{\text{ANE}}$  was modulated.

### 【Experiments】

The  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  films were epitaxially grown on  $\text{MgAl}_2\text{O}_4(\text{MAO})(001)$  substrates at 450 °C by molecular beam epitaxy. Fe and Ni were supplied by electron beam gun and N was simultaneously supplied by radio-frequency plasma gun. The structures of the samples were characterized by x-ray diffraction. The Ni/Fe ratio,  $x$ , in  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  films was characterized by electron probe micro analyzer, and  $x$  was changed in the range of  $0 \leq x \leq 2.8$ . The samples were microfabricated into a Hall bar shape, and ANE, the Seebeck effect, and the anomalous Hall effect (AHE) were characterized [2]. The external magnetic field dependence of  $E_{\text{ANE}}$  was measured at different  $\nabla T$  for all the samples and  $S_{\text{ANE}}$  was estimated. The transverse conductivity ( $\sigma_{xy}$ ) and the transverse thermoelectric conductivity of  $\text{Fe}_3\text{NiN}$  was calculated by the first-principles calculation [3].

### 【Results】

The  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  films were epitaxially grown on the MAO(001) substrates at 450 °C, but the uniform  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  phase was hard to form with the increase of  $x$  and started to decompose into FeNi at about  $x = 2.3$ . As for the result of ANE, the  $S_{\text{ANE}}$  decreased from 1.7 to 0.6  $\mu\text{V}/\text{K}$  with the increase of  $x$  from 0 to 2.8. The addition of Ni did not improve the ANE in  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$ . The Seebeck coefficient ( $S_{\text{SE}}$ ) increased from -2.3 to 1.2  $\mu\text{V}/\text{K}$  with the increase of  $x$  from 0 to 2.8. By using the experimental data of  $S_{\text{ANE}}$ ,  $S_{\text{SE}}$ , and the anomalous Hall angle,  $\alpha_{xy}$  was calculated. The result showed that  $\alpha_{xy}$  decreased with the increase of  $x$  and the change of  $\alpha_{xy}$  dominated the change of  $S_{\text{ANE}}$ . In order to enhance ANE in  $\text{Fe}_4\text{N}$ , another third element, which increases  $\alpha_{xy}$  of  $\text{Fe}_4\text{N}$ , needs to be found. In the presentation, the obtained  $\sigma_{xy}$  and  $\alpha_{xy}$  values of the sample with  $x = 1.2$  will be compared with the calculation results.

### 【Acknowledgments】

This work was supported by the Grants-in-Aid for Scientific Research (S) (Grant No. JP18H05246) and (C) (Grant No. JP21K04859) from JSPS KAKENHI, Collaborative Research Center on Energy Materials, Institute for Materials Research, Tohoku University, and the Cooperative Research Project of the Research Institute of Electric Communication, Tohoku University.

### 【References】

- [1] S. Isogami, K. Takanashi, and M. Mizuguchi, Appl. Phys. Express **10**, 073005 (2017).
- [2] J. Wang, Y.-C. Lau, W. Zhou, T. Seki, Y. Sakuraba, T. Kubota, K. Ito, and K. Takanashi, Adv. Electron. Mater. **8**, 2101380 (2022).
- [3] Y. Tsubowa, M. Tsujikawa, and M. Shirai, the 69th JSAP spring meeting 2022, 23a-E205-5 (2022).

## 強磁性/重金属界面における動的スピンの注入の圧力効果

飯森陸、大日方初良、光田暁弘、木村崇  
(九大院理)

Pressure effects on dynamical spin injection at ferromagnet/heavy metal interface

R. Iimori, S. Obinata, A. Mitsuda, T. Kimura  
(Dept. of Phys, Kyushu Univ.)

### はじめに

近年、強磁性(FM)/非磁性重金属(HM)二層膜におけるスピン軌道相互作用に起因した電流とスピン流の相互変換が注目されている。FM/HMにおける電流-スピン流変換の起源として、バルクのスピンホール効果や界面のラシュバ・エデルシュタイン効果が知られているが、電流-スピン流変換効率は数パーセントと極めて小さい。一方で、FM/HM界面におけるラシュバ型スピン軌道相互作用や交換相互作用は界面の原子間距離に極めて敏感であることが予想され、界面状態を何らかの外的作用により制御できれば、スピン流生成効率の飛躍的増大が期待され、スピン流のデバイス応用に向けて極めて重要な結果となる。そこで最近我々は、高圧力下において強磁性共鳴によるスピン流注入を行う手法を新たに開発した<sup>1,2</sup>。今回の発表では、この手法を用いて、FM/HM二層膜におけるスピンホール信号の圧力依存性について議論する。

### 実験方法

本研究で用いた試料は、CoFeB(10 nm)/Pt(5 nm)およびCoFeB(10 nm)/Ag(5 nm)/Bi(10 nm)であり、DCスパッタリング法により成膜した。圧力印加にはピストンシリンダー型圧力セルを用いて、数GPa程度の圧力下において動的スピン流注入による逆スピンホール信号を測定した(図1)。加えて、圧力印加前後の膜質・界面状況を断面TEMやX線反射率法を用いて解析した。

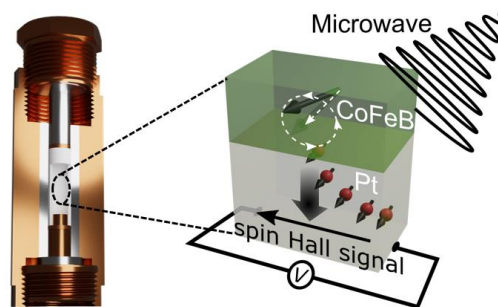


図1: 圧力セルを用いた動的スピン注入測定

### 実験結果

図2に、CoFeB(10 nm)/Pt(5 nm)二層膜における動的スピン流注入による逆スピンホール信号の圧力依存性の結果を示す。1 GPaまでの圧力印加により、逆スピンホール信号が約10%増加した。また、同時に強磁性層のダンピング定数の増大も確認した。これらの増強効果の起源として、界面スピンミキシングコンダクタンスの増強やPt層のスピンホール角の増強効果が予想される。そこで、これらの起源を解明するため、同積層構造における磁気抵抗効果やトンネル接合を用いたPt層のスピンホール角の精密測定、更には、スピンホール伝導度の圧力依存性に関するDFT計算を行い、界面の交換相互作用の圧力増強が支配的であると結論付けた。

当日はこの結果に加え、CoFeB(10 nm)/Ag(5 nm)/Bi(10 nm)におけるラシュバ型スピン軌道相互作用の圧力変調を狙った研究についても紹介する。

### 参考文献

- 1) S. Obinata *et al.*, Appl. Phys. Lett. **118**, 152401 (2021)
- 2) R. Iimori *et al.*, Appl. Phys. Express **15**, 033003 (2022)

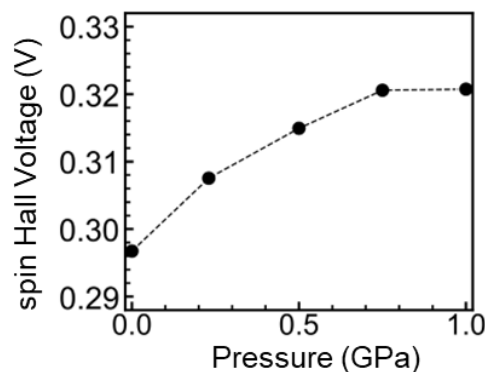


図2: 逆スピンホール信号の圧力依存性

## ST-FMR 測定における周波数依存アーティファクト

洞口泰輔<sup>1</sup>、山野井一人<sup>1</sup>、松尾衛<sup>2</sup>、能崎幸雄<sup>1,3</sup>

(<sup>1</sup>慶大理工、<sup>2</sup>中国科学院大学 Kavli-ITS UCAS、<sup>3</sup>慶大スピン研)

Frequency-dependent Artifact in ST-FMR Measurements

T. Horaguchi<sup>1</sup>, K. Yamanoi<sup>1</sup>, M. Matsuo<sup>2</sup>, Y. Nozaki<sup>1,3</sup>

<sup>1</sup>Keio Univ., <sup>2</sup>Kavli-ITS UCAS, <sup>3</sup>CSRN Keio Univ.

## はじめに

スピントルク強磁性共鳴(ST-FMR)法[1]は、非磁性体(NM)/強磁性体(FM)二層膜におけるスピントルク効率の評価に広く用いられる手法である。二層膜に交流電流を印加すると、スピンホール効果等により NM が生成するスピン流のスピントランスファートルクと、電流のエルステッド磁場由来のトルク協奏により FMR が誘引される。その際、それぞれのトルクに由来する FMR スペクトルを対称成分と反対称成分として分離できるため、単位電流あたりのスピントルク効率を求めることができる。しかし、NM/FM 二層膜では NM から FM へのスピン流注入と同時に、逆スピンホール効果や縦型スピンゼーベック効果に起因する起電力などのアーティファクト信号がスペクトルに重畳するため、これがスピントルク効率の評価を阻害することが指摘されており、その分離手法についてこれまで精力的に研究されてきた[2,3]。

われわれは、これまでの ST-FMR 測定ではほとんど無視されてきた周波数依存性に着目して FMR スペクトルの分析をしたところ、NM/FM 二層膜に印加した交流電流の周波数に依存した大きなアーティファクト電圧を発見した。本発表では、この周波数依存アーティファクトの起源を検討した結果を報告する。

## 実験方法・結果

マグネトロンスパッタリングを用いたリフトオフ法により、Si 基板上に NM(10 nm)/Ni<sub>95</sub>Cu<sub>5</sub>(10 nm)二層膜の細線を作製し、これに交流電流印加用のコプレーナ線路を取り付けた。このような素子にマイクロ波信号発生器を接続し、外部磁場を細線から 45°方向に印加しながら、交流電流印加時に発生する整流電圧をバイアステー経由で測定した。NM 層としてスピン軌道相互作用(SOI)の強い Pt と、弱 SOI の Al, Cu を用いた場合について、 $f=5\sim 30$  GHz の周波数領域でスピントルク効率を評価した。

## 実験結果

図1に NM = Pt, Al, Cu の NM/Ni-Cu 細線について測定したスピントルク効率の周波数依存性を示す。30 GHz でのスピントルク効率は、Pt : 0.07、Al : 0.02、Cu : 0.006 であり、先行研究の報告値と矛盾しない。しかし、10GHz 以下の低周波数領域を見ると、スピントルク効率が周波数の低下にしたがって急激に増加しており、Cu では 5 GHz で 30 GHz の時の 4 倍にも達した。ST-FMR 理論によると、スピントルク効率は周波数に依存しないと考えられるため、何らかのアーティファクト信号が重畳していると考えられる。本発表では、低周波数領域でみられたアーティファクトの原因として、(1) FM 層からのスピンポンピングによる逆スピンホール電圧、(2) 磁化ダイナミクス誘引による発熱が膜厚方向に作る温度勾配によって生じる熱スピン起電力、(3) 低磁場領域での磁化未飽和の影響、および(4) 非線形マグノン散乱によるポンピングスピン流増大について、それぞれの可能性を定量的に検討した結果を報告する。

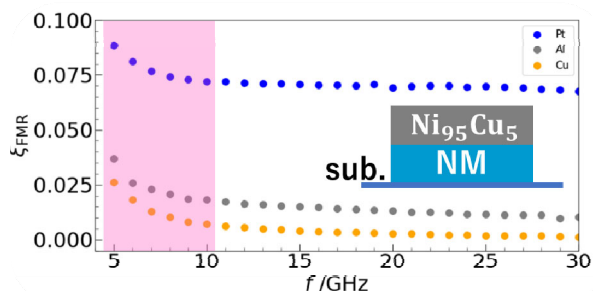


図1 スピントルク効率の周

波数依存性

## 参考文献

- [1] L.Liu *et al.* Phys. Rev. Lett., **106**, 036601 (2011).  
 [2] Kondo *et al.* APEX **9** 023002 (2016)  
 [3] Karimeddiny *et al.* PRAppl. **14** 024024

# Ti/W 傾斜材料におけるスピントルク効率の成膜条件依存性

中山颯人<sup>1</sup>, 洞口泰輔<sup>1</sup>, Thomas Scheike<sup>1</sup>, 山野井一人<sup>1</sup>, 能崎幸雄<sup>1,2</sup>  
(慶大理工<sup>1</sup>, 慶大スピン研<sup>2</sup>)

Sputtering condition dependence of spin-torque efficiency in Ti/W composition graded material

H. Nakayama<sup>1</sup>, T. Horaguchi<sup>1</sup>, T. Scheike<sup>1</sup>, K. Yamanoi<sup>1</sup>, and Y. Nozaki<sup>1,2</sup>

(Dept. of Phys., Keio Univ.<sup>1</sup>, CSRN, Keio Univ.<sup>2</sup>)

## はじめに

近年、新奇なスピン流生成機構としてスピン渦度結合(SVC)が注目を集めている。しかし、SVCにおけるスピン軌道相互作用(SOI)の寄与など、その微視的機構には未解明な点が多い。われわれは、異種材料の接合界面をナノスケールで組成変調させた材料(傾斜材料)を作製し、界面構造と生成されるスピン流の相関を調べることで、組成傾斜部の電気伝導度勾配が作る電流渦のSVC由来のスピン流に関する研究を行っている。今回、SOIの大きさや符号が違うTiとWからなる傾斜材料を異なる成膜条件で作製し、そのスピントルク効率の成膜条件依存性を調べたので報告する。

## 実験方法

マグネトロンスパッタリングとフォトリソグラフィを用いたリフトオフ法により、Si基板上にTi(10)/W( $t_i/2$ )/Ti( $t_i/2$ )/W(10)/Ni<sub>95</sub>Cu<sub>5</sub>(10)/SiO<sub>2</sub>(20)多層膜を成膜した(膜厚の単位はnm)。Ti(10)とW(10)の間に挿入した極薄のW/Ti層の厚さ $t_i$ は、0から2.0nmまで0.5nm刻みで変化させた。本実験では、TiとWのスパッタ成膜レートが異なる2種類の条件(F: 0.99 Å/s (W), 0.82 Å/s (Ti)とS: 0.46 Å/s (W), 0.22 Å/s (Ti))で多層膜を作製した。これらの試料に対し、原子間力顕微鏡(AFM)で表面観察を行い、ラフネスの成膜条件依存性を調べた。さらに、スピントルク強磁性共鳴(ST-FMR)法[1]を用いて、各々のTi/W傾斜材料のスピントルク効率 $\xi_{\text{FMR}}$ を評価し、 $\xi_{\text{FMR}}$ の $t_i$ 依存性が成膜条件によりどのように変化するかを調べた。

## 実験結果

Fig.1に成膜条件(F)と(S)で作製した多層膜表面の二乗平均平方根粗さ $R_{\text{ms}}$ の $t_i$ 依存性を示す。スパッタリング速度を遅くすることにより、試料表面の粗さが大きく低減されている様子がわかる。また、成膜条件(F)の表面には、高さ1.5nm程度の島状の析出物が見られたのに対し、成膜条件(S)の表面には全く見られなかった。Fig.2は、成膜条件(F)と(S)で作製した多層膜について測定した $\xi_{\text{FMR}}$ の $t_i$ 依存性である。成膜条件(S)の場合、Si/Al傾斜材料を用いた先行研究の結果[2]と同様に、 $t_i$ の減少に伴い $\xi_{\text{FMR}}$ が正方向に増加する傾向が見られた。一方、成膜条件(F)では、 $t_i$ に対する $\xi_{\text{FMR}}$ 変化にばらつきが大きい。したがって、組成傾斜幅によるスピントルク効率の制御には、傾斜界面の凹凸を抑えることが重要であると考えられる。

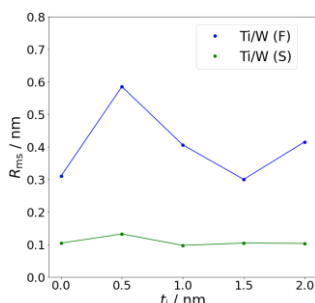


Fig.1 Root mean square roughness  $R_{\text{ms}}$  as a function of insertion layer thickness  $t_i$

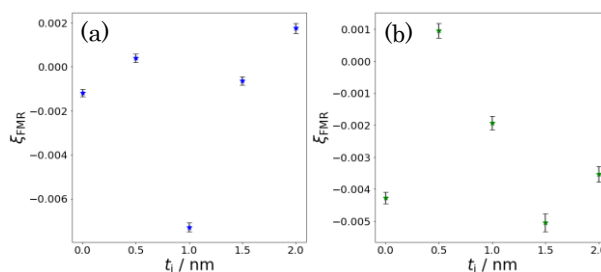


Fig.2 (a)  $t_i$  dependence of spin-torque efficiency  $\xi_{\text{FMR}}$  for samples prepared under sputtering condition (F)  
(b)  $t_i$  dependence of  $\xi_{\text{FMR}}$  for samples prepared under sputtering condition (S)

## 参考文献

[1] L. Liu et al., Phys. Rev. Lett. **106**, 036601 (2011).

[2] T. Horaguchi et al., submitted (<https://www.researchsquare.com/article/rs-955888/v1>).

# 反強磁性絶縁体 NiO を介した熱スピン効果の光学測定

山崎匠, 関剛斎, 窪田崇秀, 高梨弘毅  
(東北大金研)

Optical measurement of thermo-spin effects through antiferromagnetic insulator NiO

T. Yamazaki, T. Seki, T. Kubota, and K. Takanashi  
(IMR, Tohoku Univ.)

## はじめに

スピнкаロリトロニクス進展に伴い、磁性材料が新たな熱電発電・熱マネジメント技術のコア材料として注目を集めている。熱流とスピン流の相互変換現象である熱スピン効果はスピнкаロリトロニクス現象の一種であり、熱流を出力とする熱スピン効果にはマグノンや伝導電子により駆動する2種類の効果がある[1]。非磁性金属/強磁性金属という金属接合系においては複数の熱スピン効果が同時に発現する上、強磁性金属層において磁気熱電効果である異常エッチングスハウゼン効果 (AEE) [2]による熱流も生成される。このように、金属接合系における温度変化は複数の物理的起源が寄与しており、温度変化の詳細を理解するためには、これらの寄与を分離することが不可欠である。そこで本研究では、非磁性金属 (Pt) /強磁性金属 ( $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{60}\text{B}_{20}$ ) 間に反強磁性絶縁体 NiO を挿入し、強磁性金属層を電氣的に絶縁することで、AEE の寄与を排除した熱スピン効果の測定を試みた。

## 実験結果

Pt/NiO/ $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{60}\text{B}_{20}$  (CoFeB)三層構造において Pt に電流を流すと、スピホール効果によりスピン流が生成される。このスピン流は反強磁性絶縁体である NiO を介して CoFeB に注入され、最終的に熱スピン効果による熱流が生じる。NiO はマグノンやスピン揺らぎによってスピン角運動量を輸送する一方、Pt-CoFeB 間を電氣的に絶縁するため、CoFeB における AEE を排除した測定が可能となる。マグネトロンスパッタリング法により MgO(111)基板上に Pt(10 nm)/NiO( $t$ )/CoFeB(20 nm)を作製した後、Al-O(20 nm)/Cr(5 nm)/Au(100 nm)をイオンビームスパッタリング法により成膜した。ここで Au 層は測温用トランスデューサーとなる。そして薄膜試料を幅 400  $\mu\text{m}$ 、長さ 2.5 mm の矩形状に微細加工した。熱スピン効果による温度変化の測定には、反射率の温度依存性 (サーモリフレクタンス) を利用した光学的測温技術とロックイン検出を組み合わせたロックインサーモリフレクタンス法[3]を用いた。ロックインサーモリフレクタンス法では試料の温度振幅  $A$  と位相  $\phi$  の温度変化情報を取得できる。 $t = 10$  nm のデバイスにおいて、入力電流の位相での温度変化を表す  $\Delta T (= A \cos \phi)$  の磁場  $H$  依存性を測定したところ、CoFeB の磁化曲線と同じ挙動を示した。Pt 層と CoFeB 層の間の抵抗測定により NiO 層が絶縁体であることは確認されており、熱スピン効果は強磁性層の磁化に比例することから、 $\Delta T$  が熱スピン効果に由来することが示された。続いて、熱スピン効果の信号強度を最大化する最適な  $t$  を決定するため、 $t = 5 - 50$  nm の範囲で  $A_{\text{odd}}$  の  $t$  依存性を調査した。ここで  $A_{\text{odd}}$  は、 $A_{\text{odd}} = |A(+H)e^{i\phi(+H)} - A(-H)e^{i\phi(-H)}|/2$  で定義され、 $H$  に依存しないバックグラウンド信号が除去された温度振幅を表す。 $A_{\text{odd}}$  は  $t = 10$  nm で最大値を示し、 $t$  の増加とともに単調に減少した。この結果から、本研究で用いた三層構造において AEE の寄与を排除し熱スピン効果を最大化できる最適な NiO 層厚さは、 $t = 10$  nm であることがわかった。また、 $A_{\text{odd}}$  の  $t$  依存性から NiO のスピン透過長を見積もったところ、得られた値は先行研究[4,5]と同じオーダーであり、 $A_{\text{odd}}$  の  $t$  依存性が NiO 中のスピン輸送を反映した結果となった。

## 謝辞

本研究は JSPS 科研費 (JP18H05246, JP21K20392) の支援を受けて行われた。

## 参考文献

- 1) K. Uchida, Proc. Jpn. Acad., Ser. B **97**, 69 (2021).
- 2) T. Seki *et al.*, Appl. Phys. Lett. **112**, 152403 (2018).
- 3) T. Yamazaki *et al.*, J. Phys. D: Appl. Phys. **54**, 354001 (2021).
- 4) Y. Wang *et al.*, Science **366**, 1125 (2019).
- 5) T. Ikebuchi *et al.*, Appl. Phys. Express **14**, 123001(2021).

## DMI を利用したバイアスフリー SOT-MRAM のシミュレーション解析

渡邊丈士良, 仲谷栄伸  
(電通大)

Computer Simulation of Bias-free SOT-MRAM with DMI

J. Watanabe, and Y. Nakatani  
(Univ. of Electro-Comm.)

## 1 はじめに

近年、不揮発性メモリの種類として Spin-orbit torque MRAM(以下 SOT-MRAM) が研究されている。SOT-MRAM は Spin-transfer torque MRAM(以下 STT-MRAM) で問題視されていた耐久性の問題を、読み書き電流を別々にしたことによって解決したメモリ様式である。しかし、その特性上 DMI<sup>1)</sup> などのアシスト効果を加える必要がある。しかし、DMI のアシスト効果ではパルス幅によって反転の有無が変化するとの問題がある。そこで本研究ではスピンを自由層の一部に加えることによる改善法を提案し、シミュレーションによって提案手法の有効性を調査した。

## 2 シミュレーション概要

直径が 40 nm、膜厚が 2.0 nm の円形薄膜を計算対象とし、シミュレーションの為此を格子幅 1.0 nm で離散化した。材料定数は、飽和磁化  $M_s = 1000 \text{ emu/cm}^3$ 、交換スティッフネス定数  $A = 1.5 \mu\text{erg/cm}$ 、DMI 定数  $D = 1.0 \text{ erg/cm}^2$ 、損失定数  $\alpha = 0.1$ 、 $\gamma = 17.6 \text{ Mrad/s} \cdot \text{Oe}$ 、スピホール角  $\Theta = 0.3$ 、電流密度  $0.3 \sim 6.0 \text{ TA/m}^2$  とし、スピンを加える範囲は 100%~50% まで変化させた。

DMI 値を素子の中でスピンの通る領域では  $1.0 \text{ erg/cm}^2$  としてそれ以外の領域では  $0.0 \text{ erg/cm}^2$  とした。DMI の有無によって熱安定性指数(以下、 $\Delta$ )が変化する為、スピンを加える範囲ごとに  $\Delta$  が  $60^\circ$  となる磁気異方性定数  $K_0$  を求めた。続いて、放置時間を 3.0 ns に固定した上でパルス幅を 0.05~1.0 ns まで変化させた時の最終平均磁化をマイクロマグネティックシミュレーションによって調査した。

## 3 結果および考察

スピンを加える範囲を 100% と 75% にし、放置時間を 3.0 ns に固定し、パルス幅を 0.05~1.0 ns まで変化させた時の最終磁化平均を Fig. 2, 3 に示す(縦軸: 電流密度、横軸: パルス幅)。この時、赤色領域は反転成功、青色領域は反転失敗、紫色領域は反転途中を表している。Fig. 2, 3 からスピンを加える範囲が 100% の場合はパルス幅により反転の有無が変化するのに対し、75% の場合にはパルス幅が一定以上であれば常に反転することが分かる。この原因を調べるために、パルス幅を 0.5 ns に固定し、電流を切った直後の磁化平均を調べた (Fig. 4)。Fig. 4 から、スピンを加える範囲が 100% の時の磁化平均は  $0.5\pi \text{ rad}$  となるが、75% の時は磁化平均が  $0.5\pi \text{ rad}$  以上となる。このことから、スピンを加える範囲が 100% の時は素子の中心に磁壁構造が出てきていると考えられるが、75% の時は電流切断直後の磁壁構造が +y 方向に移動するため、パルス幅によらずに確実に反転すると考えられる。

磁壁構造が移動する理由としては、無電流範囲 (DMI が  $0.0 \text{ erg/cm}^2$ ) を設けることでその範囲での磁化方向がスピンの向きにとどまるのではなく反転するようになり、磁壁が +y 方向に押されるからであると考えられる。

## References

- 1) S. Rohart and A. Thiaville *Phys. Rev. B* **88**, 184422
- 2) K. Ikegami, *IEEE, IEDM*.2015.7409762

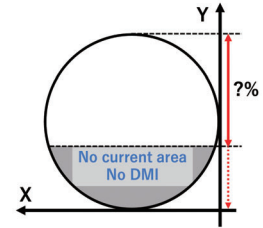


Fig. 1 Bias-free SOT-MRAM

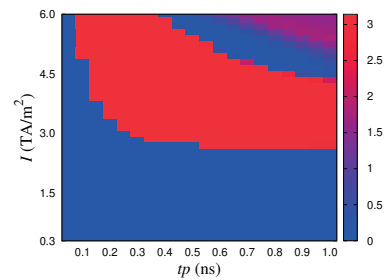


Fig. 2 The range of spin : 100 %

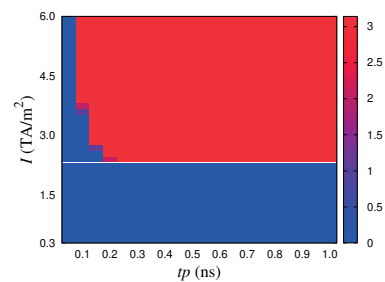


Fig. 3 The range of spin : 75 %

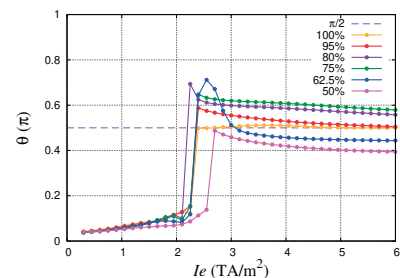


Fig. 4 The effect of range of spin (time : 0.5ns)

