

トンネル磁気抵抗効果の温度変化に対する新たな物理描像: 界面 s - d 交換相互作用の重要性

増田啓介, 只野央将, 三浦良雄
(物質・材料研究機構)

New physical picture on large temperature dependence of tunnel magnetoresistance:
Crucial role of interfacial s - d exchange interaction

K. Masuda, T. Tadano, and Y. Miura
(National Institute for Materials Science)

はじめに

磁気トンネル接合 (MTJ) は種々の磁気センサや磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) へ応用されるが、これら全ての用途において室温で高いトンネル磁気抵抗比 (TMR 比) を達成することが重要である。しかしながらこれまで作製されてきた全ての MTJ において、TMR 比は温度上昇とともに大きく低下することが知られている [1,2]。今後 TMR 比の温度変化が小さい MTJ を探索する上でも、この現象の物理機構を十分に理解することが必要不可欠である。このような主眼から本研究では TMR 比の温度依存性の理論解析を行った。

解析方法・結果

磁性材料の温度依存性に対する先行理論研究のほとんどはバルク磁性体の静的特性 (磁化等) を対象にしたものであり、そこでは d 電子状態密度の温度変化が議論されてきた。一方 TMR に関する多くの実験研究から、輸送現象である TMR には d 電子よりも有効質量が小さい sp 電子が重要であることが指摘されてきた。

これらの事情を鑑み、本研究では Fe/MgO/Fe(001) MTJ [Fig. 1(a)] の Fe 層における sd 交換相互作用 J_{sd} を考慮した有効タイトバインディングモデルを構築した [3]。このモデルは「温度上昇に伴い生じた d 電子スピンの揺らぎが sd 交換相互作用を通して s 電子状態にスピン反転散乱を与え TMR 比が減少する」という物理描像を記述するものである [Fig. 1(b)]。このモデルを用い TMR 比の温度依存性を計算した結果、実験結果を説明しうる大きな温度変化が得られた [Fig. 1(c)]。我々はさらに、界面 Fe 層における sd 交換相互作用が TMR 比の温度変化に主たる寄与を与えていることも明らかにした。講演ではこれらの結果の詳述に加え、時間が許せば sd 交換相互作用の結合定数 J_{sd} の非経験的評価法についても紹介したい。本研究は TDK 株式会社, JSPS 科研費 (JP16H06332, JP17H06152, JP20H02190, JP20K14782) の助成を受け行われた。

参考文献

- 1) B. Hu *et al.*, Phys. Rev. B **94**, 094428 (2016).
- 2) T. Scheike *et al.*, Appl. Phys. Lett. **118**, 042411 (2021).
- 3) K. Masuda, T. Tadano, and Y. Miura, Phys. Rev. B **104**, L180403 (2021).

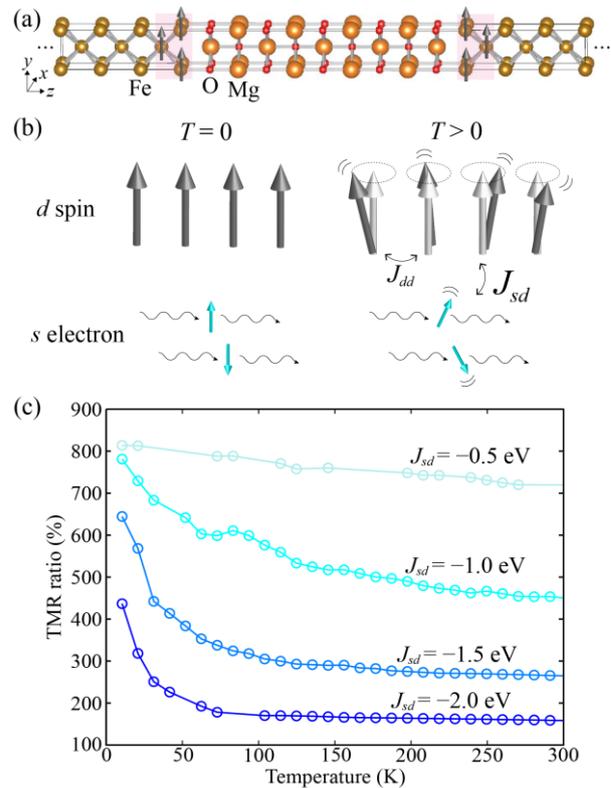


FIG.1 Schematics of (a) an Fe/MgO/Fe(001) MTJ and (b) s - d exchange interaction in interfacial Fe layers. (c) Calculated TMR ratios as a function of the temperature. From Ref. [3].

MBE 法による Co_2FeAl ホイスラー合金電極

強磁性トンネル接合の作製

北條 峻之、手束 展規、中野 貴文、角田 匡清、大兼 幹彦
(東北大工)

Fabrication of MTJs with Co_2FeAl Heusler electrode using MBE technique

T. Hojo, N. Tezuka, T. Nakano, M. Tsunoda, and M. Oogane
(Graduate School of Engineering, Tohoku Univ.)

はじめに

Co 基ホイスラー合金 Co_2YZ ($\text{Y}=\text{Mn}, \text{Fe}, \text{Z}=\text{Al}, \text{Si}$) 電極と MgO 絶縁層を用いた強磁性トンネル接合 (MTJ) 素子は、Co 基ホイスラー合金のハーフメタル性と MgO 絶縁層のスピンフィルター効果の相乗効果により、高いトンネル磁気抵抗 (TMR) 比が期待されている。しかし、これらの MTJ 素子は