# 講演取消



# 拡張型ランダウ自由エネルギーモデルを用いた ナノ磁性体の磁化反転解析とデバイス構造設計

國井創太郎、増澤賢、Alexandre Foggiatto、三俣千春、小嗣真人\*  
(東京理科大学 先進工学部)

## Mechanism of magnetization reversal and structural design of nanomagnet using extended Landau Free Energy Model

Sotaro Kunii, Ken Masuzawa, Alexandre Lira Foggiatto, Chiharu Mitsumata and Masato Kotsugi\*  
(Tokyo University of Science)

### 背景

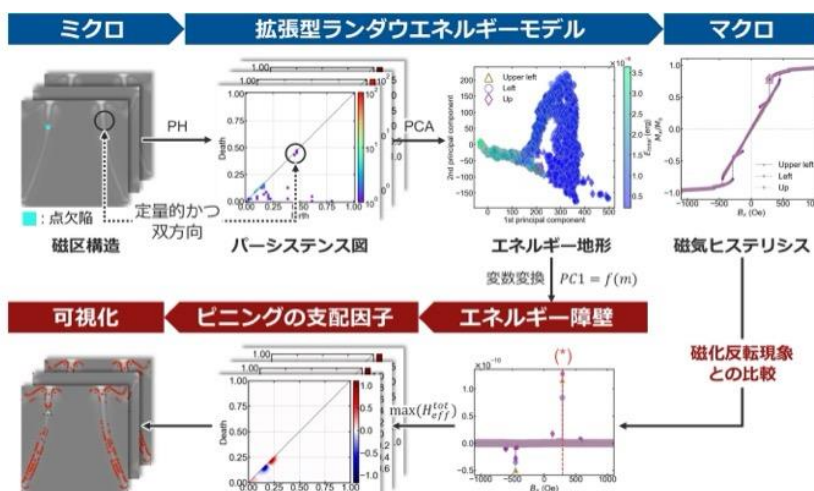
ナノ磁性体において磁気機能と微細組織の関係性を明らかにすることは重要である。磁化反転過程や保磁力などを代表例に、マクロとミクロは個別に解析されてきたが、両者の関係性は極めて定性的であった。

### 方法

そこで我々は、伝統的なランダウ自由エネルギーモデルに情報科学を適用することで、「拡張型ランダウ自由エネルギーモデル」を設計した。本モデルでは、磁区構造の空間情報を積極活用して情報空間上に新たなエネルギーランドスケープを描画する。ミクロな磁区構造とマクロな磁化反転現象を階層を超えて双方向接続でき、起源となる磁氣的相互作用の因果解析を可能とする。

### 結果

研究では、パーマロイナノ磁性体の磁区構造データを対象に、パーシステントホモロジーを用いて特徴量を作成すると共に、リッジ回帰、主成分分析、アダマール積を用いてエネルギーモデルを設計した。シンプルな変数変換と微分によって、反転に要するエネルギー障壁と特徴量の関係性を構築できた。解析の結果、ピンング現象では静磁エネルギーが支配的なことを示すことができた。また各々のエネルギー障壁が実空間上でどのように蓄積されるかも可視化できた。さらにデバイス構造をトポロジーの観点から逆設計することができる。このことから今後応用への発展も期待される。



### 参考文献

- 1) K. Masuzawa et al, T. Magn. Soc. Jpn.,6, (2022), 1
- 2) T. Yamada and M. Kotsugi et al., Vac. Surf. Sci. 62, (2019) 15

# 磁化反転現象の因果解析に向けた 拡張型 Landau 自由エネルギーモデルの設計

増澤 賢, Alexandre Lira Foggiatto, 三俣 千春, 小嗣真人  
(東理大先進工)

Design of the extended Landau free energy model for causal analysis of magnetization reversal phenomenon  
Ken Masuzawa, Alexandre Lira Foggiatto, Chiharu Mitsumata, Masato Kotsugi  
(Tokyo Univ. of Science)

## 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。保磁力や磁化過程を理解するための理論として長らく利用されてきた Ginzburg-Landau 理論では、保磁力は磁化反転に必要なエネルギー障壁の高さによって決定づけられ、エネルギー地形の鞍点が保磁力に対応している。その一方で、同理論では平均場近似に基づいた一様な有効場を前提とするため、粒界等を含む現実的な磁性材料の保磁力の説明が困難であった。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 Landau 自由エネルギーモデル」の設計<sup>[1]</sup>および解析を行った。

## 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、交換エネルギーおよび静磁エネルギーの2種類を算出し、合計を全エネルギーとした。またパーシステントホモロジー (PH) 解析と主成分分析 (PCA) を用いて磁区構造変化を二次元の特徴量で記述した<sup>[2]</sup>。これをエネルギーの記述子としてエネルギー地形を描画することで、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<sup>[1]</sup>。さらに設計した地形の勾配解析を行い、エネルギー障壁を算出するとともに、磁化反転に寄与する位置を逆解析した。

## 実験結果

Fig. 1 は、実材料 YIG の磁区構造データから得られた全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。データ分布は飽和、核生成、保磁力の磁化反転に伴い連続的にプロットされ、保磁力は主に PC1 の関数として表現された。また静磁エネルギー地形および交換エネルギー地形を特徴量で微分して詳細解析した結果、微細なエネルギー障壁を乗り越えることで磁区成長モードの変化が起こっていることが分かった。さらに各エネルギー項は相互に関係しており、有効場の符号の違いが磁区の成長モードの違いを生んでいることが明らかとなった。これに加えて、エネルギー障壁前後における逆解析の結果から、磁区成長モードを決定づける磁区の位置を可視化できた。本手法は、巨視的な磁化反転過程と微細な磁区構造変化の因果関係を自由エネルギーの観点で解析可能なため、保磁力などの様々な磁気特性の発現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) K. Masuzawa et al, T. Magn. Soc. Jpn., 6, (2022), 1
- 2) T. Yamada and M. Kotsugi et al., Vac. Surf. Sci. 62, (2019) 15

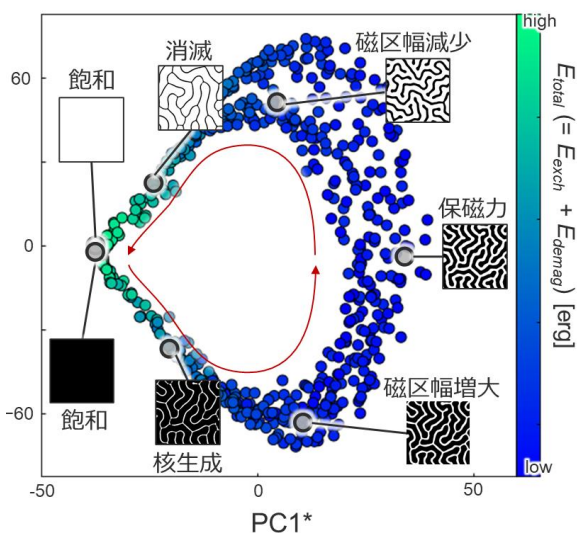


Fig1. Extended Landau Free Energy model

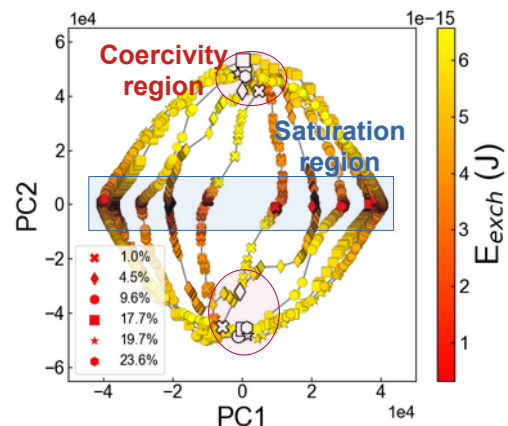
# Interpretation of Coercivity and Energy Mechanism based on the Extended Energy Landscape Model

A. L. Foggiatto<sup>A</sup>, S. Kunii<sup>A</sup>, C. Mitsumata<sup>A,B</sup> and M. Kotsugi<sup>A</sup>

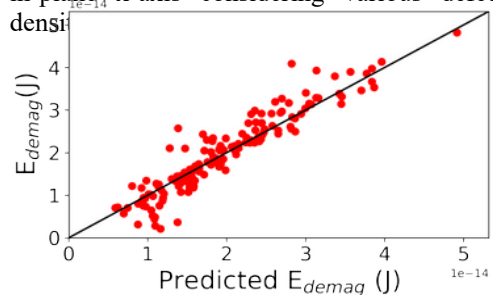
<sup>A</sup>*Dept. of Mater. Sci. and Tech., Tokyo Univ. of Science,* <sup>B</sup>*NIMS*

Coercivity is expressed as a complex correlation between magnetization and microstructure; moreover it is an important property for describing material functions. In real materials, metallography highly influences the magnetic properties owing to the various processes as defect pinning of domains walls.<sup>1,2</sup> To improve the electrical devices, the coercivity mechanism must be clarified. However, owing to multiple intrinsic origins, coercivity cannot be easily described in the framework of conventional Ginzburg-Landau (GL) theory.<sup>3</sup>

In this work, we used machine learning, principal component analysis (PCA), to draw a realistic energy landscape of magnetization reversal process for permalloy considering various density of defects. Fig. 1 displays the energy landscape as a function of the first and second principal component (PC1 and PC2). The landscape map enabled visualization of the energy and coercivity as a function of feature space components. We observed that PC1 has a linear correlation with the magnetization, while the PC2 has a polynomial correlation with the energy. As a result from energy landscape analysis, magneto-static energy mainly influences the demagnetization reversal process. Therefore, we consider the prediction of magneto-static energy as described in Fig.2 The training was based in the extended landscape model. We could predict the energy with  $R^2 \sim 0.80$ . This result shows that the extended energy model can be use to clarify the coercivity mechanism and to predict the system energy based on the feature space components.



**Fig. 1.** Energy landscape for the magnetization in-plane, x-axis considering various defects density



**Fig. 2.** Demagnetization energy prediction using the energy landscape parameters as the input.

[1]A. Hubert, R. Schäfer "Magnetic Domains: The Analysis of Magnetic Microstructures" (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 1998).

[2] C. H. Chen, et al., J. Appl. Phys. **93**, 7966 (2003)

[3]L. D. Landau and E. M. Lifshitz: "Statistical Physics" (Pergamon, Oxford,1980)

# Cr-Ge 系 Chimney-Ladder 化合物の高温高压合成および磁性

佐々木拓也, 野田航希, ガイダ ニコ アレクサンダー, 丹羽健, 長谷川正  
(名古屋大工)

High-pressure synthesis and magnetic properties of Cr-Ge Chimney-Ladder phase

T. Sasaki, K. Noda, N. A. Gaida, K. Niwa, M. Hasegawa  
(Nagoya Univ.)

## はじめに

4~9 族金属  $M$  と 13~15 族元素  $X$  からなる金属間化合物  $M_mX_x$  ( $1.25 < x/m < 2$ ) には Chimney-Ladder (CL) 構造と呼ばれる結晶構造を持つ物質群が存在する. この構造は  $M$  原子の作る正四角柱状煙突 (Chimney) の中を  $X$  原子の作る梯子が螺旋階段状 (Ladder) に上っていくような原子配列をとる. Cr-Ge 系 CL 化合物としては, 常圧下で  $\text{Cr}_{11}\text{Ge}_{19}(\text{CrGe}_{1.727})$ , 高压下では 4~5.5 GPa で  $\text{Cr}_4\text{Ge}_7(\text{CrGe}_{1.75})$ <sup>1)</sup>, 15 GPa で  $\text{CrGe}_{1.77}$ <sup>2)</sup> の合成報告がされており, 合成圧力と組成比  $x/m$  の間に正の相関があると推察される. また, 常圧相  $\text{Cr}_{11}\text{Ge}_{19}$  はキュリー温度が 85 K の遍歴強磁性体であると報告されているが<sup>3)</sup>, 高压相の詳細な磁性は報告されていない. そこで本研究では, 大容量マルチアンビル型高压発生装置を用いて物性評価に十分な量の Cr-Ge 系 CL 構造金属間化合物を合成し, これらの磁性を調査した.

## 実験方法

出発合金試料を Ar 雰囲気グローブボックス内で粉碎および試料カプセルへの充填を行い, 高压実験セルを作製した. 圧力発生装置には DIA 型および川井型マルチアンビル高压発生装置を使用した. 所定の圧力まで加圧した後, 60 分間加熱した. 加熱終了後, 急冷・減圧し, 試料を常圧常温に回収した. 回収試料は X 線回折測定および磁化測定にて評価を行った.

## 実験結果

Fig.1 に, 14 GPa, 1000 °C の合成試料の XRD パターンを示す. このパターンを CL 化合物  $\text{Cr}_m\text{Ge}_x$  として超空間群を用いた Le Bail 解析を行ったところ, 組成比  $x/m$  ( $= c_M/c_X$ ) は 1.772 であった. 同様に 2, 5, 7, 10 GPa の圧力で合成した試料の XRD パターンは Fig.1 と比べて僅かにシフトした位置に回折ピークが出現し, 組成比  $x/m$  はそれぞれ 1.737, 1.747, 1.755, 1.763 であった. したがって, 合成圧力によって組成比  $x/m$  が異なる CL 化合物  $\text{Cr}_m\text{Ge}_x$  が生成し, 合成圧力の増加に伴って Ge に富んだ CL 化合物が合成されることがわかった. 高压合成した全ての試料は 2 K での磁化曲線においてヒステリシスを示した. Fig.2 に示したように, 14 GPa, 1000 °C にて合成された  $\text{CrGe}_{1.772}$  の磁化の温度依存性には強磁性転移が見られ, キュリー温度は  $T_c = 332$  K であった ( $H=10$  kOe). 同様に  $\text{CrGe}_{1.737}$ ,  $\text{CrGe}_{1.747}$ ,  $\text{CrGe}_{1.755}$ ,  $\text{CrGe}_{1.763}$  のキュリー温度はそれぞれ 143, 208, 257, 296 K であった. したがって, より Ge に富んだ組成を持つ CL 化合物がより高いキュリー温度を有することが明らかとなった<sup>4)</sup>.

## 参考文献

- 1) H. Takizawa, T. Sato, T. Endo, M. Shimada: J. Solid State Chem., **73** 427 (1988).
- 2) T. Sasaki, K. Kanie, T. Yokoi, K. Niwa, N. A. Gaida, K. Matsunaga, M. Hasegawa: Inorg. Chem., **60** 1767 (2021).
- 3) N. Jiang, Y. Nii, R. Ishii, Z. Hiroi, Y. Onose: Phys. Rev. B., **96** 144435 (2017).
- 4) T. Sasaki, K. Noda, N. A. Gaida, K. Niwa, M. Hasegawa: Inorg. Chem. **60** 14525 (2021).

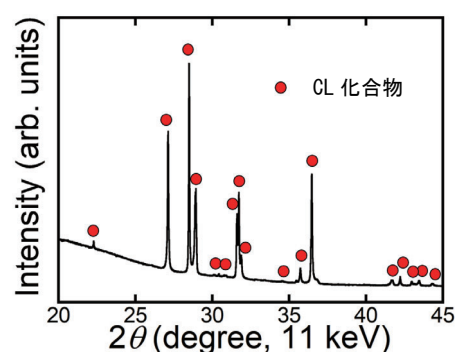


Fig.1 XRD pattern of a sample synthesized at 14 GPa.

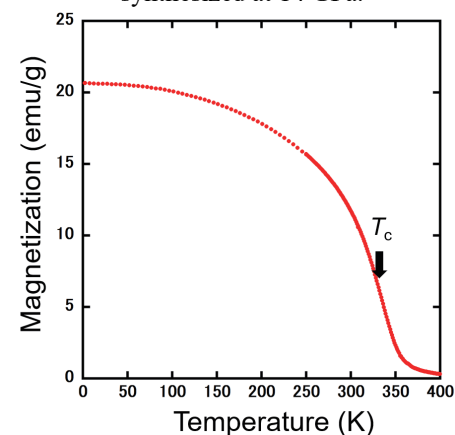


Fig.2 Temperature dependence of magnetization of  $\text{CrGe}_{1.772}$

# Fe<sup>2+</sup>Ti<sup>4+</sup>置換系 Ba<sub>12</sub>Fe<sub>28</sub>Ti<sub>15</sub>O<sub>84</sub> の作製

小沼 裕基、柿崎 浩一、神島 謙二  
(埼玉大学)

Synthesis of Fe<sup>2+</sup>Ti<sup>4+</sup> substituted Ba<sub>12</sub>Fe<sub>28</sub>Ti<sub>15</sub>O<sub>84</sub>

H. Onuma, K. Kakizaki, K. Kamishima  
(Saitama Univ.)

## 緒言

現在、Ba-Fe-Ti 系酸化物のうち、磁性と誘電性両方を示す Ba<sub>12</sub>Fe<sub>28</sub>Ti<sub>15</sub>O<sub>84</sub> が報告されている。<sup>1)</sup> 先行研究ではこの物質中の 2 つの Fe<sup>3+</sup> を Me<sup>2+</sup> (=Zn<sup>2+</sup>, Mg<sup>2+</sup>, Ni<sup>2+</sup>, Cu<sup>2+</sup>, Co<sup>2+</sup>) と、Ti<sup>4+</sup> で置換することに成功した。<sup>2)</sup> 本実験では未だ報告例の無い Me<sup>2+</sup>=Fe<sup>2+</sup> とすることで、新規組成試料の作製を試みた。置換イオンの占有サイトによっては飽和磁化の増加も期待できる。

## 実験方法

試料は粉末冶金法にて作製した。仕込み比が Ba : Ti : Fe<sup>3+</sup> = 12 : 15+x : 28-2x となるように BaCO<sub>3</sub>, TiO<sub>2</sub>, α-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を秤量し、遊星ボールミルを用いて 1100 rpm で 10 分間粉碎を行った。その後、得られた試料を 1000°C で 10 時間仮焼成し、この仮焼成粉に目的組成となるように Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> を秤量後、混合した。この混合粉を外径 10 mm, 内径 3 mm のトロイダル状に成型し、約 1 Pa で石英管に真空封入後、1200°C で 5 時間焼成した。なお、x=0 の試料のみ大気中で焼成した。得られた試料の結晶構造は粉末 X 線回折法(XRD)にて解析し、磁気特性は振動試料型磁力計 (VSM)、SQUID 磁束計にて調べた。

## 実験結果

図 1 に異なる仕込み量 x で作製した試料の X 線回折図を示す。x=0, 1.0, 2.0 で Ba<sub>12</sub>Fe<sup>3+</sup><sub>28-2x</sub>Ti<sub>15+x</sub>Fe<sup>2+</sup><sub>x</sub>O<sub>84</sub> が単相で得られ、置換は成功した。x=3.0 ではチタン酸バリウムを主相とする混相が得られた。これらの結果は Me<sup>2+</sup>=Zn<sup>2+</sup>, Ni<sup>2+</sup> で置換した先行研究と同様の傾向である。<sup>2)</sup>

図 2 に x=0, 1.0, 2.0 組成試料の熱磁気曲線を示す。x の増加に伴い、キュリー温度 T<sub>C</sub> が低下した。これは磁気モーメントを担う 2 つの Fe<sup>3+</sup> のうち 1 つを非磁性の Ti<sup>4+</sup> で置き換えたことで、局所的な超交換相互作用が弱まったためだと考えられる。

図 3 に x=0, 1.0, 2.0 組成試料の 1.8 K における磁化曲線を示す。H=70 kOe での磁化は x=0 の無置換試料よりも置換後の x=1.0, 2.0 試料の方が大きくなった。5 μ<sub>B</sub> の磁気モーメントをもつ Fe<sup>3+</sup> イオンを 4 μ<sub>B</sub> の Fe<sup>2+</sup> と非磁性の Ti<sup>4+</sup> で置き換えたにもかかわらず正味の磁化が増加したことから下向きスピサイトに Ti<sup>4+</sup>、または Fe<sup>2+</sup> イオンが優先的に入った可能性が示唆される。

## 参考文献

- 1) L. P. Curecheriu *et al.* : *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **41** 435002 (2011).
- 2) N. Yasuda, *et al.* : *J. Magn. Soc. Jpn.* **44**, 70 (2020).

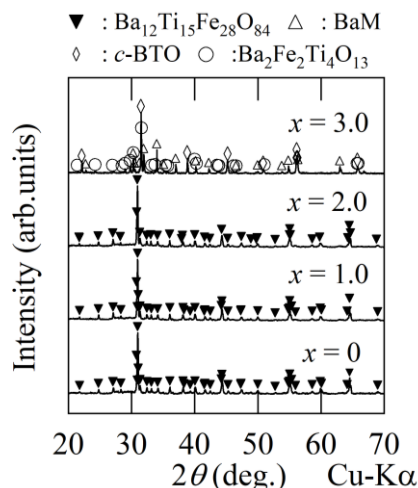


図 1 Ba<sub>12</sub>Fe<sup>3+</sup><sub>28-2x</sub>Ti<sub>15+x</sub>Fe<sup>2+</sup><sub>x</sub>O<sub>84</sub> (T<sub>s</sub> = 1200°C) の X 線回折図

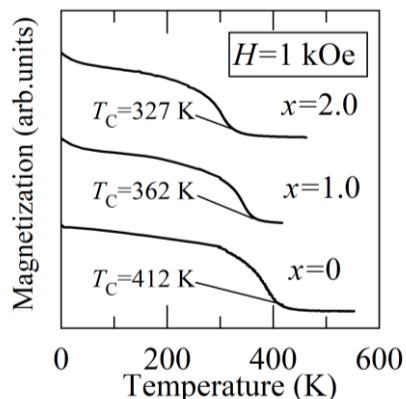


図 2 Ba<sub>12</sub>Fe<sup>3+</sup><sub>28-2x</sub>Ti<sub>15+x</sub>Fe<sup>2+</sup><sub>x</sub>O<sub>84</sub> の熱磁気曲線

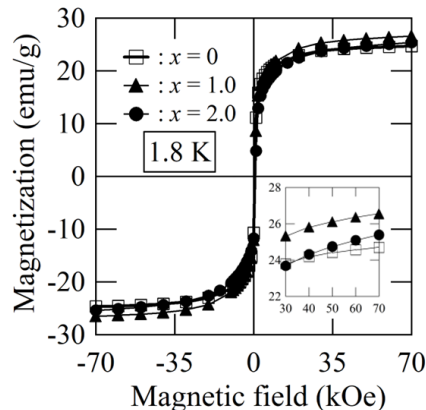


図 3 Ba<sub>12</sub>Fe<sup>3+</sup><sub>28-2x</sub>Ti<sub>15+x</sub>Fe<sup>2+</sup><sub>x</sub>O<sub>84</sub> の磁化曲線

# Ca-Ba系六方晶W型フェライトの作製条件の探索

松井 瑛亮, 柿崎 浩一, 神島 謙二  
(埼玉大学)

Searching for conditions to synthesize Ca-Ba W-type hexagonal ferrites

Y. Matsui, K. Kakizaki, K. Kamishima  
(Saitama Univ.)

## 諸言

W型六方晶フェライトは、化学式 $AMe_2Fe_{16}O_{27}$  ( $A = Ba^{2+}, Sr^{2+}, Me = Mg^{2+}, Zn^{2+}, etc.$ )で表され、イオン種によってはM型フェライトより磁化値が高いため、注目されている。<sup>1)</sup> そこで、本研究では報告例の少ないCa-Ba系W型フェライトの作製を試みた。BaをCaで置換することで、環境への負担の低減と低コスト化が期待できる。

## 実験方法

原料粉( $BaCO_3, CaCO_3, ZnO, \alpha-Fe_2O_3$ )を  $Ba : Ca : Zn : Fe = 1-x : x : 2 : 16$  ( $0 \leq x \leq 0.8$ ) となるように秤量し、これらを湿式ボールミルで24時間混合した。乾燥後、ディスク状に加圧成形し、 $900^\circ C$ で5時間仮焼成した。その後、遊星ボールミルを用いて試料を粉砕し、再びディスク状に加圧成形して、 $1200\sim 1300^\circ C$ で5時間本焼成した。

結晶構造は粉末X線回折法で解析し、磁気特性は振動試料型磁力計(VSM)と超伝導量子干渉型(SQUID)磁束計を用いて測定した。

## 結果と考察

$1200^\circ C$ の焼成では $x = 0 \sim 0.1$ で、 $1250^\circ C$ では $x = 0 \sim 0.2$ で、 $1300^\circ C$ では $x = 0 \sim 0.3$ でW型の相が得られた。しかし、副生成物としてスピネル、M型、 $\alpha-Fe_2O_3$ が生成した。また、六方晶フェライトとスピネルの格子定数の変化から、本来W型相に固溶すべきCaがスピネル相に固溶したのではないかと推察した。

そこで、Znスピネルブロックを1つ分減じた組成  $Ba : Ca : Zn : Fe = 1-x : x : 1 : 14$  ( $0.1 \leq x \leq 0.8$ ) とし、試料を作製した。その結果、 $1200^\circ C$ の焼成では $x = 0.1 \sim 0.5$ 、 $1250, 1300^\circ C$ では $x = 0.1 \sim 0.6$ でスピネル相の生成を抑制できたが、 $\alpha-Fe_2O_3$ 相は依然として残存した。

以上の結果を踏まえ、W型の単相を得るために、 $x = 0.6$ の組成を出発点としてFeを減じた組成  $Ba : Ca : Zn : Fe = 0.4 : 0.6 : 1 : 14-z$  ( $1 \leq z \leq 3$ )の探索を行った。図1は、作製した試料のX線回折図である。 $1200, 1250^\circ C$ で焼成した $z = 2$ の試料と、 $1300^\circ C$ で焼成した $z = 1$ の試料で $\alpha-Fe_2O_3$ の除去に成功し、 $1300^\circ C$ で焼成した $z = 1$ の試料ではW型単相が得られた。図2は $1300^\circ C$ で焼成した試料の熱磁気曲線である。すべての試料で磁氣的に単相であり、 $Zn_2W$ 型のキュリー温度が $370 \pm 5^\circ C$ <sup>2)</sup>であるとの報告を踏まえると、この強磁性相は $Zn_2W$ 型であると考えられる。

## 参考文献

- 1) A. Collomb, J. P. Mignot; J. Magn. Magn. Mater., 69, 330 (1987).
- 2) G. Albance *et al.*; J. Appl. Phys., 11, 81 (1976).

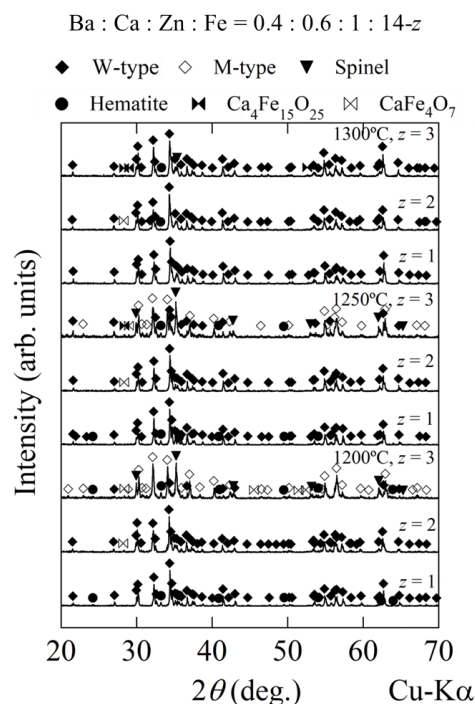


図1 作製した試料のX線回折図

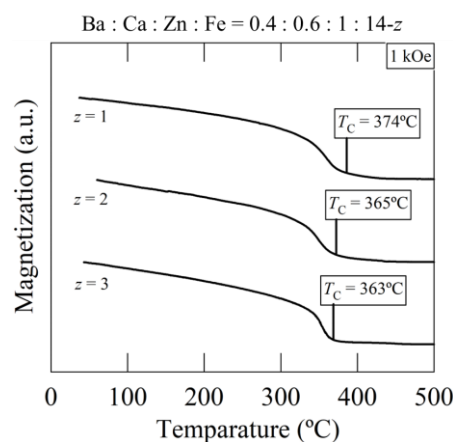


図2  $1300^\circ C$  焼成試料の熱磁気曲線

## EuSn<sub>2</sub>P<sub>2</sub> のメスバウワ分光測定結果

志村岳栄\*, 劉子豪\*, 的場正憲\*\*, 神原陽一\*\*, 北尾真司\*\*\*, 瀬戸誠\*\*\*  
 (\*慶大物情, \*\*慶大スピンセンター, \*\*\*京大複合研)

Mössbauer spectroscopy measurements of EuSn<sub>2</sub>P<sub>2</sub>

Takamasa Shimura, Liu Shi Gou, Masanori Matoba, Yoichi Kamihara, Shinji Kitao, and Makoto Seto  
 (\*APPI, Keio Univ., \*\*CSRN, Keio Univ., \*\*\* KURNS, Kyoto Univ.)

### 緒言

熱を直接電気に変換することができる熱電変換材料の Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> は室温近くで高い性能指数(Z)値を示すことが明らかにされている<sup>1)</sup>。EuSn<sub>2</sub>P<sub>2</sub> の結晶は六方晶系であり、層状構造をとる点、空間群が R $\bar{3}m$  である点、van der Waals(vdw)結合を有する点および孤立電子対を有する点で、Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> の結晶と共通する特徴を示す。また、また、X. Gui らによると EuSn<sub>2</sub>P<sub>2</sub> は半金属であり、バルクを絶縁相と単純化して考えると、表面は位相幾何学的に保たれた磁性導体であると報告されている<sup>2)</sup>。本研究では、より単相に近い EuSn<sub>2</sub>P<sub>2</sub> 試料を Mössbauer 分光測定することで、EuSn<sub>2</sub>P<sub>2</sub> の電子構造を調べることを目的とする。

### 実験方法

まず、試料を 32 mg 秤量し 10 mm φ のペレット状に成型した。そして得られた試料に対して、<sup>151</sup>Sm 線源 (SmF<sub>3</sub>, 公称 1.85 GBq) と <sup>119m</sup>Sn 線源 (CaSnO<sub>3</sub>, 公称 740 MBq) を使用して、それぞれ <sup>151</sup>Eu と <sup>119</sup>Sn について温度を変化させながら Mössbauer 分光測定を行なった。測定温度は <sup>151</sup>Eu について 15 K, 25 K, 30 K, 77 K, 100 K, 200 K, 300 K, <sup>119</sup>Sn について 25 K, 30 K, 50 K, 77 K, 100 K, 200 K, 300 K で測定した。また、得られた Mössbauer スペクトルに対して Mössbauer 解析ソフトウェア (MossWinn) を用いて精密化を行なった。

### 結果

Mössbauer 分光測定結果を解析して得た <sup>151</sup>Eu の Mössbauer スペクトル ( $T=8\sim 30$  K) を Fig. 1 に示す。Fig. 1 を見ると、<sup>151</sup>Eu の Mössbauer スペクトルには 2 つ成分があり、Eu<sup>2+</sup> と Eu<sup>3+</sup> があることがわかる。また、Eu<sup>2+</sup> は  $T=15\sim 25$  K でスペクトルが 6 つに分裂している。<sup>119</sup>Sn の Mössbauer スペクトルは、 $T=25$  K で 2 つの成分のスペクトルがそれぞれ 6 つに分裂していた。このことから、Eu<sup>2+</sup> は  $T=25$  K で反強磁性相に相転移し、核位置に内部磁場が発生したことにより磁気分裂が生じたと考えられる。同様に <sup>119</sup>Sn のスペクトルは Eu の内部磁場により発生した磁気分裂であると考えられる。また、Mössbauer スペクトルを精密化した結果、<sup>151</sup>Eu, <sup>119</sup>Sn ともに温度低下に伴って格子振動に起因したアイソマーシフトの増加および  $T=25$  K 以下の核位置での磁場の増加が確認された。

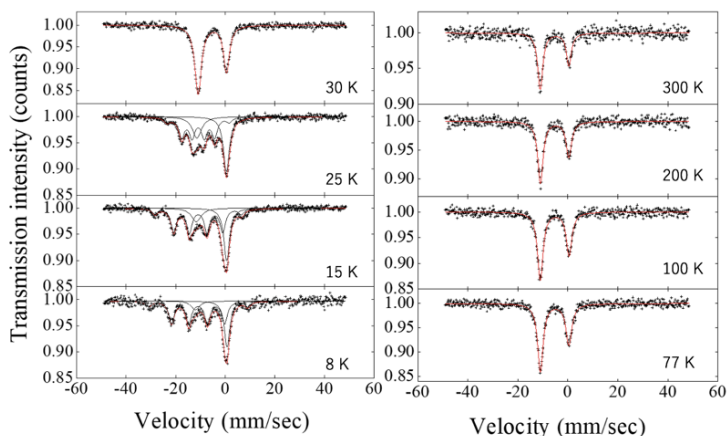


Fig. 1 <sup>151</sup>Eu Mössbauer spectra of a sample of EuSn<sub>2</sub>P<sub>2</sub>. The dots of cross mean observed data.

### 参考文献

- 1) Y. Goto, Ph. D thesis (Keio Univ., 2015).
- 2) X. Gui, *et al.*, ACS Cent. Sci. 5, 900 (2019).
- 3) R. Sakagami, *et al.*, Mater.Sci. Tech. Jpn. 55, 72 (2018). (in Japanese)

## 二価金属置換 $\text{Ba}_2\text{Sn}_{2+x}\text{Me}_{1+x}\text{Fe}_{12-2x}\text{O}_{22}$ の作製

原澤 秀明、柿崎 浩一、神島 謙二  
(埼玉大学)

Synthesis of divalent-cation-substituted  $\text{Ba}_2\text{Sn}_{2+x}\text{Me}_{1+x}\text{Fe}_{12-2x}\text{O}_{22}$

H. Harasawa, K. Kakizaki, K. Kamishima

(Saitama Univ.)

### 緒言

$\text{Ba}_2\text{Sn}_2\text{MeFe}_{10}\text{O}_{22}$  は S ブロック ( $\text{Me}^{2+}\text{Fe}_5\text{O}_8$ )<sup>+</sup>、Q ブロック ( $\text{Ba}_2\text{Sn}_2\text{Fe}_5\text{O}_{14}$ )<sup>-</sup> が積層した六方晶フェライトである。この物質の磁性は反強磁性と報告されているものの、<sup>1)</sup>一般の反強磁性に比べ磁化値が高く、磁気モーメントの配列が単純な反強磁性と異なることが予想される。

本研究では  $\text{Ba}_2\text{Sn}_2\text{MeFe}_{10}\text{O}_{22}$  の  $\text{Fe}^{3+}$  を  $\text{Sn}^{4+}$ 、 $\text{Me}^{2+}$  で置換した。非磁性である  $\text{Sn}^{4+}$  で置換することにより下向きスピンの減少し、反強磁性からフェリ磁性に近づくことを期待した。

### 実験方法

原料粉 ( $\text{BaCO}_3$ ,  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{MeO}$ ) を  $\text{Ba} : \text{Fe} : \text{Sn} : \text{Me} = 2 : 12-2x : 2+x : 1+x$  となるように秤量した。その後、24 時間、湿式ボールミルにより混合した後、乾燥させた。この混合粉を  $1.0 \text{ t/cm}^2$  で圧粉し、直径 12 mm のディスクに成型した。成型した試料を大気中、 $1000\sim 1300^\circ\text{C}$  の範囲で焼成した。結晶構造は Cu-K $\alpha$  線 ( $1.5405 \text{ \AA}$ ) を用いた粉末 X 線回析装置 (XRD) により解析した。磁気特性の評価は振動試料型磁力計 (VSM)、超電導量子干渉型磁束計 (SQUID) を用いて行った。

### 結果と考察

図 1 に  $1200^\circ\text{C}$  で焼成した  $\text{Ba}_2\text{Sn}_2\text{NiFe}_{10}\text{O}_{22}$  の 1.8 および 300 K における磁化曲線を、挿入図として熱磁化曲線を示す。熱磁化曲線からネール点 ( $T_N = 430 \text{ K}$ ) で最大の磁化を持つ特異な反強磁性であった。また、磁化曲線は  $T_N$  点以下の温度で測定した。それにもかかわらず、300 K で測定した磁化曲線は 70 kOe まで磁場を印加することにより、磁化が飽和する傾向を示し、反強磁性体で見られる磁化曲線とは異なり、大きな磁化を持つ。また、1.8 K では、印加磁場に対して磁化が比例するような変化だが磁化値は高い値を示した。

図 2 に  $\text{Ba}_2\text{Sn}_{2+x}\text{Ni}_{1+x}\text{Fe}_{12-2x}\text{O}_{22}$  の相図を示す。  $\text{Me}^{2+} = \text{Ni}^{2+}$  では焼成温度  $T_S > 1150^\circ\text{C}$  で単相が生成することがわかった。また、2 つの  $\text{Fe}^{3+}$  を  $\text{Sn}^{4+}$ 、 $\text{Ni}^{2+}$  で置換した場合、 $-0.1 \leq x \leq 1$  の範囲で置換試料を作製できることがわかった。

図 3 に  $1200^\circ\text{C}$  で焼成した  $\text{Ba}_2\text{Sn}_{2+x}\text{Cu}_{1+x}\text{Fe}_{12-2x}\text{O}_{22}$  の X 線回析図を示す。  $x$  の増加に伴い副生成物が生成し、顕著な結晶配向が見られた。この副生成物内に優先的に置換イオンである Cu と Sn が取り込まれ、異常粒成長した可能性が考えられる。

### 参考文献

- 1) M. C. Cadée *et al.*; J. Solid State Chem., 52 (1984) 302.

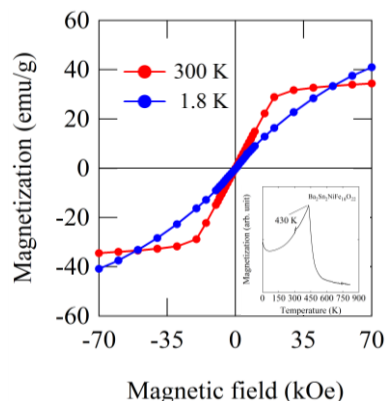


図 1  $1200^\circ\text{C}$  焼成  $\text{Ba}_2\text{Sn}_2\text{NiFe}_{10}\text{O}_{22}$  の磁化曲線

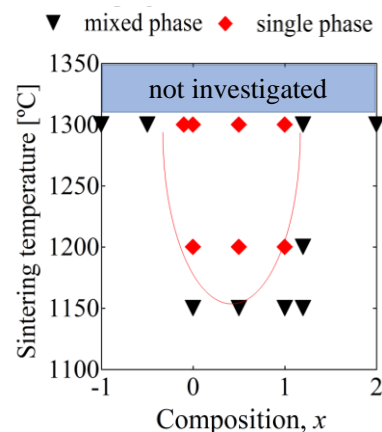


図 2  $\text{Ba}_2\text{Sn}_{2+x}\text{Ni}_{1+x}\text{Fe}_{12-2x}\text{O}_{22}$  の相図

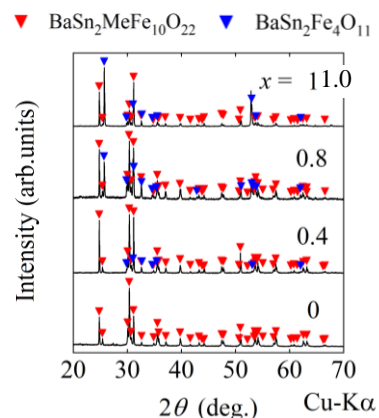


図 3  $1200^\circ\text{C}$  焼成  $\text{Ba}_2\text{Sn}_{2+x}\text{Cu}_{1+x}\text{Fe}_{12-2x}\text{O}_{22}$  の X 線回析図



## Investigation of polycrystalline synthesis and thermoelectric transport properties of SnPn layered compound $\text{EuSn}_2\text{P}_2$

Zihao LIU\*, Takamasa SHIMURA\*, Masanori MATOBA\*\*, Yoichi KAMIHARA\*\*,\*\*

\*Dep. Applied Physics and Physico-Informatics, Faculty of Science and Technology, Keio university, Japan

\*\*Center for Spintronics Research Network (CSRN), Keio University, Japan

### 1. Background • Purpose

The development of  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  based materials by Goldsmid and Douglas has been focused on the study of thermoelectric conversion for more than 60 years. New crystal structures have been proposed. The structure of  $\text{EuSn}_2\text{Pn}_2$  is common to the crystal of  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  in the presence of the layered structure, the point where the space group is  $R_{3m}$ . the point with the VDW coupling, and the isolated electron pair. In this layered compound, the thermal conductivity reduction due to the isolated electron pair is noticed.

### 2. Method

Made blocks of Eu by using metal file. P powder and Sn powder obtained by grinding were mixed and milled. These operations were operated in Glove box. The obtained carbon crucible was vacuum sealed in a quartz glass tube and heat treated. After the heat treatment. The electrical resistance R was measured from Ohm 's law. The effect of the contact resistance was removed by four-probe technique.

### 3. Results

Hexagonal  $\text{EuSn}_2\text{P}_2$  4-5 g was synthesized. Lattice constant  $a = 0.4097$  nm,  $c = 2.6157$  nm. The main phase of the obtained sample was  $\text{EuSn}_2\text{P}_2$ , and Sn and  $\text{EuSnP}$  were found to be diffraction (Fig.1). Although the values of the lattice constants of  $\text{EuSn}_2\text{P}_2$  obtained from each sample show a close value, the difference is 0.001 nm and the difference is 0.001 nm. The statistical error is found to be considerably smaller than  $\pm 0.0001$  nm, but it is found that the error is large at  $\pm 0.001$  nm. This graph (Fig.2) shows that the deviation of the lattice constant values is larger than the standard deviation. It is found that  $\text{EuSn}_2\text{P}_2$  is an unstoichiometric compound whose lattice defects tend to occur and are not constant in chemical composition. Therefore, the electrical properties of  $\text{EuSn}_2\text{P}_2$  may change.

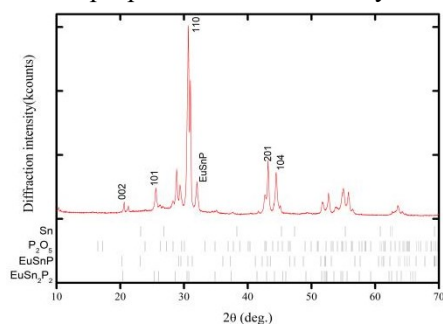


Fig.1 XRD pattern of  $\text{EuSn}_2\text{P}_2$

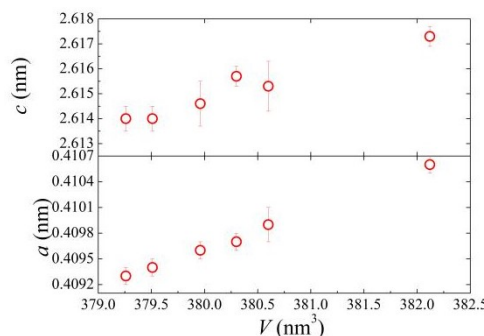


Fig. 2 Lattice constant and lattice volume

### References

- 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) R. Sakagami, Y. Goto, Y. Mizuguchi, M. Matoba, and Y. Kamihara, Mater. Sci. Tech. Jpn. 55, 72-76 (2018). Synthesis method of the SnAs-based layered hexagonal compound,  $\text{EuSn}_2\text{As}_2$  (in Japanese)
- 4) Xin Gui, et al, ACS Cent.Sci 5,900 (2019).
- 5) Y. Goto, Ph.D. thesis, Keio University, 2015.(in Japanese)

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

桑山亮太<sup>1</sup>・今村光佑<sup>1</sup>・大竹充<sup>1</sup>・磯上慎二<sup>2</sup>・川井哲郎<sup>1</sup>・二本正昭<sup>1</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)

## Epitaxial Growth of Mn-N Thin Films on MgO(001) Single-Crystal Substrates

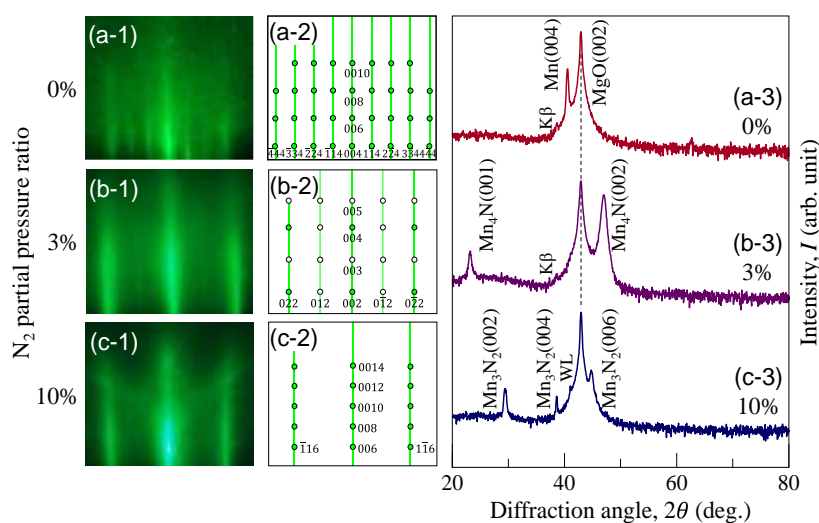
Ryota Kuwayama<sup>1</sup>, Kosuke Imamura<sup>1</sup>, Mitsuru Ohtake<sup>1</sup>, Shinji Isogami<sup>2</sup>, Tetsuroh Kawai<sup>1</sup>,  
Masaaki Futamoto<sup>1</sup>, Fumiyo Kirino<sup>3</sup>, Nobuyuki Inaba<sup>4</sup>  
(<sup>1</sup>Yokohama Nat. Univ., <sup>2</sup>NIMS, <sup>3</sup>Tokyo Univ. Arts, <sup>4</sup>Yamagata Univ.)

**はじめに** 窒化マンガンの  $\epsilon$  相 ( $\text{Mn}_4\text{N}$ , ピアソン記号:  $cP5$ , 空間群:  $Pm\bar{3}m$ ) は, エピタキシャル成長した薄膜の形体で  $K_u = 8.8 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$  程度の比較的高い垂直磁気異方性を有することから, 磁気ランダムアクセスメモリなどのスピントロニクス応用に向けて盛んに研究されている化合物相である<sup>1-4</sup>). これまで, 物理気相成長法を活用して  $\epsilon$  相を含む Mn-N 薄膜が形成され, 構造や磁気特性などが調べられている. また, デバイス応用を見据えた場合, 特にスパッタリング法による膜形成が有効である. しかしながら, スパッタ条件と  $\epsilon$  を含む相形成の対応関係は必ずしも系統的には明らかにされておらず, Mn-N 系における各相の形成条件を明確化する必要がある. 本研究では, 反応性スパッタリング法を用いて Mn-N 薄膜を MgO(001)単結晶基板上に形成し, 広範に  $\text{N}_2$  分圧比を変化させることにより, 相形成と膜成長を詳細に調べた. また, 各相が単相で形成される  $\text{N}_2$  分圧比の条件において, 基板温度を RT から  $600^\circ\text{C}$  の間で変化させ, 最適な形成温度の検討も行った.

**実験方法** 超高真空 RF マグネトロン・スパッタリング装置を用いて, 全圧が  $0.67 \text{ Pa}$  となるように調整した Ar と  $\text{N}_2$  の混合ガス雰囲気下で Mn と N をスパッタすることにより MgO(001)基板上に  $40 \text{ nm}$  厚の Mn-N 薄膜を形成した. 基板温度を RT~ $600^\circ\text{C}$ ,  $\text{N}_2$  分圧比を 0~10% (概要掲載データ) の間で変化させた. 構造評価には RHEED, XRD, XPS, AFM, 磁気特性評価には AHE 測定装置を用いた.

**実験結果**  $400^\circ\text{C}$  の MgO(001)基板上に  $\text{N}_2$  分圧比を 0~10% で変化させることにより形成した膜の RHEED パターンを Fig. 1(a-1)-(c-1)に示す. 純 Ar でスパッタした  $\text{N}_2$  分圧比が 0% の場合, Fig. 1(a-2)に模式的に示す  $\alpha$  相 (ピアソン記号:  $cI58$ , 空間群:  $I\bar{4}3m$ ) の Mn(001)単結晶表面に対応する回折パターンが現れており, Mn(001)[110] || MgO(001)[100] の方位関係で単結晶 Mn 薄膜がエピタキシャル成長していることが分かった (格子ミスマッチ:  $-7.2\%$ ).  $\text{N}_2$  分圧比を 3% まで増加させると, Fig. 1(b-2)に示す  $\epsilon$ - $\text{Mn}_4\text{N}$ (001)表面に対応する回折パターンが観察されており,  $\text{Mn}_4\text{N}$ (001)[100] || MgO(001)[100] の関係で単結晶  $\text{Mn}_4\text{N}$  薄膜が得られた (格子ミスマッチ:  $-8.3\%$ ). 更に  $\text{N}_2$  分圧比を 10% まで増やすと, Fig. 1(c-2)に示す  $\eta$  相 (ピアソン記号:  $tI10$ , 空間群:  $I4/mmm$ ) の  $\text{Mn}_3\text{N}_2$ (001)表面からの反射が現れており,  $\text{Mn}_3\text{N}_2$ (001)[110] || MgO(001)[100] の関係で単結晶  $\text{Mn}_3\text{N}_2$  薄膜が形成された (格子ミスマッチ:  $-0.7\%$ ).

Fig. 1(a-3)-(c-3)に上記の膜に対して測定した面外 XRD パターンを示す. 0%, 3%, 10% の  $\text{N}_2$  分圧比で形成した膜は, それぞれ,  $\alpha$ ,  $\epsilon$ ,  $\eta$  相のみからの回折が生じており, RHEED 解析結果と一致している. また,  $\text{N}_2$  分圧比 0% と 3% の間では  $\alpha$  と  $\epsilon$  相, 3% と 10% の間では  $\epsilon$  と  $\eta$  相が膜中に混在した. 当日は, 基板温度を変化させた膜および  $\text{N}_2$  分圧比 10% 以上の条件で形成した膜の構造と磁気特性についても報告する.



**Fig. 1** (a-1)-(c-1) RHEED and (a-3)-(c-3) out-of-plane XRD patterns of Mn-N films formed on MgO(001) substrates at  $400^\circ\text{C}$  in the  $\text{N}_2$  partial pressure ratios of (a-1,a-3) 0%, (b-1,b-3) 3%, and (c-1,c-3) 10%. (a-2)-(c-2) Schematic diagrams of RHEED patterns simulated for (a-2)  $\alpha$ -Mn, (b-2)  $\epsilon$ - $\text{Mn}_4\text{N}$  and (c-2)  $\eta$ - $\text{Mn}_3\text{N}_2$  single crystals with (001) surface.

- 1) K. Kabara and M. Tsunoda: *J. Appl. Phys.*, **117**, 17B512 (2015).
- 2) S. Isogami, K. Masuda, and Y. Miura: *Phys. Rev. Mater.*, **4**, 014406 (2020).
- 3) Y. Yasutomi, K. Ito, T. Sanai, K. Toko, and T. Suemasu: *J. Appl. Phys.*, **115**, 17A935 (2014).
- 4) W. Li, R. Tanaka, T. Usami, T. Gao, T. Harumoto, Y. Nakamura, J. Shi: *Mater. Lett.*, **311**, 131615 (2022).

# (111)面配向したノンコリニア Mn<sub>4</sub>N 単一磁性層における 無磁場中電氣的磁化反転と磁気異方性との相関

○磯上慎二, ナガリンガム ラジャマニカン, 小塚裕介, 高橋有紀子  
(国立研究開発法人物質・材料研究機構)

Co-relationship between current-driven magnetization switching and magnetic anisotropy  
in a 111-oriented Mn<sub>4</sub>N magnetic single layer

○S. Isogami, N. Rajamanickam, Y. Kozuka, and Y. K. Takahashi  
(National Institute for Materials Science)

**1. はじめに** 逆ペロブスカイト型マンガン窒化物 (Mn<sub>3</sub>XN) は, 電子バンド構造のトポロジを起源とする巨大異常ホール効果を示すことから注目を集めている<sup>1)</sup>. また, 同じ結晶構造を有する強磁性 Fe<sub>4</sub>N, フェリ磁性 Mn<sub>4</sub>N においても興味深い磁気特性やスピン輸送現象が古くから報告されており<sup>2)-7)</sup>, これらの遷移金属窒化物系は今後のスピントロニクス新材料候補として期待が高まっている<sup>8), 9)</sup>. 最新の研究では, 垂直磁化したフェリ磁性薄膜 Mn<sub>4</sub>N(60 nm)/Pt(4 nm)接合体において電流誘起スピン軌道トルクによる磁化反転が報告されている<sup>10)</sup>. しかし反転電流密度は 10<sup>7</sup> A/cm<sup>2</sup> になっており, 実用的な観点では約 1 桁程度の低減が望まれる. よって本研究では, Mn<sub>4</sub>N 薄膜が本質的に示す比較的強い垂直磁気異方性<sup>11)</sup>を低減しつつ磁気構造の熱安定性を維持するアプローチをもって, 電流誘起磁化反転の更なる低減を試みた. その結果, 10<sup>6</sup> A/cm<sup>2</sup> 台の反転電流密度が達成されたと同時に, スピンホール Pt 層の接合無し, 且つ無磁場下にて磁化反転する興味深い現象を導出したので報告する<sup>12)</sup>.

**2. 実験方法** 試料の膜構成は, MgO(111)単結晶基板/Mn<sub>4</sub>N(30)/Al(2) (膜厚単位: nm) とした. Mn<sub>4</sub>N 膜の成長には窒素反応性 DC マグネトロンスパッタリング法を用いた. 結晶構造解析と磁化過程評価にはそれぞれ, X 線回折装置, 透過電子顕微鏡と振動試料型磁力計を用いた. Mn<sub>4</sub>N 薄膜は基板上に(111)面双晶を伴いながら成長し, 磁化容易軸は垂直には存在しないことが判った. 電流誘起磁化反転を実証するため, 微細加工にて 8 端子素子を作製し, 磁化反転には面内に流す電流パルス ( $J_w$ ) を, 磁化状態検出には異常ホール測定を用いた. 比較のため, 従来の垂直磁化した Mn<sub>4</sub>N サンプルを作製し, 同様の方法で測定を行った.

**3. 実験結果** Figure 1(a)は, (111)面配向した Mn<sub>4</sub>N 薄膜に対し, 極性の異なる 2 つの  $J_w$  を流した後の磁区状態に対応する異常ホール信号 ( $\rho_{xy}$ ) をプロットしたものである. ここで  $J_w$  の絶対値は 1 MA/cm<sup>2</sup>, パルス幅は 1 s に固定した. また,  $J_w$  パルス印加毎に行う  $\rho_{xy}$  の測定を 1 サイクルと定義した. その結果,  $J_w$  の極性反転の前後で  $\rho_{xy}$  に急峻な変化が観測され,  $\rho_{xy}(J_w = 0)$  値をゼロとする縦軸オフセット処理したときの振幅はほぼ同等であった. これは Mn<sub>4</sub>N の磁区状態が  $J_w$  に対応して反転したことを示唆する. Figure 1(b)は, 比較のために作製した (001)面配向のサンプルに関する結果であるが, 磁化反転は認められなかった. これらは, (111)面配向でノンコリニア化した Mn<sub>4</sub>N の磁気構造が, 無磁場中の電流誘起磁化反転に有利であったことを示唆している. 講演会では磁気構造の詳細を含め, Mn<sub>4</sub>N 単一膜で磁化反転が実現する原理を議論する予定である.

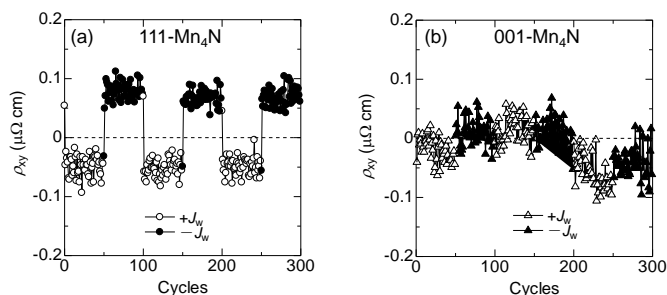


Fig.1 Current-driven magnetization switching in 111-oriented (a) and 001-oriented (b) Mn<sub>4</sub>N films using positive and negative writing current ( $J_w$ ).

## 参考文献

- 1) V.T.N. Huyen, et al., PRB 100, 094426 (2019).
- 2) S. Isogami, et al., APEX. 3, 103002 (2010).
- 3) S. Kokado, et al., JPSJ. 81, 024705 (2012).
- 4) K. Ito, et al., JAP. 116, 053912 (2014).
- 5) S. Isogami, et al., APEX. 10, 073005 (2017).
- 6) T. Hajiri, et al., APL. 115, 052403 (2019).
- 7) S. Isogami, et al., APL. 118, 092407 (2021).
- 8) 角田匡清ら, 日本磁気学会報「まぐね」11, 125 (2016).
- 9) 磯上慎二, 日本磁気学会報「まぐね」17, 89 (2022).
- 10) H. Bai, et al., Adv. Electron. Mater. 8, 2100772 (2021).
- 11) S. Isogami, et al., PRMater. 4, 014406 (2020).
- 12) S. Isogami, et al., AIP Adv. 11, 105314 (2021).

# 非金属軽元素の操作によるノンコリニア型 $Mn_4N$ 磁気構造の制御

○磯上慎二<sup>1</sup>, 大竹 充<sup>2</sup>, 高橋有紀子<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>物質・材料研究機構, <sup>2</sup>横浜国立大学)

Tailored non-collinear magnetic structures of  $Mn_4N$  thin films by light elements

○S. Isogami<sup>1</sup>, M. Ohtake<sup>2</sup>, and Y. K. Takahashi<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>National Institute for Materials Science, <sup>2</sup>Yokohama National University)

**1. はじめに** ノンコリニア磁気構造の効率的な制御は電流誘起磁化反転素子の反転電流密度の低減に直結するため, 研究が盛んになってきている. 例えば,  $Mn_3Sn$  ワイル反強磁性体<sup>1)</sup>,  $Mn_3GaN$  反強磁性体<sup>2)</sup>などの薄膜において, 磁区状態の電氣的制御や反転が報告された.  $Mn_4N$  は垂直磁気異方性をもつコリニア型のフェリ磁性体として広く知られるが<sup>3)</sup>, 我々はこれまで(111)配向させた  $Mn_4N$  薄膜を作製し, 単一層にて  $1 \text{ MA/cm}^2$  の反転電流密度を実証した<sup>4)</sup>. これはノンコリニア型への磁気構造の変化が主要因として考えられるが, その詳細は理論計算以外に確認されていなかった<sup>5)</sup>. よって本研究ではスピンのトポロジー性を起源として検出されるトポロジカルホール効果 (THE) の測定, および磁化の温度依存性の評価を通して, 間接的にノンコリニア磁気構造の解明を試みた. その結果, 室温から低温領域まで安定して THE が観測されたことから, 比較的安定なノンコプラナー型の磁気構造が存在することが判った. また発展として, 非金属軽元素: ホウ素 (B) を僅か数 at. % 加えるだけで磁気構造の安定性を意図的に制御できることも判明したので報告する<sup>6)</sup>.

**2. 実験方法** 試料の膜構成は,  $MgO(111)$ 単結晶基板/ $Mn_4N(23)$ / $Al(2)$  (膜厚単位: nm) とした.  $Mn_4N$  膜の成長には窒素反応性 DC マグネトロンスパッタリング法を用いた. 単結晶基板を数 mm サイズにカットし, THE および磁化の温度依存性の測定はそれぞれ, PPMS および MPMS 装置を用いて行った. 測定温度は室温から 5 K までとした. 添加した B の定量分析は誘導結合プラズマ発光分析装置を用いて行った. 結晶構造解析には X 線回折装置を用いた.

**3. 実験結果** Figure 1(a)の赤色で示す履歴曲線は, 測定温度 300 K における THE の面直磁場依存性を示す. ここで THE 成分はホール効果測定全体 (Total) から, 異常ホール効果による成分 (AHE) を差し引いた値に相当する. 比較的小さな磁場  $\mu_0 H_z \sim 0.1 \text{ T}$  近傍で THE の履歴曲線がピーク値を示すことから, (111)面配向  $Mn_4N$  薄膜におけるノンコプラナー型の磁気構造は, 室温で安定であることが判った. Figure 1(b)は THE 成分の AHE 成分に対する比を測定温度に対してプロットした結果を示す. 温度が低下するにつれ徐々に増大し, ほぼ 1 に接近したが, これは(111)配向  $Mn_4N$  薄膜におけるノンコプラナー型磁気構造の安定性が低温側でより顕在化したものと考えられる. さらに B を最大 2.1 at.% 添加した場合は, 比の値が全温度領域について一様に低減することが判った. これは B の添加に対して, スピンの相対位置関係は維持しながらも, スピン間に働く交換相関結合が希釈されたものと推察される. 講演会では, 更に(110)配向させた場合の結果を加味しながら, 磁気構造を意図的に操作する上での軽元素 (B) の役割を議論する.

## 参考文献

- 1) Y. Takeuchi, et al., *Nat. Mater.* 20, 1364 (2021).
- 2) T. Hajiri, et al., *APL*. 115, 052403 (2019).
- 3) 例えば S. Isogami, et al., *PRMater.* 4, 014406 (2020).
- 4) S. Isogami, et al., *AIP Adv.* 11, 105314 (2021).
- 5) M. Uhl, et al., *PRB*. 55, 2995 (1997)
- 6) S. Isogami, et al., *JAP*. 131, 073904 (2022).

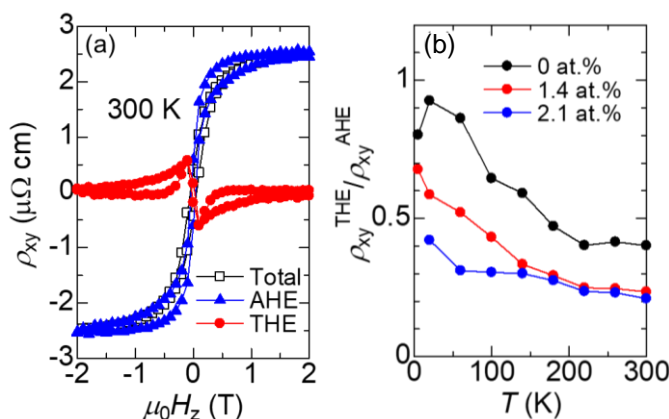


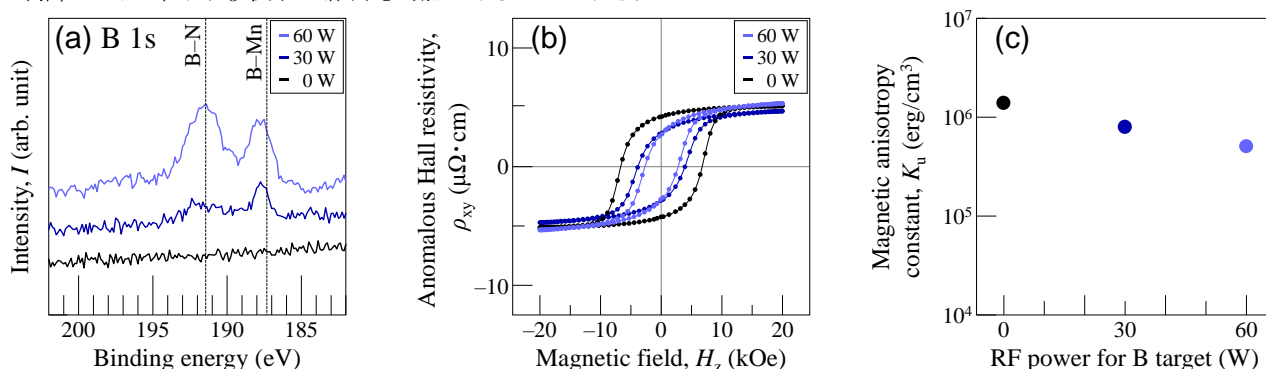
Fig.1 (a,b) Extraction of the anomalous and topological Hall resistivity from the total transverse Hall resistivity ( $\rho_{xy}$ ) (a) and temperature ( $T$ ) dependence of the topological Hall amplitude ( $\rho_{xy}^{\text{THE}}/\rho_{xy}^{\text{AHE}}$  ratio) (b) for the (111)-oriented  $Mn_4N$  films with B-doping, where the ordinary Hall resistivity was subtracted.

Mn<sub>4</sub>N 単結晶薄膜における N サイトの B 原子による部分置換の可能性今村光佑<sup>1</sup>・中村優太<sup>1</sup>・野呂翔太<sup>1</sup>・磯上慎二<sup>2</sup>・大竹充<sup>1</sup>( <sup>1</sup> 横浜国大, <sup>2</sup> 物材機構 )Possibility of N Site Replacement with B Atom in Mn<sub>4</sub>N Single-Crystal Thin FilmKosuke Imamura<sup>1</sup>, Yuta Nakamura<sup>1</sup>, Shota Noro<sup>1</sup>, Shinji Isogami<sup>2</sup> and Mitsuru Ohtake<sup>1</sup>( <sup>1</sup>Yokohama Nat. Univ., <sup>2</sup>NIMS )

**はじめに** Mn<sub>4</sub>N 薄膜は、格子歪を伴って垂直磁気異方性を示し、磁壁の移動速度が大きいことなどから、スピントロニクス・デバイスへの応用に向けて注目されている<sup>1-5</sup>。Mn<sub>4</sub>N は Mn の fcc 格子の体心位置に N が侵入した L'1 型の結晶構造をとるフェリ磁性体 (ε 相, プロトタイプ: Fe<sub>4</sub>N, 空間群: Pm $\bar{3}$ m) で、角位置の Mn を他元素で置き換えることが可能であり、これまで、Co, Ni, Zn, Ga, Ge など で置換し、特性評価が行われている<sup>6</sup>。我々は N サイト側の他元素置換の可能性を探るために、軽元素のうち N と原子半径の同程度である B に注目した<sup>5</sup>。Mn と B の原子半径比は 0.54 で、侵入型金属間化合物の存在可能性を経験的に示す Hagg 則の範囲内であるものの、安定相として L'1 型の Mn<sub>4</sub>B なる化合物については報告されていない。一方、窒化物への軽元素添加の例として Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> への C 添加なども試みられていることから<sup>7</sup>、Mn<sub>4</sub>N に微量添加する形で N サイトの一部を B に置換できる可能性がある。そこで本研究では、Mn<sub>4</sub>N への B 添加による化学結合状態の変化と磁気特性に与える影響を調べた。

**実験方法** 超高真空マグネトロン・スパッタリング法により、Ar と N<sub>2</sub> の混合ガス下で Mn および B ターゲットをコスパッタすることで、MgO(001)基板上に 30 nm 厚の Mn-B-N 膜を形成した。このとき、Mn ターゲットに対する DC 投入電力および Ar に対する N<sub>2</sub> 流量比は、それぞれ Mn<sub>4</sub>N の形成が確認できた 30 W および 30 % とし、一方、B ターゲットに加える RF 電力は 0~60 W の間で変化させた。表面粗さの増大を抑制しつつ規則度および結晶性を向上させるために、基板温度 250 °C で膜形成を行った後、450 °C まで昇温して 1 時間の熱処理を施した。室温に冷却後、2 nm 厚の Al 保護層を形成した。構造評価に XRD, XPS, ICP-OES, AFM, 磁気特性評価には VSM, トルク磁力計<sup>8</sup>, AHE 測定装置を用いた。

**実験結果** 0~60 W で B ターゲットをスパッタし、B 添加量を変化させたいずれの場合においても、L'1 構造をもつ膜がエピタキシャル成長していることを確認し、ICP 発光分析法にて評価した B 組成比は 0~8.5 at. % であった。0, 30, 60 W とした場合の膜の B 1s の光電子スペクトルを Fig. 1(a) に示す。格子内に B が存在し、N の代わりに B が Mn と結合していることを示すピークを確認できる。一方、一部の B は N と結合していることが分かる。そして、B-Mn と B-N 結合の割合は、30 と 60 W の膜で逆転しており、B 添加量が少ない場合は B-Mn 結合が優勢であり、B 添加量が増加すると固溶限界を超えた B は N と結合してしまうことが示唆される。Fig. 1(b) に AHE ループを示す。B を添加した場合においても、多少弱まるものの、垂直磁気異方性が得られていることが分かる。Fig. 1(c) に K<sub>u</sub> を示す。B 添加により K<sub>u</sub> が少しずつ減少していくことが分かる。本研究により、Mn<sub>4</sub>N 構造における N サイトの B 原子による部分置換の可能性が実験的に示され、また、添加量の制御により垂直磁気異方性の維持も可能であることが示された。



**Fig. 1** (a) XPS spectra of B 1s, (b) AHE loops, and (c)  $K_u$  measured for single-crystal Mn<sub>4</sub>(N,B) films.

- 1) K. Kabara and M. Tsunoda: *J. Appl. Phys.*, **117**, 17B512 (2015).
- 2) Y. Yasutomi, K. Ito, T. Sanai, K. Toko, and T. Suemasu: *J. Appl. Phys.*, **115**, 17A935 (2014).
- 3) X. Shen, A. Chikamatsu, K. Shigematsu, Y. Hirose, T. Fukumura, and T. Hasegawa: *Appl. Phys. Lett.*, **105**, 072410 (2014).
- 4) W. Li, R. Tanaka, T. Usami, T. Gao, T. Harumoto, Y. Nakamura, and J. Shi: *Mater. Lett.*, **311**, 131615 (2021).
- 5) S. Isogami, M. Ohtake, and Y. K. Takahashi: *J. Appl. Phys.*, **131**, 073904 (2022).
- 6) K. Takenaka, M. Ichigo, T. Hamada, A. Ozawa, T. Shibayama, T. Inagaki, and K. Asano: *Sci. Tech. Adv. Mater.*, **15**, 1 (2014).
- 7) M. Tobise, Y. Nomura, M. Kodama, T. Murakami, and S. Saito: *IEEE Trans. Magn.*, **1** (2022) [in press].
- 8) T. Ono, N. Kikuchi, S. Okamoto, O. Kitakami, and T. Shimatsu: *Appl. Phys. Express*, **11**, 033002 (2018).

## 垂直磁気異方性を示す(001)面配向した Mn<sub>4</sub>N 多結晶薄膜の形成

中村優太<sup>1</sup>・今村光佑<sup>1</sup>・野呂翔太<sup>1</sup>・磯上慎二<sup>2</sup>・大竹充<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>横浜国大, <sup>2</sup>物材機構)

Preparation of (001)-Oriented Mn<sub>4</sub>N Poly-Crystalline Thin Film with Perpendicular Magnetic Anisotropy

Yuta Nakamura<sup>1</sup>, Kosuke Imamura<sup>1</sup>, Shota Noro<sup>1</sup>, Shinji Isogami<sup>2</sup>, Mitsuru Ohtake<sup>1</sup>

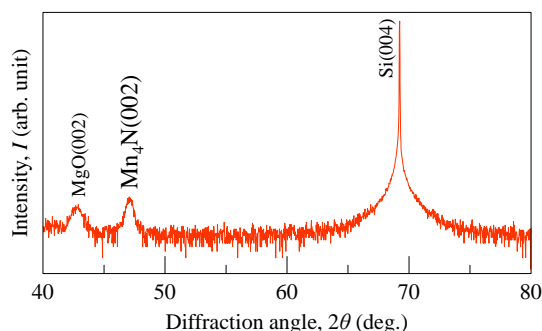
(<sup>1</sup>Yokohama Nat. Univ., <sup>2</sup>NIMS)

**はじめに** Mn<sub>4</sub>N 薄膜は格子歪に起因して垂直磁気異方性が発現し ( $K_u = 8.8 \times 10^{-5} \text{ erg/cm}^3$ )<sup>1)</sup>, 飽和磁化も小さく ( $M_s = 110 \text{ emu/cm}^3$ )<sup>1)</sup>, また, 磁壁の移動速度が速い (900 m/s)<sup>2)</sup>ことから, スピントロニクス関連のメモリやストレージへの応用に向けて注目されている. これまでの研究では, (001)単結晶基板上に Mn<sub>4</sub>N 単結晶膜をエピタキシャル成長させている場合が多い<sup>1-6)</sup>. デバイス応用のためには多結晶膜を形成することも重要であるが, MnO 下地層上における形成報告<sup>7, 8)</sup>が僅かにあるだけで, 多結晶膜形成に関する研究は十分には行われていない. 本研究では, 熱酸化 Si 基板上に形成した(001)面配向の MgO 下地層上に, 垂直磁気異方性を有す Mn<sub>4</sub>N 多結晶薄膜を形成することを試みた.

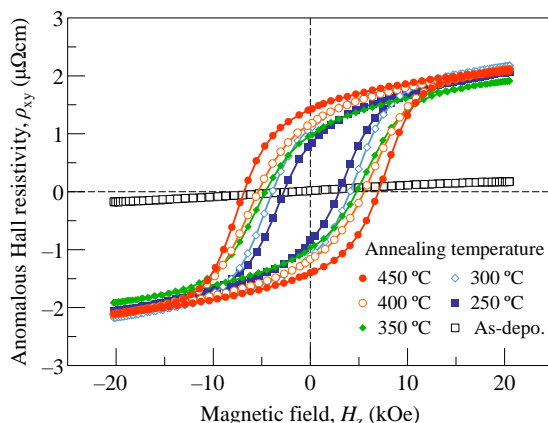
**実験方法** 膜形成には DC/RF マグネトロン・スパッタリング装置を用いた. 熱酸化 Si 基板上に 3 nm 厚の Ta シード層および 10 nm 厚の MgO 下地層を形成した. 次に, Ar と N<sub>2</sub> の混合ガス雰囲気下 (全圧: 0.27 Pa, N<sub>2</sub> 分圧比: 35%) で Mn ターゲットをスパッタすることにより 22 nm 厚の Mn-N 膜を形成した. 最後に, 3 nm 厚の MgO キャップ層を形成した. 製膜時の基板温度は室温とし, その後, 250~450 °C の間の一定温度で熱処理を施した. 構造評価には XRD, XPS, AFM, 磁気特性評価には AHE 測定装置を用いた.

**実験結果** 250~450 °C のいずれの温度で熱処理を施した試料においても, (001)面配向した Mn<sub>4</sub>N 薄膜が得られた. Fig. 1 に 450 °C で熱処理した Mn-N 膜の XRD パターンを例として示す. 基板と下地層からの Si(004)および MgO(002)反射に加えて, Mn<sub>4</sub>N(002)反射が現れていることが分かる. Fig. 2 には熱処理前 (as depo.) と 250~450 °C で熱処理した膜の AHE ループを示す. 熱処理温度が上昇するにつれ保磁力と角型の増大が認められたことから, Mn<sub>4</sub>N 薄膜の(001)面配向性が促進したものと考えられる.

- 1) K. Kabara and M. Tsunoda: *J. Appl. Phys.*, **117**, 17B512 (2015).
- 2) T. Gushi, M. J. Klug, J. P. Garcia, S. Ghosh, J. P. Attané, H. Okuno, O. Fruchart, J. Vogel, T. Suemasu, S. Pizzini, and L. Vila: *Nano Lett.*, **19**, 8716 (2019).
- 3) S. Nakagawa and M. Naoe: *J. Appl. Phys.*, **75**, 6568 (1994).
- 4) Y. Yasutomi, K. Ito, T. Sanai, K. Toko, and T. Suemasu: *J. Appl. Phys.*, **115**, 17A935 (2014).
- 5) S. Isogami, K. Masuda, and Y. Miura: *Phys. Rev. Mater.*, **4**, 014406 (2020).
- 6) X. Shen, A. Chikamatsu, K. Shigematsu, Y. Hirose, T. Fukumura, and T. Hasegawa: *Appl. Phys. Lett.*, **105**, 072410 (2014).
- 7) K. -M. Ching, W. -D. Chang, and T. -S. Chin: *J. Alloys Compd.*, **222**, 184 (1995).
- 8) W. Li, R. Tanaka, T. Usami, T. Gao, T. Harumoto, Y. Nakamura, and J. Shi: *Mater. Lett.*, **311**, 131615 (2021).



**Fig. 1** Out-of-plane XRD pattern of Mn-N film annealed at 450 °C.



**Fig. 2** Anomalous Hall resistivity loops of Mn-N films annealed at different temperatures.

## Frustrated magnetic skyrmions: from two dimensions to three dimensions

X. Zhang<sup>1</sup>, J. Xia<sup>1</sup>, O. A. Tretiakov<sup>2</sup>, H. T. Diep<sup>3</sup>, J. Yang<sup>4</sup>, G. P. Zhao<sup>5</sup>, M. Ezawa<sup>6</sup>, Y. Zhou<sup>7</sup> and X. Liu<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Department of Electrical and Computer Engineering, Shinshu University, Nagano, Japan

<sup>2</sup> School of Physics, The University of New South Wales, Australia

<sup>3</sup> Laboratoire de Physique Théorique et Modélisation, CY Cergy Paris Université, France

<sup>4</sup> State Key Laboratory for Mesoscopic Physics, School of Physics, Peking University, China

<sup>5</sup> College of Physics and Electronic Engineering, Sichuan Normal University, China

<sup>6</sup> Department of Applied Physics, The University of Tokyo, Tokyo, Japan

<sup>7</sup> School of Science and Engineering, The Chinese University of Hong Kong (Shenzhen), China

Skyrmions are typical topological spin textures that can be stabilized in frustrated magnetic systems with competing exchange interactions [1-3]. They have multiple degrees of freedom, which could be manipulated by external driving forces and thus, may lead to novel applications, such as the helicity-based information processing. Therefore, it is important to understand the fundamental physical properties of frustrated skyrmions and to explore their potential applications. In this talk, I will first briefly introduce topological spin textures in magnetic systems [4]. I will then talk about the static and dynamic properties of isolated skyrmions in a magnetic monolayer with frustrated exchange interactions [3]. I will focus on the discussion of the dynamic behaviors of isolated skyrmions driven by spin torques, including linear motion and circular motion. Besides, I will discuss the current-induced bifurcation of a three-dimensional skyrmion string in a frustrated multilayer system [5]. I will show that three types of bifurcations could be realized by applying different current injection geometries, which lead to the transformation from I-shaped topological skyrmion strings to Y-, X-, and O-shaped ones. Finally, at the end of the talk, I will share some views on possible future directions for the study of topological spin textures, which are not limited to the frustrated magnetic systems.

### References

- 1) A. O. Leonov and M. Mostovoy, Nat. Commun. **6**, 8275 (2015).
- 2) S.-Z. Lin and S. Hayami, Phys. Rev. B **93**, 064430 (2016).
- 3) X. Zhang *et al.*, Nat. Commun. **8**, 1717 (2017).
- 4) X. Zhang *et al.*, J. Phys. Condens. Matter **32**, 143001 (2020).
- 5) J. Xia *et al.*, Phys. Rev. B **105**, 214402 (2022).

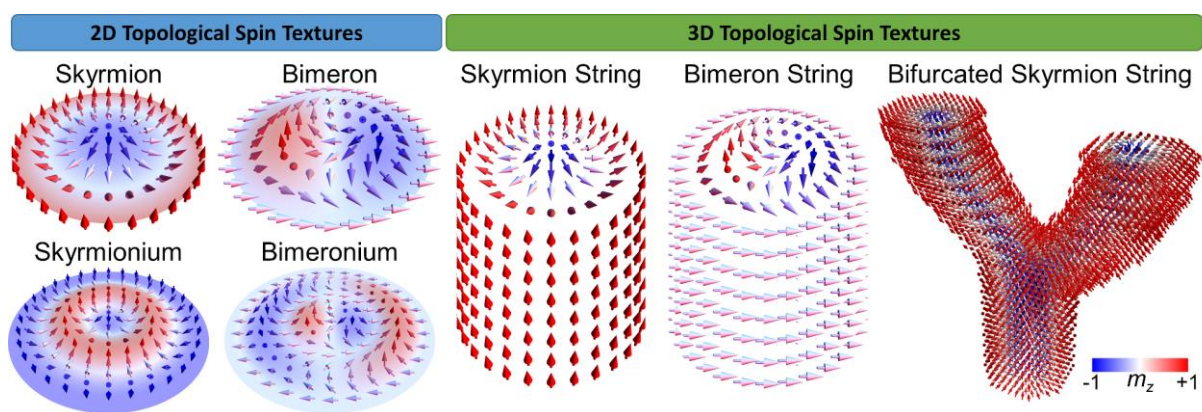


Fig. 1: Different types of two-dimensional (2D) and three-dimensional (3D) topological spin textures, including skyrmion, bimeron, skyrmionium, bimeronium, skyrmion string, bimeron string, and bifurcated skyrmion string.

# 磁気フラストレーション系における螺旋磁化構造の磁気特性

金田純、大江純一郎

(東邦大)

Numerical study on the helical magnetic structure in frustrate magnets

J. Kaneta, J. Ohe

(Toho Univ.)

## はじめに

強磁性結合と1軸 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用が共存する磁性体中では、螺旋磁化構造が形成される。さらに、螺旋軸に垂直な磁場を印加することによって、カイラルソリトン格子と呼ばれる磁化構造ができる。そこでは、ねじれた磁化構造がソリトンとしてふるまいトポロジカルに安定のため、磁化曲線はヒステリシスを示す。微少薄膜試料を用いた実験ではヒステリシスが観測されているが、バルク試料ではヒステリシスは観測されていない[1]。この違いを明らかにするため、今回は磁気フラストレーション系における螺旋磁化構造に注目し、その磁化構造の磁場による変化を数値シミュレーションを用いて解析した。

## 解析方法

$J_1$ - $J_2$ の古典ハイゼンベルグ模型を用いて、磁化のダイナミクスを表す Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式を数値的に解いた。最近接相互作用の強さ  $J_1$  を強磁性、1次元方向の次近接相互作用の強さ  $J_2$  を反強磁性にし、螺旋軸に対して垂直方向に磁場を印加することで、磁化曲線の計算を行った。有限温度の効果として、揺動散逸定理から求められるランダム磁場を印加した。

## 解析結果

Fig.1 に Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用がある場合の、螺旋磁化構造の磁化曲線を示す。増磁過程において、トポロジカルに安定なねじれた磁化構造は解消されず、ある閾磁場において、強制強磁性状態になる。減磁過程においては、ねじれた磁化構造は系の端からしか生成することができず、ゼロ磁場近くの閾磁場において螺旋磁化構造になる。一方、磁気フラストレーションに現れる螺旋磁化構造での磁化曲線を Fig.2 に示す。Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用による螺旋磁化構造の場合とは異なり、ヒステリシス構造は現れない。フラストレーション系では、ねじれた磁化構造は安定ではなく、増磁過程において連続的に解消されてしまう。減磁過程においても、ねじれた磁化構造は個々のソリトンとして生成されず、系全体に連続的に生成される。この違いは薄膜とバルク結晶を用いた実験結果の違いを説明できる可能性がある。発表では、別のフラストレーション系として、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用の向きが試料内で変化するような場合についての計算結果を報告する。

## 参考文献

1) M. Mito et al., Phys. Rev. B 97, 024408 (2018).

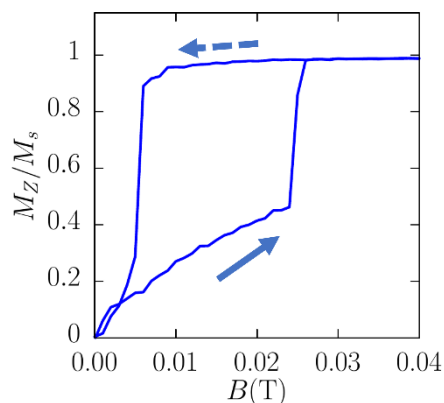


Fig.1 Magnetization curves of helical magnetization structures due to Dzyaloshinskii-Moriya interaction with temperature effect

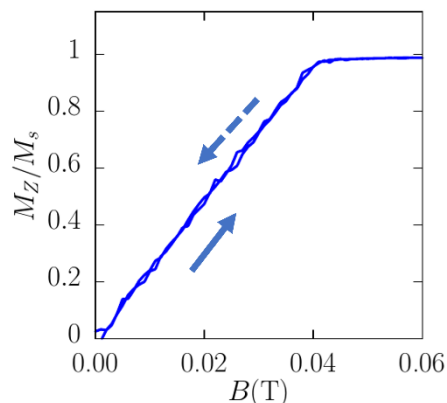


Fig.2 Magnetization curves of helical magnetization structures due to magnetic frustration.



## 円偏光によるフラストレート磁性体の磁化構造制御

宮田 麻那, 多々良 源\*, 大江 純一郎  
東邦大学, 理研 CEMS\*

Topological charge control of structure in frustrated magnets

M. Miyata, G. Tatara\* and J. Ohe  
(Toho Univ., \*RIKEN CEMS)

円偏光を利用したフラストレート磁性体のトポロジカルチャージの制御に対して、数値的研究を行なった。 $J_1$ - $J_2$ - $J_3$ 相互作用を持つ古典ハイゼンベルク模型では、トポロジカルチャージが量子化された磁気スカーミオンが形成される[1]。フラストレーション系での磁気スカーミオンはトポロジカルチャージが逆の構造が縮退していて、系の中にランダムに分布する。先行研究により、光の有効ゲージ場と伝導電子と局所スピンのs-d相互作用を考慮することで、円偏光がトポロジカルチャージとカップルすることがわかっている[2]。この効果をトポロジカル逆ファラデー効果と呼ぶ。本研究では、トポロジカル逆ファラデー効果の有効磁場の存在下で Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式を計算することによって、スピンドYNAMICSを解明した。特に、有限温度において、スカーミオン構造が点対称にならない系や、スカーミオン構造が壊れてしまう系における円偏光の効果を調べた。

LLG 方程式を数値的に解くために4次の Runge-Kutta 法を用いた。基底状態は磁化のランダム状態からの緩和過程を利用して得た。トポロジカルチャージが系の中にランダムに分布した基底状態のスカーミオン構造に円偏光を照射したときに、一部の負のトポロジカルチャージを持つスカーミオンだけがポロジカル逆ファラデー効果の影響を受け、正のトポロジカルチャージにスイッチングすることがわかった。

また、トポロジカル逆ファラデー効果の温度依存性を調べた。フラストレーション系での磁気スカーミオンは 30K 未満で出現する (Fig.1)。偏光の強度を  $L=0.4 \times 10^{-8} \text{ Tm}^2$  としたときの照射時間と温度の依存性を Fig.2 に示した。 $C/C_0$  は初期状態と照射後のスカーミオンのトポロジカルチャージの比率を表している。スカーミオンが温度によって変更をうける領域でもトポロジカルチャージを制御でき、さらにスカーミオン構造が壊れる領域でも、トポロジカルチャージ自体は系全体で制御できることが明らかになった。

計算や結果、本研究の応用先の詳細については講演にて報告する。

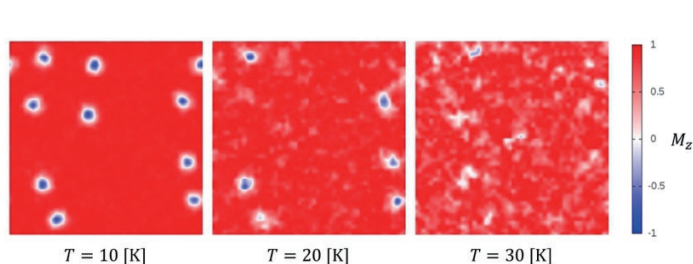


Fig.1 Temperature dependence of the skyrmion structure.

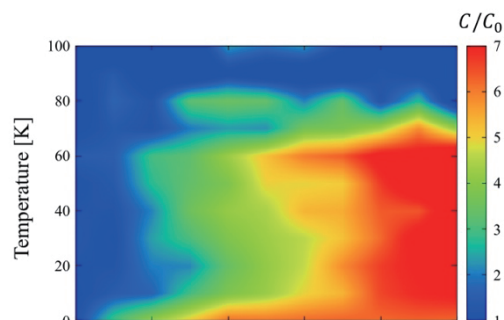


Fig.2 Temperature dependence of the control of the topological charge by using the light intensity ( $L=0.4 \times 10^{-18} \text{ Tm}^2$ ).  $C/C_0$  represents the ratio of the topological charge between  $t=0$  and after the pulse field is applied.

[1] T. Okubo, S. Chung, and H. Kawarura, Phys. Rev. Lett. **108**, 017206 (2012)

[2] K. Taguchi, J. Ohe, and G. Tatara Phys. Rev. Lett. **109**, 127204 (2012)

# ストレイントロニクスのための非対称形状セルラ・オートマトン

若林大河、後藤穰\*、鈴木義茂\*、野村光\*  
(大阪大学基礎工学研究科、\*大阪大学 CSRN)

Asymmetric cellular-automaton for straintronics

T. Wakabayashi, M. Goto\*, Y. Suzuki\*, and H. Nomura\*  
(Osaka Univ., \*CSRN Osaka)

MQCA (magnetic quantum cellular automata)とは、磁氣的に相互作用しているナノドットの配列を用いて情報の記憶・伝搬や論理演算を行う素子である。省エネルギー性の観点から注目されており、NAND/NOR 論理ゲートやシフトレジスタなどが提案されている<sup>1)</sup>。近年、このMQCAに歪みを印加することで駆動するストレイントロニクスという手法が注目を集めている<sup>2)</sup>。この手法を応用することで更なる省エネルギー化や、歪みに応答するデバイスの開発が可能となる。しかし、MQCAを歪みにより駆動する場合、従来の外部磁場駆動のMQCAと比較して情報の伝搬方向制御が難しくなるという問題がある。そこで我々は、非対称形状のナノドットを用いることで、情報の伝搬方向の制御を試みた。これまでにナノドット端部の形状に依存し磁化反転挙動が変化することが明らかとなっている<sup>3)</sup>。そこで本研究は、マイクロマグネティックシミュレータ (MuMax3<sup>4)</sup>)を用い、非対称形状のナノドットを用いたストレイントロニクスデバイスにより情報の伝搬方向が制御可能な素子を提案することを目的とした。

図1(a)にシミュレーションに用いたナノドットの形状を、図1(b)にこのナノドットを3つ用いた情報伝搬素子の概要図を示す。また図2(a), (b)に2つの異なる初期磁化状態を示す。図2(c), (d)に、図2(a), (b)のそれぞれの初期磁化状態に対して、x軸から50度の向きに57 mTの一樣な補助磁場を印加し、45度の向きに歪みをかけた際の磁化状態を示す。ここで、ナノドットの磁化のx成分の平均値が0よりも大きい場合1、それ以外を0とする。右向きこの結果から、非対称形状のナノドットを持つ事で、一方向からの情報の影響を受けやすくなっていることが明らかとなった。本手法を用いることで、ストレイントロニクスデバイスにおいても情報の伝搬方向を制御可能となる。

本研究は JST, CREST Grant Number JPMJCR20C6 の助成を受けて行われました。

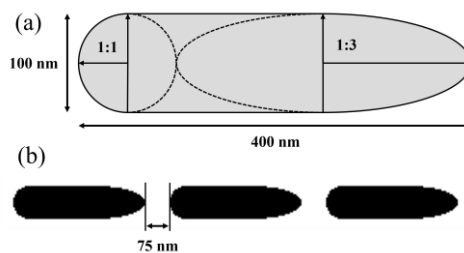


Fig.1 Schematic illustrations of (a) asymmetric nanomagnet and (b) MQCA wire with asymmetric nanomagnets.

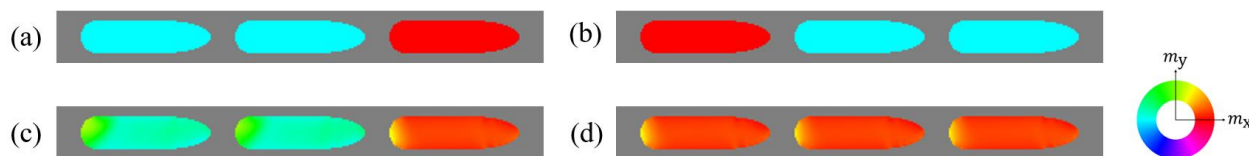


Fig.2 Magnetization state of initial state with binary state of (a) (0, 0, 1) and (b) (1, 0, 0). Simulation results. (c), (d) Relaxed magnetization state under an uniform magnetic field and strain with initial state of (a) and (b), respectively.

## 参考文献

- 1) H. Nomura et al., Appl. Phys. Express 10, 123004 (2017).
- 2) N. D'Souza et al., Nano letters 16, 1069 (2016).
- 3) J. Li et al. AIP Advances 11, 045010 (2021).
- 4) Vansteenkiste et al., AIP Adv. 4, 107133 (2014).

# 光磁気記録に関する基礎および応用研究

中川活二  
(日本大)

Fundamental Research for Magneto-Optical Recording and  
Combined Application System of Magnetics and Optics

K. Nakagawa  
(Nihon Univ.)

## 磁性ガーネットを用いた光磁気記録

磁気バブル材料として用いられていた磁性ガーネットの高保磁力化と可視光レーザを使った光熱磁気書込みを実施し<sup>1)</sup>、可視域で半透明な材料でファラデー効果を利用する観点からその後の多層膜波長多重再生の発想につながった。ガーネット膜は、図1に示すような磁気光学効果（ファラデー回転角 $\theta_F$ ）と光吸収率を持ち、吸収率 $\alpha$ が高い短波長域で光熱磁気記録の記録感度が高い。一方、波長500 nmから長波長に渡って磁気光学効果が高く、再生信号増大が期待される。長波長側での光吸収率が低いので膜厚を厚くすればそれだけ大きなファラデー回転角が得られ、その特性は性能指数 $2\theta_F/\alpha$ で決まる。総合的には、膜厚500～600nm近傍で、膜厚を光の侵入の深さ程度にすることで、記録感度と再生信号強度のバランスの良い特性となった。

しかしながら、単結晶基板は高価であり、一方ガラス基板では多結晶材料である事に起因するノイズ低減が難しい。ガラス基板上での熱分解法を用いた多結晶ガーネット薄膜を作製し、その添加材料による薄膜の表面形態、下地層を用いたノイズ改善検討、結晶化モデル検討や結晶粒子の観察を行い、結晶粒子微小化を試みた<sup>2-4)</sup>。

## 多層膜波長多重再生

磁性ガーネットが可視域で半透明であるが、当時製品化されていたMOディスクに使われているTbFeCoも、膜厚を選択することによってガーネット同様に半透明膜として利用できる。この観点で、1990年代に多層膜の多値情報を波長多重により同時再生する検討を行った<sup>5-10)</sup>。現在、多層の磁気記録情報を複数の周波数のマイクロ波を用いた磁気共鳴で多層再生する研究が進んでいるが、これと同様の発想で、光やマイクロ波を記録膜に照射してその応答を見る場合は、どちらも異なる周波数を使える点がメリットと言える。また、光磁気記録では、磁気超解像<sup>11)</sup>と呼ばれる手法が活用されており、これも記録情報とは異なる層を光で検出することを活用した優れた方法である。この発展形では、MAMMOSと呼ばれる微小記録磁区を拡大して再生する手法<sup>12)</sup>も研究が進んだ。更にMAMMOSの手法を使って2層の記録層を再生する研究も行われた<sup>13,14)</sup>。

## 熱アシスト磁気記録

光をレンズで集光する方法では、波長のオーダーである数百nmまでしか光スポットを絞ることができないが、局在プラズモンを利用するとnmのオーダーまでエネルギーを局在化できる。一方、局在されたプラズモンを近接場生成電極で絞っても、金属磁性記録膜が連続膜の場合は局在プラズモンの電界が金属膜内に広がってしまい、微小記録に適さない。これに対して、記録膜を粒子状にすると、粒子そのもので局在プラズモンが増強されるため、効果的に記録領域にエネルギーを集中でき、熱的アイソレーションもできる<sup>15-17)</sup>。また、円偏光による高速の光記録の研究<sup>18)</sup>が行われ、局所プラズモンを利用した円偏光生成の研究も行われた。

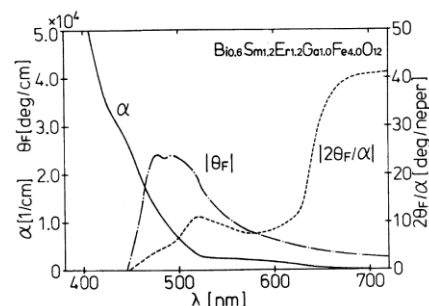


Fig. 1 Faraday rotation  $\theta_F$  and absorption  $\alpha$  spectrum at room temperature<sup>1)</sup>.

## 参考文献

- 1) 井上文雄、中川活二、伊藤彰義、川西健二：「磁性ガーネット薄膜の光熱磁気書込み特性」日本応用磁気学会誌, Vol. 5, No.2, 133-136 (1981).
- 2) K. Nakagawa, K. Odagawa, and A. Itoh, "Crystal growth process of Rb-doped iron garnet films for M-O recording prepared by pyrolysis," Jap. J. Appl. Phys., Vol. 29, No. 9, 1690-1395 (1990).
- 3) K. Nakagawa, K. Odagawa, and A. Itoh, "Rb doping effects on microstructure and crystallization kinetics of garnet films for M-O recording prepared by pyrolysis," J. Magn. Magn. Mat., Vol. 104-107, 1007-1008 (1992).
- 4) K. Nakagawa, S. Kurahashi, and A. Itoh, "Uniaxial anisotropy of double-layered garnet films and magneto-optical recording characteristics," J. Appl. Phys., Vol. 75, No. 10, 7096-7098 (1994).
- 5) K. Nakagawa, and A. Itoh, "Multi-wavelengths read-out for multi-valued MO recording," J. Magn. Soc. Jpn., Vol. 20, Suppl. S1, 73-78 (1996).
- 6) K. Nakagawa, and A. Itoh, "Multi-valued MO recording and multi-wavelength readout," IEEE Trans. Magn., Vol. 33, No. 5, 3235-3237 (1997).
- 7) K. Nakagawa, A. Itoh, K. Shimazaki, M. Yoshihiro, and N. Ohta, "Multi-wavelength read-out for double layered MO disk," J. Magn. Soc. Jpn., Vol. 22, Suppl. S2, 39-42 (1998).
- 8) K. Nakagawa, A. Itoh, K. Shimazaki, M. Yoshihiro, and N. Ohta, "Double-wavelength readout and optical head for double-layered MO disk," J. Magn. Soc. Jpn., Vol. 23, Suppl. S1, 217-220 (1999).
- 9) K. Nakagawa, A. Itoh, K. Shimazaki, M. Yoshihiro, and N. Ohta, "High SNR readout method of double layered MO disk with single wavelength laser beam," J. Magn. Soc. Jpn., Vol. 23, Suppl. S1, 221-224 (1999).
- 10) K. Nakagawa, A. Itoh, R-J. Zhang, Y. X. Zheng, L-Y. Chen, "Wavelength dependence of optical characteristics for TbFeCo and MO disk structure for double-wavelength readout MO disk," IEEE Trans. Magn., Vol. 35, No. 5, 3124-3126 (1999).
- 11) 金子正彦、中沖有克, 「磁気超解像による光磁気ディスクの高密度化」, 応用物理、Vol. 64, No. 5, 445-450 (1995).
- 12) 高木直之、三谷健一郎、野口仁志、山口淳、石田弘毅、久米実、栗野博之、関根正樹、谷学、太田憲雄, 「MAMMOS による高密度光記録」, 映像情報メディア学会技術報告、24.22 巻 (2000).
- 13) A. Itoh, N. Ohta, T. Uchiyama, H. Awano, S. Imai, O. Ishizaki, M. Tani, N. Iketani, T. Mieda, A. Takahashi, K. Uchihara, M. Nakata, K. Tezuka, K. Nakagawa, and A. Tsukamoto, "Double MAMMOS: 3-dimentional MO recording," Trans. Magn. Soc. Japan, Vol. 4, 135-140 (2004).
- 14) K. Nakagawa, and A. Itoh, "Quadri-value MO recording layers for double-MOAMMOS readout method," Trans. Magn. Soc. Japan, Vol. 4, 146-151 (2004).
- 15) K. Nakagawa, J. Kim, and A. Itoh, "Finit difference time domain simulation on near-field optics for granular recording media in hybrid recording," J. Appl. Phys., Vol. 101, 09H504 (2007).
- 16) K. Kudo, Y. Moriyama, J. Kim, K. Nakagawa, and A. Itoh, "Effects of flying height and compositions of antenna and media on near-field optics for thermally assisted magnetic recording," J. Magn. Soc. Jpn. Vol. 32, No. 2-2, 106-109 (2008).
- 17) Y. Moriyama, Y. Ashizawa, K. Nakagawa, T. Sako, A. Tsukamoto, and A. Itoh, "Heat conduction analysis of magnetic recording media for thermally assisted magnetic recording," J. Magn. Soc. Jpn., Vol. 35, 517-520 (2009).
- 18) C. D. Stanciu, F. Hansteen, A. V. Kimel, A. Kirilyuk, A. Tsukamoto, A. Itoh, and Th. Rasing, "All-optical magnetic recording with circularly polarized light," Phys. Rev. Lett., Vol. 99, 047601 (2007).
- 19) K. Nakagawa, Y. Ashizawa, S. Ohnuki, A. Itoh, and A. Tsukamoto, "Confined circularly polarized light generated by nano-size aperture for high density all-optical magnetic recording," J. Appl. Phys., Vol. 109, 07B735 (2011).
- 20) T. Ota, Y. Ashizawa, K. Nakagawa, S. Ohnuki, H. Iwamatsu, A. Tsukamoto, and A. Itoh, "Dependence of circularly polarized light excited by plasmon aperture on relative position to magnetic particles for all-optical magnetic recording," J. Magn. Soc. Jpn., Vol. 36, 66-69 (2012).

## 磁性ナノ構造におけるスピン物性の研究

小野輝男  
(京大化研)

Study on spin-related properties in magnetic nanostructures

Teruo Ono

(Institute for Chemical Research, Kyoto University)

磁気学会学術講演会にて貴重な機会をいただきありがとうございます。折角の機会ですので、自分の研究の変遷を振り返りながら現在の研究を紹介できたらと思います。

私は、人工格子の巨大磁気抵抗 (GMR) 効果が発見された直後に、京都大学の新庄輝也先生の研究室に修士課程で配属されました。様々な物質を組み合わせる人工格子を作製し新規物性を開拓するという機運に満ちた時代でした。修士課程では、当時数グループのみが研究していたトンネル磁気抵抗効果を研究課題として与えられましたが、全くトンネル磁気抵抗効果は得られませんでした。同期の東北大宮崎研の矢迫君が学部4年生の時に既に室温で数%の変化を得ていた時期でした。私の修士論文は非線形性のない I-V 特性をたくさん並べたものとなってしまいました。

博士課程となって暫くした頃、新庄先生から Si 基板に溝を作ることが出来るらしいということを知り、その場で微細加工 Si 基板上に人工格子を作製して3次元化することを提案しました。紆余曲折はありましたが、なんとか微細加工基板上の人工格子の特異な GMR 効果で学位を取得することが出来ました[1]。学位が目途がついた頃かと思いますが、新庄先生から、数百万円あったら何がしたいかと尋ねられ、ナノワイヤやナノドットを作りたいと答えました。たくさんのパターンを作図して業者さんにパターン付きのウェハを作製いただき、リフトオフで試料作製を行いました。その中の一つを利用して GMR 効果で磁壁の生成と移動の検出をすることができました[2]。

慶応義塾大学の宮島英紀先生の研究室の助教として採用いただいた時に、新庄先生の重点領域「微小領域の磁性と伝導」が始まり、電子線描画装置を使った本格的な磁性体の微細加工に取り組むことになりました。宮島先生の計らいで横浜と京都を往復する充実した生活を送ることができました。電子線描画装置を使った磁性体の微細加工にはネガティブな意見の方もいらっしゃったとのことですが、何とか試料作製や測定法を確立して、単一磁壁移動のその場観察や磁気円盤中の磁気コアを見つけたりすることができました[3,4]。その後、大阪大学的那須三郎先生の研究室でお世話になり、磁壁や磁気コアなどの非一様なスピン構造と伝導電子の相互作用の研究を行いました[5,6]。

京都大学で研究室を担当するようになってからもたくさんの方の助けを借りて何とかやっています。最近では、人工強磁性体を使った3次元メモリの研究も始めました[7]。学位論文の主題であった人工格子の3次元化を実現し、磁気応用に貢献したいと考えています。今後ともよろしく願いいたします。

### 参考文献

- 1) T. Ono and T. Shinjo, J. Phys. Soc. Jpn, 64 (1995) 363.
- 2) T. Ono, H. Miyajima, K. Shigeto and T. Shinjo, Appl. Phys. Lett. 72 (1998) 1116.
- 3) T. Ono, H. Miyajima, K. Shigeto, K. Mibu, N. Hosoito and T. Shinjo, Science 284 (1999) 468.
- 4) T. Shinjo, T. Okuno, R. Hassdorf, K. Shigeto, T. Ono, Science 289 (2000) 930.
- 5) A. Yamaguchi, T. Ono, S. Nasu, K. Miyake, K. Mibu, T. Shinjo, Phys. Rev. Lett. 92 (2004) 077205.
- 6) K. Yamada, S. Kasai, Y. Nakatani, K. Kobayashi, H. Kohno, A. Thiaville, T. Ono, Nature Materials 6, (2007) 269.
- 7) Y. M. Hung, T. Li, R. Hisatomi, Y. Shiota, T. Moriyama, T. Ono, J. Magn. Soc. Jpn. 45 (2021) 6.

# 高機能磁性薄膜のナノ組織制御に関する研究

高橋有紀子

(物質・材料研究機構)

Microstructure control for magnetic thin films with high functionality

Y.K. Takahashi

(National Institute for Materials Science)

## はじめに

多くの磁性体はその物性値だけでなく微細組織に強く依存する保磁力などの微細組織敏感量が実用デバイスとして重要なパラメータとして利用されている。そのようなデバイスの高性能化には、微細組織を適切に制御する必要がある。ここでは、私が取り組んできたハードディスクドライブ(HDD)の熱アシスト磁気記録用の FePt 媒体および新規永久磁石の開発について紹介したい。

## 熱アシスト FePt 磁気記録媒体の組織制御と磁化ダイナミクス

2008年に我々が世界に先駆けて開発した FePt グラニューラ媒体[1]は、その後メーカーの精力的な実用化研究が実り、2020年12月に Seagate が製品化を実現した。実用化には導電性下地層の開発[2]、柱状組織の実現[3]、面内ヒステリシスの低減[4]、分散の低減などの多くの課題を抱えており、それぞれの課題に対して我々は材料科学的な観点から貢献をしてきた。4 Tbit/in<sup>2</sup>を実現するためには、4 nm の粒子サイズ・5 nm の粒子間距離(粒界相の幅は 1 nm)の FePt 粒子をサイズ分散 15%以下に制御した微細組織と高い磁気特性が必要とされている。このレベルの組織制御は、我々の知識と経験に基づいたプロセス開発では太刀打ちできず、データ科学を利用した媒体開発を進めている[5]。

磁化挙動を理解するために重要なパラメータとしてダンピングが挙げられる。STT-MRAM では、磁化反転電流がダンピングに依存するため、その評価が精力的に進められている。FePt 磁気記録媒体においても、熱アシスト磁気記録の際の磁化挙動が理解できれば、必要最低限のエネルギーアシストで高効率に磁化反転させるための材料設計が可能になる。この材料設計の際に必要なのがダンピングである。FePt のように高い異方性を持つ材料はその強磁性共鳴周波数がサブ THz になるため、ダンピング評価のための磁化ダイナミクス測定は時間分解磁気光学カー効果(TRMOKE)を用いる。TRMOKE は繰り返し測定のため数ミリ秒毎にサンプルの磁化状態を初期化する必要がある。FePt のように異方性が高いサンプルの場合、初期化に必要な磁場が非常に高い。我々は TRMOKE の光路に超電導マグネットを導入して強磁場中での測定を可能にした[6]。

新規エネルギーアシスト磁気記録方式として、円偏向誘起磁化反転が挙げられる。GdFeCo などのフェリ磁性体ではシングルパルスでの極性に依存した磁化反転が確認されているが、FePt のような強磁性体では磁化反転に複数のパルスが必要であることがわかっている。円偏向誘起磁化反転を HDD 技術として応用するにはシングルパルスでの磁化反転が必須である。そこで、我々は交換結合を用いた磁化反転確率の改善に取り組んでいる。GdFeCo/Ru/CoPt の 3 層膜において、GdFeCo と CoPt が反強磁性的な結合をするときに、CoPt のシングルパルスによる磁化反転確率が 12%から 61%へ増加することが明らかになった[7]。

講演では、データ科学を利用した FePt 磁気記録媒体の開発、FePt の磁化ダイナミクス測定、交換結合を利用した CoPt の円偏向誘起磁化反転について紹介したい。

## 新規永久磁石材料の開発

カーボンニュートラルの政府方針のもと自動車をはじめ、様々な輸送機器の電動化により、高性能磁石の応用範囲は急速に拡大している。資源的な観点で大量消費可能な高性能磁石として Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 系磁石は今後も主役であり続けるが、磁石応用製品の小型軽量化を可能とする高特性磁石の開発が求められている。我々は Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 系磁石を超える磁石材料として SmFe<sub>12</sub> 系材料に着目し研究を行ってきた。その結果 Sm(Fe<sub>0.8</sub>Co<sub>0.2</sub>)<sub>12</sub> は室温での磁化 1.78 T、室温での異方性磁界 8.2 T、キュリー点 859 K と永久磁石材料として重要な物性値がいずれも Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B よりも高く、次世代磁石材料としてのポテンシャルがあることを見出した[8,9]。永久磁石として応用するには 1 T を超える高い保磁力が必要である。CuGa を粒界拡散[10]、B をコスパッタ[11]することにより、それぞれ 0.8 T、1.2T の高い保磁力を得た。講演では、Sm(Fe<sub>0.8</sub>Co<sub>0.2</sub>)<sub>12</sub> 薄膜の微細組織制御についても紹介したい。

## 参考文献

- (1) A. Perumal *et al.*, *APEX* **1**, 101301 (2008). (2) B. S. D. Ch. S. Varaprasad, *et al.*, *J. Appl. Phys.* **113**, 203907 (2013). (3) B. S. D. Ch. S. Varaprasad, *et al.*, *IEEE Trans. Magn.* **51**, 3200904 (2015). (4) J. Wang, *et al.*, *Acta Mater.* **166**, 413-423 (2019). (5) A. Bolyachkin, *et al.* *Acta Mater.* **227**, 117744 (2022). (6) Y. Sasaki *et al.*, to be submitted (2022). (7) J. Wang, *et al.*, *J. Phys.D:Applied Phys.* **53**, 475002 (2020). (8) Y. Hirayama, *et al.*, *Scr. Mater.* **138**, 62 (2017). (9) D. Ogawa, *et al.*, *J. Magn. Magn. Mater.* **497**, 165965 (2020). (10) D. Ogawa, *et al.*, *Scr. Mater.* **164**, 140 (2019). (11) H. Sepeshri-Amin, *et al.*, *Acta Mater.* **194**, 337 (2020).

## MEMS 応用を鑑みた Si/ガラス膜/Nd-Fe-B 系磁石膜の開発

樋口晃太\*, 福田樹, 山下昂洋, 柳井武志, 中野正基, 福永博俊 (長崎大学)

Preparation of Si/glass film/Nd-Fe-B film applied to MEMS

K. Higuchi\*, I. Fukuda, A. Yamashita, T. Yanai, M. Nakano, and H. Fukunaga (Nagasaki Univ.)

## はじめに

すでに我々は、数 10  $\mu\text{m}/\text{h}$  の成膜速度を有する PLD(Pulsed Laser Deposition)法を用い、MEMS 応用に向けて Nd (or Pr)-Fe-B 系磁石膜を Si やテンパックスガラス基板上に 0.1 mm 厚以上に作製する研究に取り組み、磁石膜より発生する磁界を有効に利用するため、ガラス基板上の試料におけるマイクロ着磁を実現してきた<sup>[1]</sup>。更に最近、磁石膜と Si 基板の界面にガラス膜 (下地層) を挿入し、Si 基板上の Nd-Fe-B 系磁石膜においてもマイクロ着磁(交番着磁・ハルバツハ着磁)が可能である事を明らかにした<sup>[2]</sup>。しかしながら、ガラス下地層を挿入した Nd-Fe-B 系磁石膜の磁気特性は、既報の金属 (Ta, Fe, ステンレス等)、熱酸化膜付き Si 基板、テンパックスガラスといった基板上の試料の磁気特性に比べ劣る傾向が観察された。

本稿では、熱処理条件や Nd 含有量と共に、磁石膜やガラス下地層 (膜) の膜厚やその膜厚比が磁気特性に及ぼす影響を検討し、磁気特性の向上を図ったので報告する。

## 実験方法

約 6.5 rpm で回転させた松浪ガラス(S1111)や  $\text{Nd}_{2.2}\text{Fe}_{14}\text{B}$  合金といった各ターゲットに、波長 355 nm の Nd : YAG レーザーを照射し、ターゲット基板間距離を 10 mm として自然酸化膜付き Si 基板上にガラス下地層と磁石膜を様々な膜厚 (成膜時間) で作製した。成膜直後の磁石膜はアモルファス構造を有したため、時間 4.0 s (固定) でパルス熱処理を施した後、印加磁界 7 T のパルス着磁を行い、最大印加磁界 2.5 T のもと VSM で磁気特性を評価した。膜厚はマイクロメータ、組成は SEM-EDX で測定した。

## 実験結果と考察

図 1 にガラス下地層 (ガラス膜) 付き Nd-Fe-B 系磁石膜(ガラス膜:12~114  $\mu\text{m}$  厚, 磁石膜:15~60 $\mu\text{m}$  厚)の保磁力と膜厚比の関係を示す。ここで膜厚比とは、(ガラス膜の厚み) / (磁石膜の厚み) である。Nd 含有量 14.5~16.5 at.% とした際、膜厚比:2 以下の範囲において、500 kA/m を超える保磁力が発現し、保磁力向上にはガラス膜に比べ磁石膜の膜厚を厚くすることが有効であるとわかった。この現象の詳しいメカニズムは、今後の検討課題である。図 2 に既報のマイクロ着磁を施した試料<sup>[2]</sup>と本実験で最も大きな保磁力を得た試料の J-H ループを示す。上述の膜厚比以外に Nd 含有量や熱処理条件も吟味する事で、磁気特性が改善できた。

本研究を通じて、ガラス膜と磁石膜の膜厚比が、磁気特性向上に対し重要なパラメータの一つである事が示唆された。ガラス下地層 (膜) は、①磁石膜と Si 基板間の異なる線膨張係数に伴う応力の緩和や②Si 基板上でのマイクロ着磁を可能にするといった働きがある。今後、①・②を含め、総合的に検討する必要がある。

参考文献 [1] A. Yamashita *et al.*, *IEEE TRANSACTIONS ON MAGNETICS*, **53**, #2100104 (2017).

[2] D. Han *et al.*, *IEEE MAGNETICS LETTERS*, **11**, #8103804 (2020).

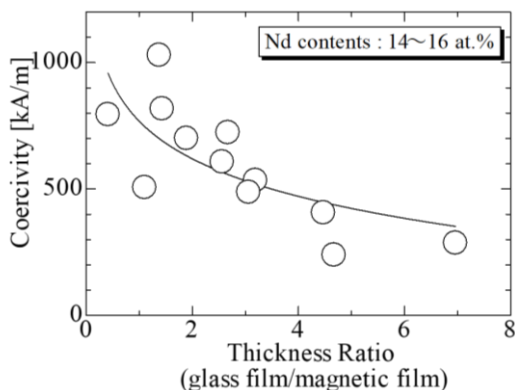


Fig. 1 Coercivity of samples as a function of thickness ratio.

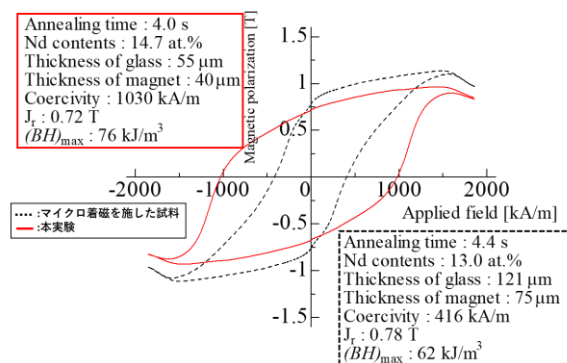


Fig. 2 Comparison of J-H loops of two samples.

# 磁気粒子イメージング用磁場発生装置の検出コイルの検討

古川 忠弥、清野 智史、中川 貴  
(大阪大学 大学院工学研究科)

Study of detection coil of magnetic field generator for magnetic particle imaging

A.Furukawa, S.Seino, T.Nakagawa

(Graduate school of Engineering, Osaka University)

## はじめに

近年、超常磁性酸化鉄ナノ粒子を画像化する磁気粒子イメージング法（以下 MPI）が新しい医療用画像診断技術として注目されている<sup>1)2)</sup>。しかしながら、核磁気共鳴法のような人体全身に適用可能な MPI 装置は実現していない。既往研究の多くは、検出コイル内部の対象を回転させてサイングラムを生成し、スキャンを実施する手法を検討している。しかし、人体への適応を考えると、人体を回転させること、大規模な装置になることが課題となる。そこで、回転操作不要かつ検出コイル内部に対象物を挿入しない構成を検討した。本稿では、その検出コイル構成の検討内容について述べる。

## 実験方法

4 パターンの検出コイル及び回路構成のシステム構成図を Fig.1 に示す。(a)は1つのコイルを用いて測定する構成、(b)は重畳磁場によるノイズを低減させる構成、(c)は検出領域を拡大させる構成、(d)は S/N 比を向上させる構成である。本実験に用いた検出コイルは 3320 巻を使用し、交流磁場振幅は検出範囲において約 5.6 kA/m、磁場勾配は約 0.13 T/m である。トレーサは 200  $\mu$ L の Ferucarbotran の磁気分離品（以下 FcM）を用いた。Fig.1 の空隙右端を原点とし、20 mm から 80 mm の範囲に 5 mm 間隔で FcM を移動させ、各位置において 10 回測定を行った。

## 実験結果

得られた結果の一例を Fig.2 に示す。実線は FcM を設置した場合の各データの平均の推移を示し、破線は FcM を設置しない場合の平均を示す。(a)においては交流磁場によるノイズが大きく実線と破線の差がほとんどみられない。(b)において、ノイズを低減させることができたため、(a)に比べ破線の強度が低減している。(c)において、検出コイルを両側に設置したため検出可能領域が拡大しているが、回路のインピーダンスが上昇し、実線の強度が低下している。(d)において、S/N 比を向上させることができたため、(c)に比べ実線の強度が上昇している。以上の結果から(d)が本装置において、比較した手法の中で最適であることが明らかになった。

## 参考文献

- 1) S. Choi *et al.* *Sci. rep.* **10**, 11833 (2020).
- 2) Zheng, B. *et al.* *Theranostics* **6**(3), 291 (2016).

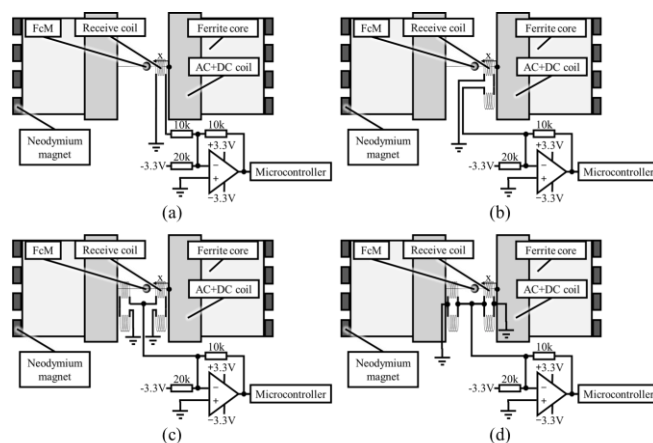


Fig.1 Configuration diagram of system

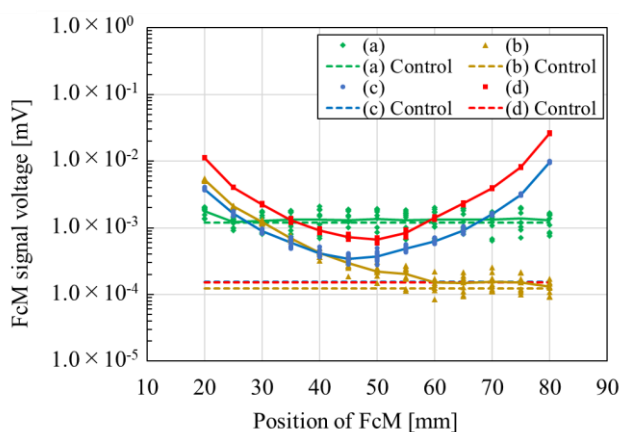


Fig.2 Magnetization signal of FcM at each position



# Cu<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> における Cu の Zn 部分置換による磁歪特性への影響

藤原 康太、小杉 静花、藤枝 俊、清野 智史、中川 貴  
(大阪大学 大学院工学研究科)

Effect of partial substitution of Zn for Cu on magnetostrictive properties of Cu<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>

K. Fujiwara, S. Kosugi, S. Fujieda, S. Seino, T. Nakagawa  
(Graduate School of Engineering, Osaka Univ.)

## はじめに

近年、磁歪材料の振動発電やアクチュエータへの応用研究が活発化している。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ことが知られている<sup>1)</sup>。Co の Cu 部分置換により磁歪特性が向上すること、また、Co の Zn 部分置換により歪みの磁場感受率が向上することが報告されている<sup>2,3)</sup>。本研究では、Cu<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の Cu の Zn 部分置換による磁歪特性への影響を明らかにすることを目的とする。

## 実験方法

CoO、Cu<sub>2</sub>O、ZnO および α-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を出発原料として用いた。それらの混合粉をペレット化したのち、950 °C の大気雰囲気下で 20 時間の熱処理を施して Zn<sub>x</sub>Cu<sub>0.5-x</sub>Co<sub>0.5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 試料を作製した。結晶構造を調べるため、Cu-Kα 線での X 線回折測定を行った。磁歪特性の評価には、歪みゲージを用いた。

## 実験結果

Zn<sub>x</sub>Cu<sub>0.5-x</sub>Co<sub>0.5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の X 線回折パターンを Fig. 1 に示す。x = 0.1 の試料は立方晶の回折パターンのみを示した。Cu の Zn 部分置換後においても立方晶スピネル構造の単相が得られた。その歪み ΔL/L の磁場依存性を Fig. 2 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。ΔL/L は平行磁場印加 (H<sub>∥</sub>) により減少し、垂直磁場印加 (H<sub>⊥</sub>) により増加する。つまり、比較のために示した x = 0.0 (Cu<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>) と同様に x = 0.1 において負の磁歪が生じる。また、x = 0.1 の最大印加磁場における ΔL/L から求めた飽和磁歪定数は -122 ppm であった。この絶対値は x = 0.0 の値 (-320 ppm) よりも小さい。しかし、x = 0.1 において ΔL/L の絶対値が最大となる磁場は約 3.5 kOe であり、x = 0.0 の値よりも低磁場である。x = 0.0 と比較して、x = 0.1 は低磁場で高い歪みの磁場感受率を示すことが明らかになった。

## 参考文献

- 1) R. M. Bozorth, et al., Phys. Rev. **99** (1955) 1788.
- 2) 藤枝 俊 他, 日本金属学会 2022 年春期講演大会概要集 277.
- 3) P. N. Anantharamaiah, et al., Mater. Sci. Eng. B **266** (2021) 115080.

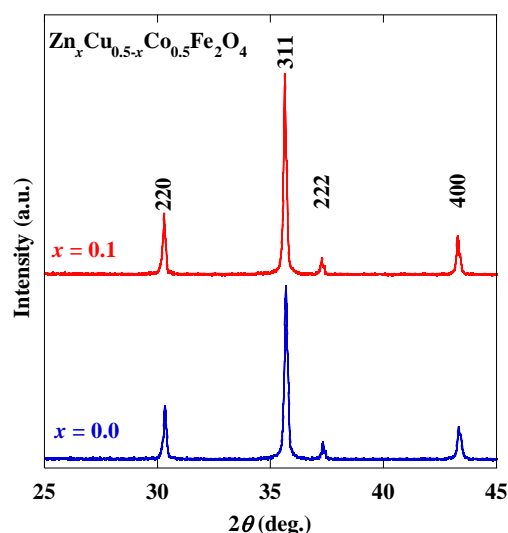


Fig. 1 X-ray diffraction patterns of Zn<sub>x</sub>Cu<sub>0.5-x</sub>Co<sub>0.5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> with x = 0.0 and 0.1.

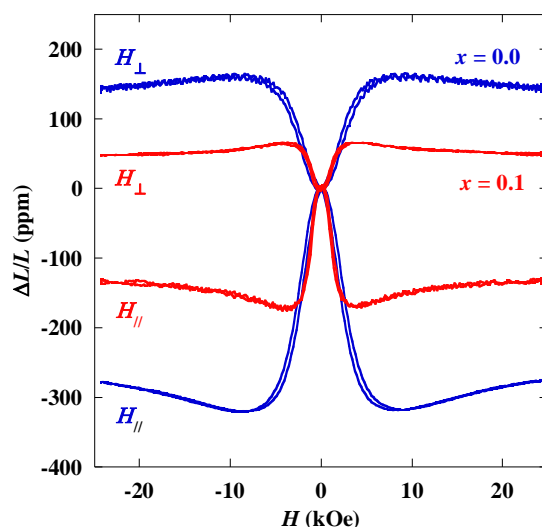


Fig. 2 Magnetic field dependence of strain ΔL/L of Zn<sub>x</sub>Cu<sub>0.5-x</sub>Co<sub>0.5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> with x = 0.0 and 0.1.

## D0<sub>19</sub>-Mn<sub>3</sub>Sn/Pt 二層膜における スピン軌道トルク磁化反転のパルス幅依存性

小林裕太<sup>1</sup>、塩田陽一<sup>1</sup>、成田秀樹<sup>1</sup>、小野輝男<sup>1,2</sup>、森山貴広<sup>1,2,3</sup>  
(<sup>1</sup>京大化研、<sup>2</sup>京大 CSRN、<sup>3</sup>JST さきがけ)

Pulse-width dependence of spin-orbit torque switching in D0<sub>19</sub>-Mn<sub>3</sub>Sn/Pt thin films  
Yuta Kobayashi<sup>1</sup>, Yoichi Shiota<sup>1</sup>, Hideki Narita<sup>1</sup>, Teruo Ono<sup>1,2</sup>, and Takahiro Moriyama<sup>1,2,3</sup>  
(<sup>1</sup>ICR, Kyoto Univ., <sup>2</sup>CSRN, Kyoto Univ., <sup>3</sup>PRESTO, JST)

### はじめに

近年カイラル反強磁性体の磁気構造をスピン軌道トルク(SOT)により制御することが可能であり、そのダイナミクスが LLG 方程式に基づくシミュレーションでよく記述されることが示された[1,2]。磁化反転の物理描像をより詳細に得るためには、LLG 方程式に基づくダイナミクスと同様に熱アシスト磁化反転の理解も重要である。今回我々は、D0<sub>19</sub>-Mn<sub>3</sub>Sn の熱アシスト SOT 磁化反転を電流パルス幅依存性から調査し、熱安定指数の評価を行った。

### 実験方法

スパッタリング法を用いて熱酸化シリコン基板上に Ta (2 nm)Ru (2 nm)/Mn<sub>3</sub>Sn (40 nm)/Pt (7 nm)を成膜した。D0<sub>19</sub>相を誘起するために Mn<sub>3</sub>Sn 層の成膜直後に 500°Cで in-situ アニールを 1 時間行った。作製した多層膜をフォトリソグラフィと Ar イオンミリングによりチャンネル幅 5 μm のホールバー状に加工した。面内にバイアス磁場をかけた状態で、パルス電流に対するホール抵抗の変化をいくつかのパルス幅  $t_p$  について測定した(Fig. 1 (a))。

### 実験結果

Fig. 1 (b)に測定結果を示す。パルス電流に依存して明確なヒステリシスが見られている。臨界電流  $\pm I_{critical}$  の  $\ln(t_p/t_0)$  に対するプロットを Fig.1 (c)に示す。 $\pm I_{critical}$  は  $\ln(t_p/t_0)$  に対して線形に変化している。これはスピントルク磁化反転が熱的にアシストされていることを示唆するものである。 $+I_{critical}$  の傾きから熱安定指数  $\Delta = 133.7 \pm 0.3$  (300 K)を得た。これは典型的な強磁性体を用いた SOT 磁化反転デバイスの熱安定指数と同等の値である [3]。講演では本結果の詳細について議論する。

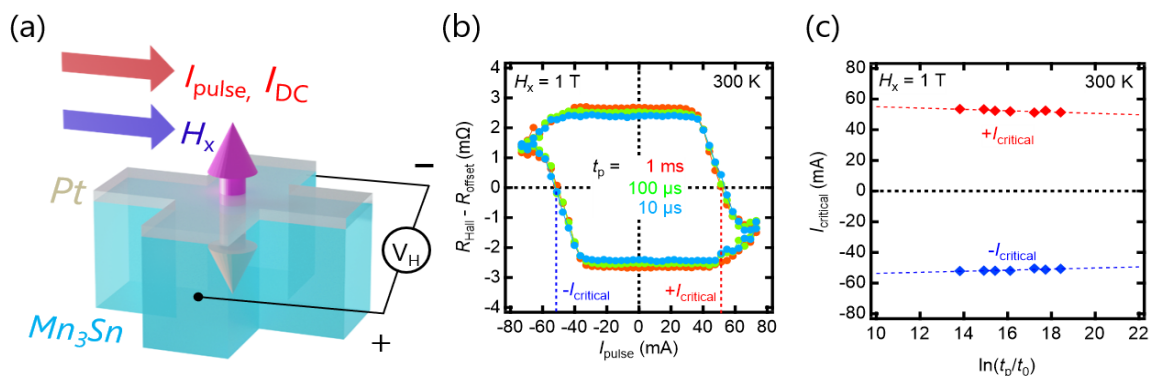


Figure 1 (a) Schematic illustration of the SOT switching measurement set up. The purple arrows represent the ferroic ordering of a magnetic octupole. (b) The constant background subtracted transverse resistance  $R_{Hall} - R_{offset}$  as a function of  $I_{pulse}$  with  $t_p = 1$  ms, 100  $\mu$ s and 10  $\mu$ s. In-plane magnetic field and measurement temperature were set to 1 T and 300 K, respectively. (c)  $I_{critical}$  as a function of  $\ln(t_p/t_0)$  with  $H_x = 1$  T at 300 K.  $1/t_0$  is an intrinsic attempt frequency assumed to be  $t_0 \approx 1$  ns just for the form's sake.

### 参考文献

[1] T. Tsai *et al.*, *Nature* **580**, 608 (2020). [2] Y. Takeuchi *et al.*, *Nat. Mater.* **20**, 1364 (2021). [3] W. Liao *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **117**, 182402 (2020).

## fcc 構造を有する $\text{Fe}_2\text{MnGa}_x$ 合金の作製と磁気特性の Ga 組成依存性

### Dependence of magnetic properties on Ga composition for fcc - $\text{Fe}_2\text{MnGa}_x$ alloys

東北学院大学工、○佐々木嘉葵 (M2)、嶋敏之、土井正晶

Tohoku Gakuin Univ., ○Y. Sasaki (M2), T. Shima and M. Doi

#### 【緒言 Introduction】

$\text{D0}_{22}$  型 Mn 系材料では高い磁気異方性や高い保磁力が確認されているが、永久磁石としては飽和磁化が低いことが欠点である<sup>[1][2]</sup>。当研究室では bcc 系  $\text{Fe}_2\text{MnGa}$  において、飽和磁化  $M_s = 24.0$  emu/g と低く、低保磁力  $H_c \sim 0$  kOe と確認されている。 $\text{Fe}_2\text{MnGa}$  より Ga がリッチの  $\text{Fe}_{1.5}\text{MnGa}_{1.5}$  において強磁性が安定し、bcc と fcc の混相が確認されたが、約 3 倍の飽和磁化  $M_s = 81.2$  emu/g を示した。 $\text{L1}_2$  型規則構造を有する合金である  $\text{Fe}_2\text{MnGa}$  合金において飽和磁化 115 emu/g と高飽和磁化が報告されている<sup>[3]</sup>。本研究では、fcc 系  $\text{Fe}_2\text{MnGa}$  合金の Ga の組成量を変化させることによる結晶構造およびその磁気特性の変化を調べることを目的とする。

#### 【実験方法 Experimental】

作製した試料は  $\text{Fe}_2\text{MnGa}_x$  ( $x = 0.5 \sim 1.5$ ) であり、アーク溶解炉を用いて、Ar ガス雰囲気中で真空度  $7.0 \times 10^{-3}$  Pa 以下で合金が均一になるように表裏 5 回ずつアーク溶解を行った。原材料は Fe (4N)、Mn (5N)、Ga (6N) を使用した。合金を作製した後、ダイヤモンドやすりで粉末化し、真空度  $7.0 \times 10^{-3}$  Pa 以下で真空封入した。マッフル炉を用いて熱処理 ( $T_a = 850$  °C,  $1000$  °C,  $t = 24$ h) を行い、マッフル炉から取り出した後に急冷した。各種評価は、組成分析をエネルギー分散型 X 線装置 (EDX)、結晶構造を X 線回折装置 (XRD)、磁気特性を物理特性測定装置 (PPMS - VSM)、キュリー温度を振動試料型磁力計 (VSM) で測定し評価を行った。

#### 【結果 Results】

EDX による組成分析において作製した各試料を 5 箇所測定した値の平均を算出した結果、全ての試料において最大でも  $\pm 5\%$  以内に収めた試料を測定に使用した。XRD の結果から、全ての試料において fcc 単相が確認され、 $\text{Fe}_2\text{MnGa}_{1.1}$  ( $T_a = 850$  °C,  $t = 24$ h) 合金では  $\text{L1}_2$  単相が確認されたと考えられ、 $\text{Fe}_2\text{MnGa}_{0.5}$  合金より Ga が増加することで回折ピークが大きくなり、a 軸の格子定数が 1.09% 増加した。 $\text{Fe}_2\text{MnGa}_{1.4}$  合金では最大の飽和磁化  $M_s = 124.9$  emu/g と  $\text{Fe}_2\text{MnGa}_{0.5}$  合金の飽和磁化に対して 1.8 倍の磁化の増加が確認された。また Ga の組成量を増やすことで保磁力はわずかに増加し、 $\text{Fe}_2\text{MnGa}_{1.3}$  合金では最大となる保磁力  $H_c = 0.16$  kOe が確認された。講演では磁化の増加の原因を組成比および結晶構造、キュリー温度での変化の関係から考察する。

#### 【参考文献 References】

- [1] T. Saito and R. Nishimura, J. Appl. Phys. 112, 083901 (2012).
- [2] A. Koeba and T. Shima and M. Doi, Jpn. J. Appl. Phys. 55, 07MC04 (2016)
- [3] Y. V. Kudryavtsev, N. V. Uvarov, V. N. Iermolenko, I. N. Glavatsky, and J. Dubowik, et al. Acta Materialia 60. 4780 - 4786 (2012).

## $L2_1$ - $Fe_xMnGa$ 薄膜における磁気特性の Fe 組成および膜厚依存性

Dependence of magnetic properties on Fe composition and thickness for  $L2_1$ - $Fe_xMnGa$  thin films

東北学院大学 ○峯田 陸 M2、渡邊 彩恵、嶋 敏之、土井 正晶

Tohoku Gakuin Univ., ○R. Mineta (M2), S. Watanabe, T. Shima and M. Doi

### 【諸言】

MnGa 薄膜は飽和磁化  $M_s \sim 200 - 600 \text{ emu/cm}^3$ <sup>[1]</sup>、結晶磁気異方性エネルギー  $K_u \sim 10 - 20 \text{ Merg/cm}^3$ <sup>[1]</sup>、高スピンドル率  $\sim 88\%$ <sup>[2]</sup>を示し、貴金属や希土類元素を含まない新規永久磁性材料やスピンドルデバイス次世代材料としての可能性を有している。当研究室で蒸着法を用いて作製した MnGa 薄膜において、膜厚を減少させた場合に飽和磁化および磁気異方性の減少が確認された。また、MnGa に Fe を添加し、 $FeMnGa$  薄膜の膜厚を減少させた場合、膜厚の減少に伴い、磁気特性が向上すると報告している。従って、本研究においては  $Fe_xMnGa_{1.5}$ 、 $Fe_xMnGa$  薄膜を作製し、Fe の組成を変化させる。また、磁性層の膜厚を減少させ、磁性層と MgO 基板とのミスフィットによる格子の歪みによって結晶磁気異方性を増加させることを目的として実験を行った。

### 【実験方法】

試料は超高真空マグネトロンスパッタリング装置を用いて作製した。膜構成は MgO (100) sub. /  $FeMnGa$  / Cr である。主層の  $Fe_xMnGa_{1.5}$  ( $x = 1, 1.5, 2$ ) の膜厚を  $t_{Fe-Mn-Ga} = 20, 10, 5, 3, 2, 1 \text{ nm}$  と変化させた。はじめに、基板処理を  $700^\circ\text{C}$  で 30 分間行い、主層の  $FeMnGa$  を基板温度  $T_s = 200^\circ\text{C}$  で Mn-Ga と Fe を交互積層法を用いて成膜を行った。次に、熱処理温度  $T_a = 300, 500^\circ\text{C}$  で 30 分間熱処理後、キャップ層として Cr を室温で成膜した。磁気特性評価を超伝導量子干渉磁束計 (SQUID)、構造解析を X 線回折装置 (XRD)、表面粗さと表面形状を原子間力顕微鏡 (AFM)、組成分析をエネルギー分散型 X 線回折装置 (EDX)、異方性磁気抵抗効果 (AMR) を四端子法を用いて評価した。

### 【結果】

膜厚を変化させた試料において、XRD の結果より、 $L2_1(002)$ 、 $(004)$ ピークは 20、10、5 nm で確認されたが膜厚の減少に伴い、ピーク強度が小さくなっていくことが確認された。 $L2_1(002)$ 、 $(004)$ ピークが広角側にシフトしていることから  $L2_1$  構造の c 軸が縮むことが確認された。SQUID の結果より磁性層と MgO 基板とのミスフィットによる歪みで垂直磁気異方性の発現が 3nm 以下の試料で見られた。これらの要因として面内の原子間距離が伸び、垂直磁気異方性が大きくなったと考えられる。熱処理温度  $500^\circ\text{C}$  の  $FeMnGa_{1.5}$  薄膜の 2nm の試料で、飽和磁化  $M_s = 397 \text{ emu/cm}^3$ 、結晶磁気異方性エネルギー  $K_u = 4.98 \text{ Merg/cm}^3$  という値が確認された。講演では、 $Fe_xMnGa$  ( $x = 1, 1.5, 2$ ) 薄膜の組成比を変え、膜厚の変化による結晶構造および磁気特性の変化について考察する。

### 【参考文献】

- [1] Y. Takahashi, H. Makuta, T. Shima and M. Doi, *T. Magn. Soc. Jpn.* **1**, 30-33(2017).  
 [2] B. Balke, G. H. Fecher, J. Winterik, and C. Felser, *Appl. Phys. Lett.*, **90**, 152504 (2007).

# 超小型 EV 搭載用 ANC システムにおける 超磁歪アクチュエータの開発 (ロードノイズに含まれる帯域の推力特性に関する検討)

加藤太朗, 北村拓也\*, 前原史弥\*, 内野大悟\*, 小川和輝\*,  
池田圭吾\*\*, 遠藤文人\*\*, 加藤英晃\*, 成田正敬\*, 古井光明  
(東京工科大学, \*東海大学, \*\*北海道科学大学, \*\*\*福岡工業大学)

Development of the giant magnetostrictive actuator with ANC system for the ultra-compact EV  
(A consideration on thrust force characteristics including road noise range)

T. Kato, T. Kitamura, F. Maehara, D. Uchino, K. Ogawa, K. Ikeda, A. Endo, H. Kato, T. Narita, M Furui  
(TUT, \*Tokai Univ., \*\*HUS, \*\*\*FIT)

## はじめに

2015年, 国連総会で採択された持続可能な開発目標 (Sustainable Development Goals) において, 人間の福祉を支援するためのインフラ開発や人々に安全で利用が容易な移動手段の提供が含まれている. そこで近年では, 従来の自動車に代わり 1~2 人乗りの超小型電気自動車 (以下, 超小型 EV) 普及している. しかし, 超小型 EV は小型・軽量な車体であるため外板の剛性が低く, タイヤが回転することで発生するロードノイズや車体の突起形状から発生する風切り音などの雑音が車内の快適性の劣化に多大な影響を与えている.

この問題に対して, 著者らは超小型 EV に超磁歪材料を用いたアクチュエータを設置し, 壁面振動によって制御音波を発生させて車内騒音の低減を図るアクティブノイズコントロール (以下, ANC) システムを提案している<sup>1,2)</sup>. 提案するシステムは, スピーカの代わりに小型な超磁歪アクチュエータを利用するため, ANC システム全体の小型・軽量化することで超小型 EV への搭載が可能と考えられる. このシステムにおいて, 超磁歪アクチュエータには制御音波の出力に十分な推力と制御音波の歪みや遅れの小ささが要求される. そのため, 著者らは既存の超磁歪アクチュエータの有限要素モデルを作成し, 磁界によって超磁歪材料の形状が変化した磁歪による発生力について, 電磁界解析を用いた検討を行ってきた<sup>3,4)</sup>. 本報告では, 超小型 EV への搭載を考慮し, 超磁歪材料やアクチュエータ全体の形状や材質を変更した複数の超磁歪アクチュエータのモデルを作成し, 制御対象である 100~500 Hz の低周波数帯域の磁歪による発生力について検討を行った.

## 超磁歪アクチュエータの構造と超磁歪材料が発生する力

Fig. 1 に超磁歪アクチュエータの構造を示す. 超磁歪アクチュエータはアクチュエータの中心に柱状の超磁歪材料とその周りに永久磁石, ソレノイドコイルで構成される. 本検討では, 超磁歪材料の形状や材質が異なる複数の超磁歪アクチュエータの有限要素モデルを構築し, 音波出力のための制御信号としてコイルに正弦波の電圧を加えた. 印加する電圧の周波数は 100 Hz から 500 Hz まで変化させ, 電磁界解析により算出された超磁歪材料における磁束密度から算出される磁歪と材料のヤング率, ポアソン比により磁歪による発生力を算出した.

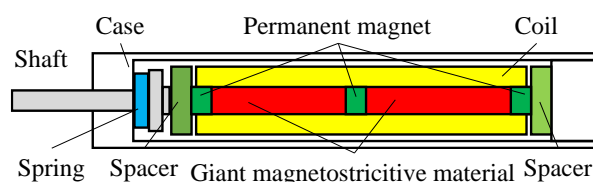


Fig. 1 Interior components of the giant magnetostrictive actuator

## 参考文献

- 1) 石塚ら, 日本 AEM 学会誌, Vol. 25, No. 2, (2017), pp. 88-93.
- 2) T. Kato et al, Actuators, 7, 49, (2018).
- 3) 加藤ら, 日本磁気学会特集号, Vol. 5, No. 1, (2021), pp. 44-49.
- 4) T. Kato et al, J. Magn. Soc. Jpn., Vol. 46, No. 3 (2021), pp. 70-75.

## Fe-Ga-M 薄膜の磁気特性と熱処理温度の影響

鈴木和歩, 藤原裕司, 大島大輝\*, 加藤剛志\*, 神保睦子\*\*

(三重大学, \*名古屋大学, \*\*大同大学)

Magnetic Properties of Fe-Ga-M Thin Film and Effect of Annealing Temperature

K.Suzuki, Y.Fujiwara, \*D.Oshima, \*T.Kato, \*\*M.Jimbo

(Mie Univ., \*Nagoya Univ., \*\*Daido Univ.)

### はじめに

FeGa 合金は大きな磁歪定数、飽和磁化を持ち、良好な機械特性からセンサやアクチュエータへ応用されている。近年では高周波デバイスへの応用のため薄膜での軟磁気特性、高周波特性の改善が求められている<sup>1)2)</sup>。また B を 9at.% 以上添加するとアモルファスになり、保磁力の低下、磁歪の増加が報告されている<sup>3)</sup>。本研究では第三元素 M を添加した Fe-Ga-M 薄膜を作製し結晶構造、軟磁気特性およびその熱処理依存性を評価した。

### 実験方法

成膜には DC・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。スパッタ圧力は 0.5Pa (Ar) である。Fe<sub>80</sub>Ga<sub>20</sub> ターゲット上にチップをのせた複合ターゲットを用いてマイクロカバーガラス上に Fe-Ga-M 薄膜を 300nm 成膜した。表面には酸化防止のため SiN 膜を 30nm 成膜した。基板には約 200Oe の直流磁界を印加した。磁気特性の測定には VSM、トルク磁力計を組成分析には EPMA を結晶構造の測定には XRD を使用した。また、試料は真空中で 100~300°C、1 時間熱処理した。

### 実験結果

第三元素として Hf を添加した Fe-Ga-Hf 薄膜の結果を示す。組成比は Fe-Ga-Hf (77.3 : 17.3 : 5.4)であった。Fig.1 に XRD の結果を示す。参考として Fe-Ga 薄膜の結果も示す。Hf の添加前に見えた回折ピークは見られなくなっており、アモルファスになっていることが示された。Fe-Ga-B 薄膜よりも少量の添加物で Fe-Ga をアモルファス化できることが分かった。

Fig.2 には各熱処理温度での磁化曲線を示す。ここでは示していないが as-dep. の試料において面内に異方性は見られなかった。as-dep. と 150°C の試料では磁化回転過程がみられるが、これは成膜時に加わった圧縮応力が原因で現れた垂直磁気異方性だと考えられる。垂直磁気異方性は熱処理により徐々に小さくなり 250°C の熱処理では完全に見られなくなった。これは熱処理による基板と金属膜との熱膨張率の差から、膜面内の応力が圧縮から引張に変化したためと考えられる。

Fig.3 には FeGa 薄膜(as-dep.)の保磁力と Fe-Ga-Hf 薄膜の熱処理温度に対する保磁力と飽和磁化の変化を示す。保磁力は熱処理により徐々に低下し 250°C の熱処理では最小の 0.3Oe を示した。250°C で急激に保磁力が低下しているのは垂直磁気異方性の完全な消失に起因していると考えている。

以上の結果は Fe-Ga への Hf の添加は保磁力の低下に効果的であると示している。当日はその他の添加元素の測定結果も併せて報告する。

### 参考文献

- 1) D.Cao et al : AIP Advances 7, 115009(2017)
- 2) S.Muramatsu et al : IEEJ, MAG21085 (2021)
- 3) J.Lou et al : Applied Physics Letters 91, 182504 (2007)

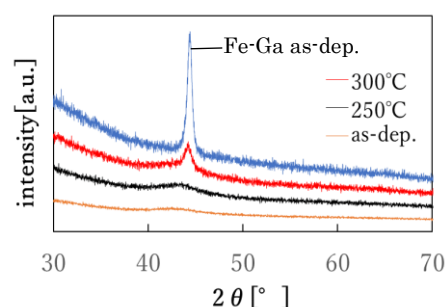


Fig.1 XRD patterns of as-deposited and annealed Fe-Ga-Hf sample

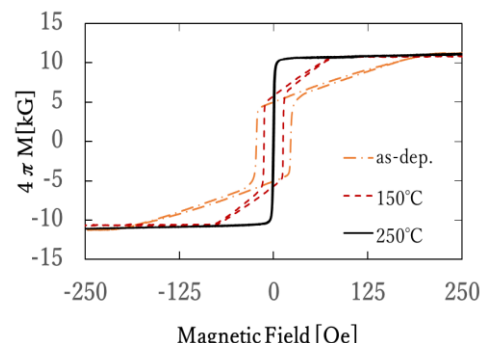


Fig.2 Hysteresis loop of as-deposited and 150°C, 250°C annealed Fe-Ga-Hf sample

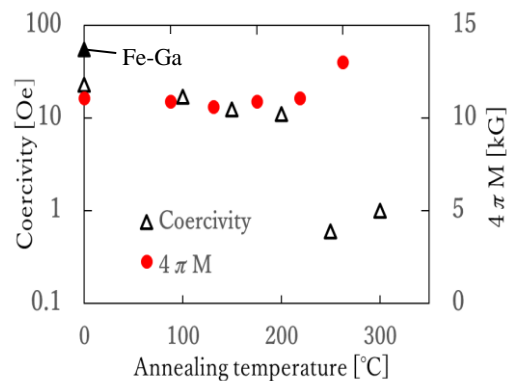


Fig.3 Annealing temperature dependence of Coercivity and Saturation Magnetization

## 電子線ホログラフィーによるコンケーブ型 $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ナノ粒子の磁化分布の直接観察

野田千晶, 小林悟, 小野和輝, 松尾咲琴, 赤瀬善太郎<sup>1</sup>, 葛西裕人<sup>2</sup>  
(岩手大理工,<sup>1</sup> 東北大多元研,<sup>2</sup> 日立製作所)

Direct Observation of magnetization distribution for concave  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  nanoparticles by electron holography  
C. Noda, S. Kobayashi, K. Ono, S. Matsuo, Z. Akase<sup>1</sup>, H. Kasai<sup>2</sup>  
(Iwate Univ.,<sup>1</sup> IMRAM Tohoku Univ.,<sup>2</sup> Hitachi, Ltd.)

### 背景

軟磁性と生体適合性を示す  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  ナノ粒子は、医療分野で活発に研究されている。特にコンケーブ型  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  ナノ粒子は高い発熱効率を示す<sup>[1]</sup>ことから、磁気ハイパーサーミアへの応用が期待されている。しかし、球状や立方体型の粒子は精力的に研究されているが、コンケーブ型  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  ナノ粒子の磁気特性の詳しい知見は得られていない。本研究では電子線ホログラフィーを用いて磁化分布の直接観察を行い、コンケーブ型  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  ナノ粒子における安定な磁化状態を検討した。

### 実験方法

コンケーブ型  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  ナノ粒子 ( $51 \pm 7$  nm) について、透過型電子顕微鏡 (TEM) による電子線ホログラフィー観察を行った。観察はゼロ磁場および室温で行った。得られた電子線の位相変化から電場と磁場の情報を分離するため、試料を  $180^\circ$  回転させ表裏のホログラムを取得した。得られた位相再生像から磁化分布を再構築した。

### 結果および考察

Fig. 1 (a), (b)にそれぞれ明視野像および磁気ポテンシャルによる位相変化を示す。粒子は一次元鎖状に $[100]$ 方向に配向する傾向を持つとともに、一次元鎖の長軸方向に平行な磁化分布を持つことが分かった。また、粒子内部の平均磁束密度は  $0.3\sim 0.4$  Tであり  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  のバルク値 ( $\sim 0.6$  T) より低いことが分かった。同様なコンケーブ粒子の一次元鎖形成および鎖内の磁化分布は他の視野でも観測された。我々のマイクロマグネティクス計算によると、単一粒子の場合、ゼロ磁場中では、 $[111]$ 方向に磁化が配向した単磁区構造が安定化することが明らかになっている。従って、以上の観察結果は、 $[111]$ 方向に磁化配向した粒子が、一次元鎖内で磁化が長軸方向にジグザグ状になるように配向している、あるいは、一次元鎖全体の静磁エネルギーを低下するため、各コンケーブ粒子の磁化が安定な $[111]$ 方向から $[100]$ 方向に再配向していることを示唆している。

### 謝辞

本研究は文部科学省先端研究基盤共用促進事業 (先端研究設備プラットフォームプログラム) JPMXS0450200722 で共用された機器を利用した。

### 参考文献

- [1] Z. Nemati, J. Alonso, and H. Martinez J. Phys. Chem. C 2016, 120, 15, 8370–8379

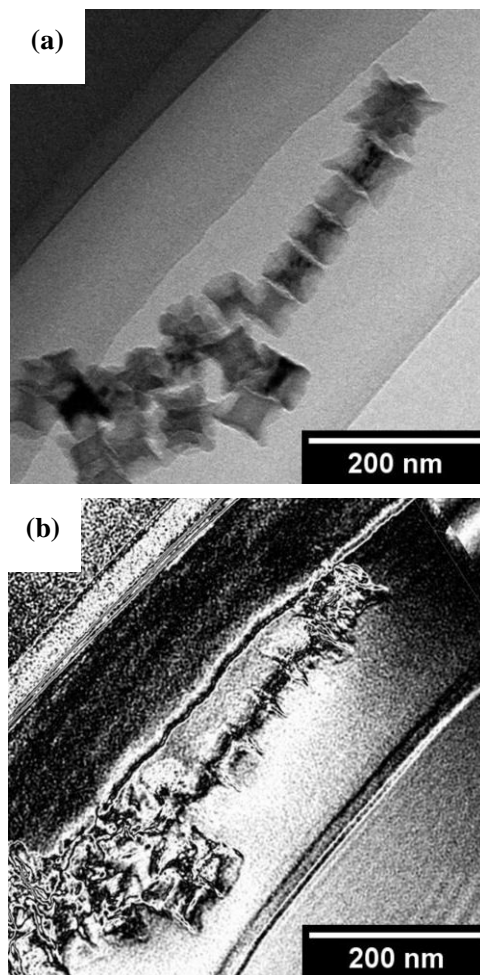


Fig. 1 (a) Bright field image and (b) reconstructed magnetic potential phase image of concave  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  nanoparticles. The phase information was amplified by a factor of 10.

## ひずみ印加による FeSiBNb 薄膜の磁化制御とパルス電圧の観測

杳名勇輝、藤原裕司、大島大輝\*、加藤剛志\*、神保睦子\*\*

(三重大学、名古屋大学\*、大同大学\*\*)

Control of magnetic moment of FeSiBNb film by strain

Y.Kutsuna, Y.Fujiwara, \*D.Oshima, \*T.Kato, \*\*M.Jimbo

(Mie Univ., \*Nagoya Univ., \*\*Daido Univ.)

はじめに

GMR や TMR 素子のフリー層に磁歪膜を利用することで新規なひずみセンサを開発する試みが盛んに行われている。<sup>(1)(2)</sup> FeSiBNb 薄膜は熱処理することで容易に軟磁気特性を得ることができ、比較的大きな磁歪定数を示す。<sup>(3)</sup> 本研究ではピックアップコイルを巻いた FeSiBNb 薄膜に交流磁界を印加した際に得られるパルス電圧のひずみ印加による制御を試みたので報告する。

実験方法

試料は DC、RF 電源を持つマグネトロンスパッタリング装置を用いて、水冷したガラス基板 (10×20×0.16mm) 上に成膜した。膜構成は sub./FeSiBNb(300nm)/SiN(30nm) である。成膜時の Ar ガス圧は 0.5Pa であり、約 2000e の直流磁界を基板に印加した。また、成膜後 100~300°C で 1 時間熱処理を行った。パルス電圧測定の様式図を Fig. 1 に示す。試料には 150turn のコイルが巻いてあり、オシロスコープで電圧を観測できるようになっている。また、マイクロメータでひずみが印加可能である。ヘルムホルツコイルにより、200e、60Hz 外部磁界を印加した。

実験結果

Fig. 2(a) に得られたパルス電圧を示す。使用した試料は 100°C の熱処理を行ったものであり、ひずみは印加していない。20mV 程度の電圧が得られているが、パルスの形状は対照的ではなく、磁壁の移動が一樣ではないことが伺える。Fig. 2(b) にパルス電圧の印加ひずみ依存性を示す。各プロットは 5 回測定の実験結果の平均値であり、エラーバーは最大最小を示している。ひずみが  $-4 \times 10^{-5}$  から  $3 \times 10^{-5}$  では、パルス電圧が単調に増加することがわかった。当日は詳細な実験結果を報告する。

参考文献

- (1) Y.Hashimoto et al. : J.Appl. Phys., 123, (2018) 113903.
- (2) Yong Zhou et al. : J. Magn. Magn. Mater., 292 (2005) 255-259.
- (3) Y.Fujiwara et al. : J. Magn. Magn. Mater., 540 (2021) 168410.

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。

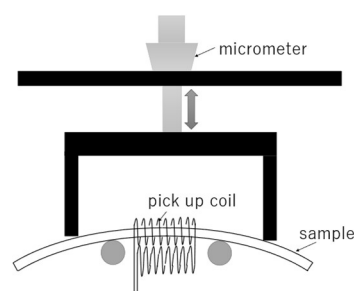


Fig.1 Schematic of experimental.

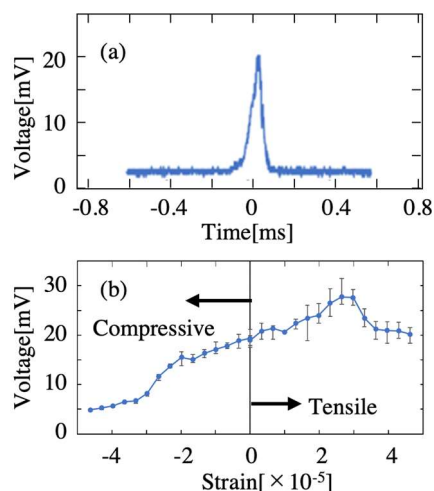


Fig.2 (a) Obtained pulse and (b) pulse voltage depending on strain.



# 超小型ステッピングモータ用希土類系厚膜磁石の開発

河野 一輝\*, 山下 昂洋, 柳井 武志, 中野 正基, 福永 博俊 (長崎大学)

Development of rare-earth thick-film magnets applied to ultra-small stepping motors

Kazuki Kouno\*, Akihiro Yamashita, Takeshi Yanai, Masaki Nakano, Hirotohi Fukunaga (Nagasaki Univ.)

## はじめに

我々は、組み込むモータの構造を下に磁石の動作点での特性を鑑み、室温での大きな異方性磁界を持つ  $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  相を活かした厚み 0.25 mm の等方性 Pr-Fe-B 系厚膜磁石を棒状シャフトへ作製、更には 3 mm 径を下回る超小型のステッピングモータへ応用した<sup>[1]</sup>。その中で、(1)「シャフトの素材であるステンレス」と「希土類の Pr 元素」の線膨張係数の差により、成膜後のいくつかの厚膜磁石に剥離やクラックの発生が見られる、(2) 100 °C 以上の温度範囲で市販の Nd-Fe-B 系ボンド磁石の磁気特性より劣化する等の課題が示唆された。

本研究では、Nd 元素の線膨張係数 ( $9.6 \times 10^{-6} \text{K}^{-1}$ ) が Pr 元素 ( $6.7 \times 10^{-6} \text{K}^{-1}$ ) に比べステンレス ( $10 \sim 11 \times 10^{-6} \text{K}^{-1}$ ) の値に近い事に着目し、ステンレス基板 (シャフト) 上の Nd-Fe-B 系厚膜磁石における①磁気特性の温度依存性の評価と②機械的性質の観察を進め、ステッピングモータへの搭載に向けて検討した。

## 実験方法

本実験では、紫外線波長 (355 nm) のパルスレーザを Nd-Fe-B 系ターゲット表面に Defocus させ照射し、真空中で数  $\mu\text{m}$  径の微粒子を発生させる手法を用い、ステンレス基板およびステンレスシャフト上へ Nd-Fe-B 系厚膜磁石を成膜した。その後、極短時間の熱処理を施し、印加磁界 7 T のパルス着磁後、最大印加磁界 2.5 T のもと VSM で磁気特性を評価した。膜厚はマイクロメータ、組成は SEM-EDX で測定した。

## 実験結果

図 1 にステンレス基板上に作製した Nd-Fe-B 系厚膜磁石の動作点でのエネルギー積 (パーミアンス係数: 1) の温度依存性を示す。比較のために、Pr-Fe-B 系厚膜磁石の結果も示した。両厚膜磁石の室温でのエネルギー積は、Nd-Fe-B 系ボンド磁石の値 ( $57 \text{ kJ/m}^3$ ) よりも優れていた。これは、ボンドレスで固化成型するため、高い残留磁気分極を獲得できた事が一つの原因と考えられる。更に、125 °C では、Nd-Fe-B 系厚膜磁石のエネルギー積が、Pr-Fe-B 系厚膜磁石や Nd-Fe-B 系ボンド磁石 ( $35 \text{ kJ/m}^3$ ) の値を上回る事を確認した。この結果は、 $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  相と  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  の異方性磁界の温度依存性の違いによるものと考えられる。

ステンレス基板上に Pr リッチな Pr-Fe-B 系厚膜磁石を 50  $\mu\text{m}$  厚以上で成膜した際、Pr 含有量の増加 (15 ~ 18 at.%) に伴い剥離する試料が複数枚観察された。一方、同程度の厚み・希土類含有量の Nd-Fe-B 系厚膜磁石では剥離が生じなかった。図 2 にシャフトに成膜した様々な厚みの Nd-Fe-B 系厚膜磁石と Pr-Fe-B 系厚膜磁石の膜厚と希土類含有量、クラックの有無の関係を検討した結果を示す。希土類含有量を 14 ~ 15 at.% の範囲とした際、特に Pr-Fe-B 系厚膜磁石の 130  $\mu\text{m}$  厚の試料でクラックが生じる様子が観察された。今後、モータシャフト上の Nd-Fe-B 系厚膜磁石の試料数を増やし検討を続けると共にモータへの搭載も進める。

参考文献 [1] M. Nakano, *J. Magn. Soc. Jpn.*, 45, 12-15(2021).

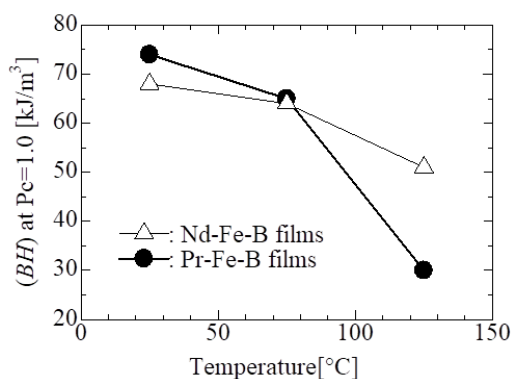


Fig 1 Energy product (Pc = 1.0) of (Nd or Pr)-Fe-B thick film magnets as a function of operating temperature.

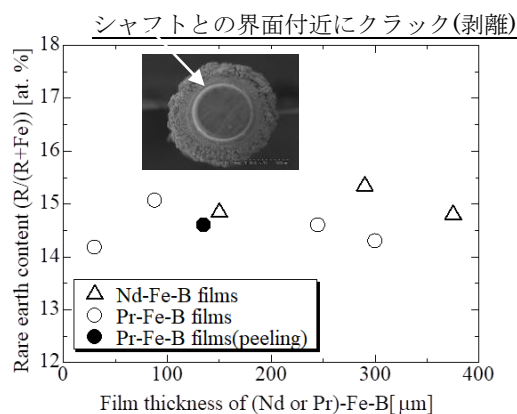


Fig. 2 Exfoliation phenomenon of as-deposited (Nd or Pr)-Fe-B thick-films on stainless shafts.

## FePt-BN グラニューラ薄膜の組織および磁気特性に及ぼす スパッタ時の N<sub>2</sub> ガス添加効果

◦タム キム コング<sup>a)</sup>, 齊藤 節<sup>b)</sup>, 櫛引 了輔<sup>a)</sup>, 齊藤 伸<sup>b)</sup>  
(<sup>a)</sup>田中貴金属工業株式会社, <sup>b)</sup>東北大学)

### Effect of N<sub>2</sub> gas addition of sputtered FePt-BN granular films on nanostructure and magnetic properties

◦Kim Kong Tham<sup>a)</sup>, Takashi Saito<sup>b)</sup>, Ryosuke Kushibiki<sup>a)</sup>, and Shin Saito<sup>b)</sup>  
(<sup>a)</sup>TANAKA KIKINZOKU KOGYO K.K., <sup>b)</sup>Tohoku University)

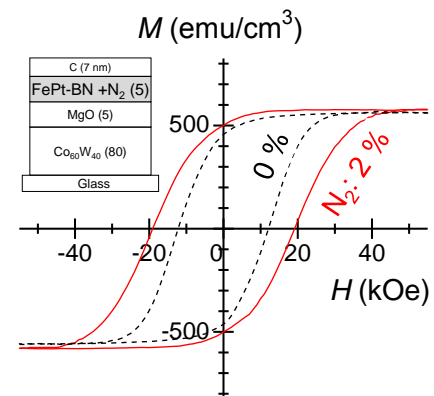
**はじめに** L1<sub>0</sub> 型 FePt 相は室温で  $5 \times 10^7$  erg/cm<sup>3</sup> の高い一軸結晶磁気異方性エネルギーを備えているため、次世代磁気記録媒体材料として注目を集めている。実用化のためには、*c* 軸の膜面垂直高配向、高規則度を有する微細なコラム状磁性粒子のグラニューラ組織の実現が必須である。これらの要件を達成するために、粒界材 (GBM) として B<sub>2</sub>O<sub>3</sub><sup>1)</sup>, SiO<sub>2</sub><sup>2)</sup>, TiO<sub>2</sub><sup>3)</sup>, BN<sup>4)</sup>, C<sup>5,6)</sup> などの様々な材料を FePt 薄膜へ添加するグラニューラ磁性層の研究が盛んに行われてきた。以前我々は、グラニューラ薄膜の飽和磁化 ( $M_s$ ) が GBM の融点に依存しており、特に FePt-BN グラニューラ薄膜の場合、コンポジットターゲットを用いたスパッタ成膜時に、窒素欠損と磁性結晶粒への B の固溶が同時に生じる可能性があることを報告した<sup>1)</sup>。窒素の補給により B を完全に窒化させることが肝要である。本講演では、FePt-BN コンポジットターゲットの N<sub>2</sub> ガス添加スパッタリングで作製されるグラニューラ薄膜の磁気特性および組織を調べたので報告する。

**実験結果** 媒体の層構成は Sub./ Co<sub>60</sub>W<sub>40</sub>(80 nm)/ MgO(5 nm)/ FePt-30vol%BN(5 nm)/ C(7 nm) とした。FePt-BN グラニューラ薄膜は Ar ガスに対し 0-5%の流量比で N<sub>2</sub> ガスを添加しながら、550°Cの基板温度で成膜した。

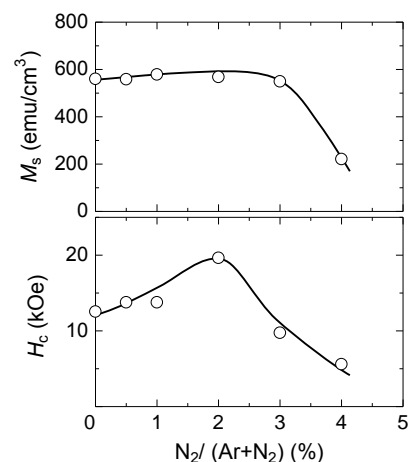
Fig. 1には Ar ガスに N<sub>2</sub> ガスを添加しながら成膜した FePt-BN グラニューラ薄膜の磁化曲線を示している。挿入図には試料の層構造を示した。2%の N<sub>2</sub> ガスを導入した場合、導入しない場合と比べヒステリシスが大きくなり、保磁力 ( $H_c$ ) 近傍の磁化曲線の傾きが小さくなっている。

Fig. 2には FePt-BN グラニューラ薄膜の  $M_s$  および  $H_c$  の N<sub>2</sub> ガス流量比依存性を示している。N<sub>2</sub> ガス添加量を 0 から 2%へ増加すると、 $M_s$  は約 560 から 600 emu/cm<sup>3</sup> にわずかに増加し、 $H_c$  は 12 から 19 kOe に大幅に増加していることが確認できる。 $H_c$  が増加する理由の一つは、垂直磁気異方性エネルギーが  $1.1$  から  $1.7 \times 10^7$  erg/cm<sup>3</sup> に増大し、それにより異方性磁界が 38 から 58 kOe に増大したためと考えられる。これらの結果は結晶粒に固溶している B の窒化がグラニューラ薄膜中の L1<sub>0</sub> 型 FePt 磁性結晶粒の真性的な一軸結晶磁気異方性の増大をもたらしたことを示している。講演では、規則度および組織についても報告する。

**参考文献** 1) T. Saito et al., *Jpn. J. Appl. Phys.*, **59**, 045501 (2020). 2) E. Yang et al., *J. Appl. Phys.*, **104**, 023904 (2008). 3) Y. F. Ding et al., *Appl. Phys. Lett.*, **93**, 032506 (2008). 4) B. Zhou et al., *Appl. Phys. Lett.*, **118**, 162403 (2021). 5) J. S. Chen et al., *Appl. Phys. Lett.*, **91**, 132506 (2007). 6) A. Perumal et al., *J. Appl. Phys.*, **105**, 07B732 (2009).



**Fig. 1**  $M$ - $H$  loops of FePt-BN granular films sputtered with N<sub>2</sub> gas addition. Layer structure of the film is shown in the inset.



**Fig. 2**  $M_s$  and  $H_c$  dependence of FePt-BN granular films on N<sub>2</sub> gas flow ratio during the sputtering.

## 高再分散性を示す磁性ナノ粒子の乾燥技術の検討

西垣紘汰<sup>1</sup>、清野智史<sup>1</sup>、田邊瑞姫<sup>1</sup>、上松天<sup>1,2</sup>、中川貴<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>大阪大学、<sup>2</sup>株式会社アルバック)

### Investigation of drying technique for magnetic nanoparticles with high redispersibility

K. Nishigaki<sup>1</sup>, S. Seino<sup>1</sup>, M. Tanabe<sup>1</sup>, S. Uematsu<sup>1,2</sup>, T. Nakagawa<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Osaka University, <sup>2</sup>ULVAC, Inc.)

#### 1. 研究背景

磁性ナノ粒子の生体内での用途として、MPI や MRI に用いる磁気造影剤としての応用が研究されている。将来的な臨床応用を想定し、磁性ナノ粒子分散水溶液を乾燥させる技術の検討を行った。粉末状にした磁性ナノ粒子に求められる条件としては、人に投与した際に再分散し、粉末にする前の磁性ナノ粒子分散水溶液と同様の物性を示すことである。本研究では、人の体液に触れると高再分散性を示す乾燥技術の確立を研究目的とした。その手法として、マイクロパウダードライ法（以下、 $\mu$ PD 法と表記）に着目した。 $\mu$ PD 法とは、真空中に直接液体を噴射し、水分の蒸発による自己凍結で凍結粒子を生成させ凍結乾燥する技術である。

#### 2. 実験方法

磁性ナノ粒子分散水溶液として、フェルカルボトランを永久磁石により磁気分離して得た磁性画分（以下 FcM と表記）を使用した。乾燥手法として、 $\mu$ PD 法、減圧濃縮法、凍結乾燥法を適用した。得られた粉末試料の形態を SEM 観察により評価した。また粉末試料を純水で再分散させた液体試料について、DLS 測定による二次粒子径評価および VSM による磁気特性評価を行った。

#### 3. 結果と考察

磁性ナノ粒子分散水溶液を測定試料として得た磁場磁化曲線を Fig. 1 に示す。適用した乾燥手法によらず、再分散水溶液の磁気特性は出発原料とした FcM 分散水溶液とほぼ一致することが分かった。出発原料とした FcM 分散水溶液の二次粒子径が 54 nm であった。減圧濃縮法と凍結乾燥法で得た試料を再分散させたところ、二次粒子径は 400 nm 以上という大きな値を示した。一方、 $\mu$ PD 法で得た試料は二次粒子径が 83 nm であった。 $\mu$ PD 法で乾燥させた粉末試料は非常に良好な再分散性を示すことが分かった。 $\mu$ PD 法で乾燥させた粉末試料の SEM 像を Fig.2 に示す。他の乾燥手法とは異なり、多孔質な粉体であることが分かった。保護剤であるカルボキシデキストランの水への再溶解が容易となり、結果として良好な再分散性が得られたと推測される。 $\mu$ PD 法による乾燥技術は、磁性ナノ粒子の乾燥処理法として有望であると言える。

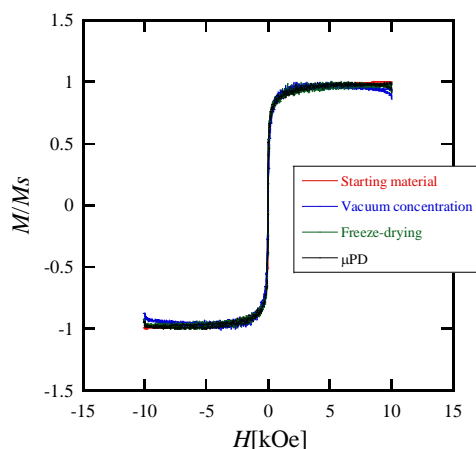


Fig.1  $M$ - $H$  curves before and after drying treatment

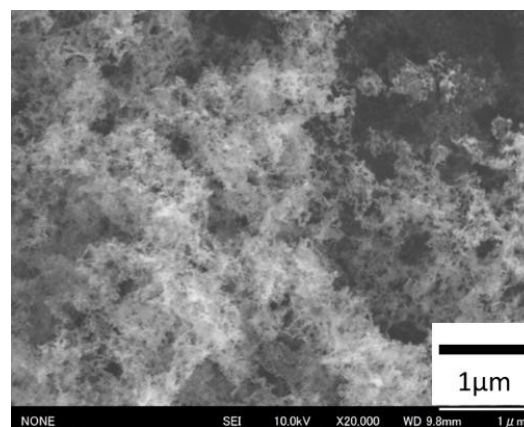


Fig.2 SEM image of powder sample obtained by  $\mu$ PD method

# 一次反転曲線法によるコンケーブ型 $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ナノ粒子の磁化過程解析

松尾咲琴, 小林悟, 野田千晶, 武田佳奈, Yallappa Shiralgi, 上野凌, 小野和輝  
(岩手大学理工)

Magnetization process analysis of concave  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  nanoparticles by FORCs method

S. Matsuo, S. Kobayashi, C. Noda, K. Takeda, Y. Shiralgi, R. Uwano, K. Ono

(Iwate Univ.)

## はじめに

近年、磁気ハイパーサーミアにおいて高い発熱効率を得るために磁性ナノ粒子の形状・表面効果を利用した研究が注目されている。特に、立方体の{100}面が凹んだ形状を持つコンケーブ粒子は従来の球状粒子と比較して最大約2倍の比吸収率を示すことが報告されているが、磁場中での詳しい磁化反転機構は理解されていない。本研究では、コンケーブ型及びキューブ型粒子について磁気一次反転曲線(FORC)測定を行い、コンケーブ形状が磁性に与える影響を調べたので報告する。

## 実験方法

Fe 前駆体であるオレイン酸鉄、オレイン酸ナトリウム、オレイン酸、トリオクチルアミンを用いて、約  $340^\circ\text{C}$  で加熱しナノ粒子を得た。本研究では、一辺  $51 \pm 7 \text{ nm}$ 、 $30 \pm 2 \text{ nm}$ 、 $33 \pm 4 \text{ nm}$  の3種類のコンケーブ型粒子、一辺  $23 \pm 3 \text{ nm}$  のキューブ型粒子を用いた。X線回折から  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  単相であること、電子線回折から凹面が{100}面であることを確認した。SQUID 磁化測定装置を用いて、 $T=10\sim 300 \text{ K}$ 、最大磁場  $H=5 \text{ kOe}$  の範囲で FORC 測定を行った。

## 実験結果

Fig.1 にサイズ  $51 \text{ nm}$  のコンケーブ粒子の  $10\text{K}$ 、 $300\text{K}$  における FORC 図を示す。縦軸は相互作用磁場  $H_u$ 、横軸は保磁力  $H_c$  である。 $T=10\text{K}$  で強い2つの FORC 分布ピークが現れ、温度上昇とともに両ピークは原点にシフトし、 $T\sim 50\text{K}$  以上で単一ピークになることが分かった。同様な振る舞いは他のコンケーブ粒子でも観測された。Fig.2 に  $T=10\text{K}$  の FORC 分布強度を  $H_c$  方向に積分した相互作用磁場分布  $\rho(H_u)$  を示す。コンケーブ粒子は2ピークを示すが、キューブ粒子では単一ピークのみであることが分かる。更に、OOMMF によるマイクロマグネティック計算から、キューブ粒子ではスピンの配向が  $\langle 100 \rangle$  に対して、コンケーブ粒子ではスピンの配向が強く  $\langle 111 \rangle$  配向した単磁区構造が安定化することを見出した。 $\langle 111 \rangle$  方向に粒子が伸びたコンケーブの異方的形状を考慮すると、コンケーブ粒子で観測された2つの強い FORC 分布ピークは、磁化の方向が  $\langle 111 \rangle$  軸から他の  $\langle 111 \rangle$  軸方向に不連続的に磁場変化する過程を反映していると解釈できる。

## 参考文献

- 1) Z. Nemati *et al.*, *J. Phys. Chem. C*, 120 (15), 8370–8379 (2016)

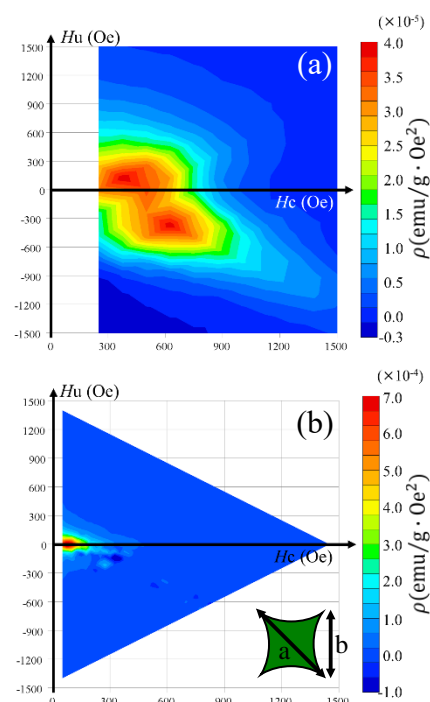


Fig.1: FORC diagram at (a)  $T=10 \text{ K}$  and (b)  $300 \text{ K}$ ; size:  $a=73 \pm 12 \text{ nm}$ ,  $b=51 \pm 7 \text{ nm}$ .

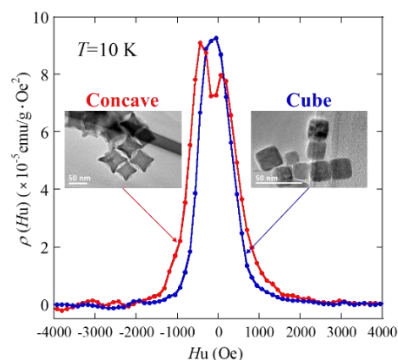


Fig.2:  $\rho(H_u)$  as a function of  $H_u$  at  $T=10\text{K}$ .

## 水平方向からの磁場を用いた柔軟鋼板の磁気浮上 (吸引力によるたわみの抑制に関する実験的考察)

遠藤文人、川島和磨、馬場翔太郎、鬼塚晴大、小川和輝\*、内野大悟\*、  
池田圭吾\*\*、加藤太朗\*\*\*、成田正敬\*、加藤英晃\*

(福岡工業大学、\*東海大学、\*\*北海道科学大学、\*\*\*東京工科大学)

Electromagnetic levitation for flexible steel plate using magnetic field from horizontal direction  
(Experimental consideration on decreasing deflection using attractive force)

A. Endo, K. Kawashima, S. Baba, S. Onitsuka, K. Ogawa\*, D. Uchino\*,  
K. Ikeda\*\*, T. Kato\*\*\*, T. Narita\*, H. Kato\*

(FIT, \*Tokai Univ., \*\*Hokkaido Univ. of Sci., \*\*\*TUT)

### 緒言

鋼板は製造工程においてローラを使用した接触搬送が行われており、鋼板とローラの接触によって鋼板の表面品質が劣化することが懸念されている。そこで、磁気浮上技術を使って鋼板を非接触に支持・搬送する方法が提案されている。しかしながら、厚さが 0.3 mm 以下の剛性が非常に低い柔軟鋼板は浮上中の変形が起因した弾性振動が発生し、安定して浮上させることが難しい。このことから著者らは鋼板を挟むように電磁石を設置し、両端から引っ張るように吸引力を発生させ、柔軟鋼板のたわみを抑制しながら非接触支持を実現する磁気浮上方式を提案した<sup>2)</sup>。柔軟鋼板を非接触に支持させる際には電磁石によって重力とつり合う吸引力を発生させる必要がある。この吸引力は柔軟鋼板を水平方向へも引っ張り、たわみを抑制する効果も担っている。これまでの研究では吸引力が大きくなると振動が抑制されることを確認しているが、柔軟鋼板の板厚によってはある所から浮上安定性が劣化することも確認している<sup>3)</sup>。そこで、本報告では柔軟鋼板の吸引力と浮上安定性の関係性について磁気浮上装置を用いて実験的に明らかにした。

### 柔軟鋼板の磁気浮上実験

Fig. 1 に著者らが提案した磁気浮上装置を示す。本装置は4つの電磁石ユニットから構成されており、柔軟鋼板の両端に中心間距離を 220 mm として2つずつ設置している。電磁石は電流を印加することで鋼板に対して吸引力を発生する。この時、Fig. 2 に示すように柔軟鋼板には水平方向への張力に加え、鉛直方向への支持力も発生し、支持力が柔軟鋼板にかかる重力とつり合うことで非接触に浮上する。電磁石を流れる電流に加え、レーザセンサにより水平方向変位を計測、また差分近似により速度を算出している。平衡状態からの柔軟鋼板の変位ならびに速度、電磁石に流れる電流をフィードバックすることで安定した浮上を実現している。本報告では厚さが 0.05、0.19、0.24 mm の柔軟鋼板 (SS400) を対象とした浮上実験を行った。この時、柔軟鋼板の鉛直方向ならびに水平方向の変位を計測し、吸引力との関係性を明らかにした。

### 参考文献

- 1) 木田ら、日本磁気学会論文特集号、Vol. 1, No. 1, pp. 76-81 (2017).
- 2) Y. Oda et al, J. Magn. Soc. Jpn., 43, 11-16 (2019).
- 3) 遠藤ら、日本磁気学会論文特集号、Vol. 6, No. 1, pp. 87-92 (2022).

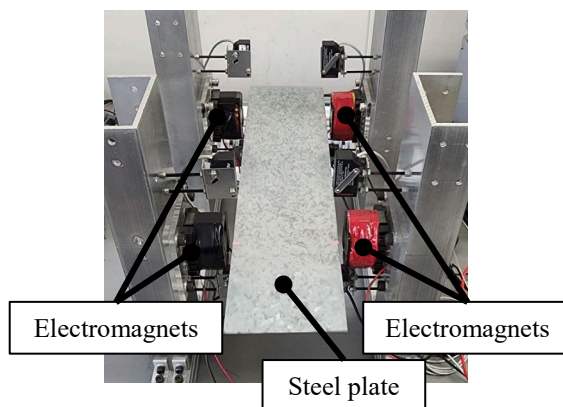


Fig. 1 Magnetic levitation system

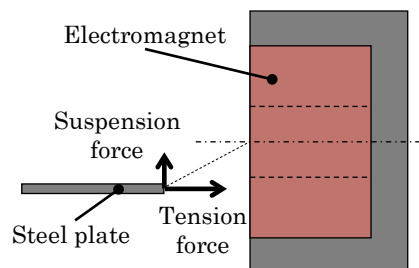


Fig. 2 Attractive force for steel plate

## 六角錐状 hcp-CoO ナノ粒子における表面スピン凍結

堀田侑里、小林悟、野田千晶、高橋和也  
(岩手大学)

Surface spin freezing for hexagonal pyramidal hcp-CoO nanoparticles

Y. Hotta, S. Kobayashi, C. Noda, K. Takahashi

(Iwate Univ.)

### はじめに

磁場による磁性体の発熱・吸熱 (磁気熱量効果、以降 MCE) を利用した磁気冷凍技術は、従来の冷凍技術と比べて理論上のエネルギー効率が高く、冷媒ガスやコンプレッサーが必要ないという特徴を持つため、環境に優しい技術として注目を集めている。特に磁性体がナノ粒子の場合には、デバイスに組み込んだり、複合材料に加工して利用するなどといった多様な応用可能性がある。表面磁気異方性が大きい Co では表面スピン凍結による大きな MCE が報告されているが<sup>1)</sup>、中空構造を持たせることで MCE の更なる向上が見込める。本研究では、特に中空 Co ナノ粒子の合成過程の生成物である六角錐状 hcp-CoO 粒子に着目し、その磁気特性と表面効果の粒子サイズ依存性について詳しく調べたので報告する。

### 実験方法

前駆体としてコバルト(III)アセチルアセトナートとオレイルアミンを用いた。Ar 雰囲気中で 135°C で 5 時間加熱後、250°C まで急昇温・3 時間保持し自然冷却させた<sup>2)</sup>。試薬の量や昇温レートを調整し粒子サイズを制御 (平均粒径: 26 ~ 32nm) した。SQUID 磁化測定装置を用いて M-T 曲線、M-H 曲線を測定した。

### 結果及び考察

Fig.1 に合成試料の TEM 像を示す。サイズがほぼ均一な六角錐形状を持つこと、電子線回折・X 線回折から hcp-CoO 構造を持つことを確認した。Fig. 2 にサイズ 26nm 試料のゼロ磁場冷却(ZFC)、磁場中冷却(FC)条件下における M-T 曲線を示す。ZFC 後の MT 曲線において 65K 近傍でピークが現れること、ZFC 及び FC 条件の M-T 曲線が広温度範囲で一致しないことが分かった。前者は hcp-CoO 粒子の反強磁性秩序、後者は粒子表面の非補償スピンによる強磁性の発現を示唆している。Fig.2 挿入図に M-H 曲線の温度依存性を示す。なお、強磁性の寄与を詳しく調べるため、反強磁性秩序の寄与を差し引いている。温度の低下とともに、飽和磁化は緩やかに増加し、特に  $T=20\text{K}$  以下で急激な増大を示した。一方、保磁力も温度の低下とともに増加するが、 $T_N$  近傍以下でほぼ一定となった。サイズ 32nm 試料でも似た振る舞いが観測されたが、 $T_N$  の低下 ( $\sim 60\text{K}$ )、飽和磁化及び保磁力の増大が見られた。この結果は、表面スピンのスピン凍結と粒子コア部の反強磁性秩序の間の競合を示唆している。

### Reference

- 1) P. Podder et al., J. Phys. Chem. C, vol.111, 14060 (2007).
- 2) K. M. Nam et al., Angew. Chem. Int. Ed., vol.47, 9504 (2008).

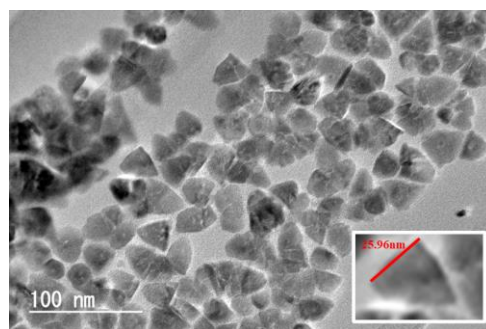


Fig.1: TEM image of 26nm-size hcp-CoO sample

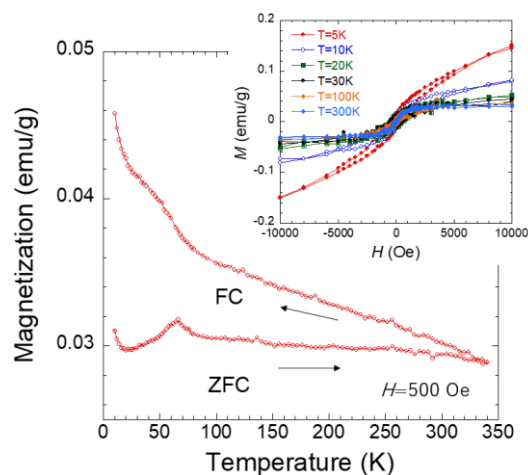


Fig. 2: M-T curve at  $H=500$  Oe for 26nm size hcp-CoO sample. The inset shows M-H curves, where the contribution of antiferromagnetic ordering of hcp-CoO is subtracted.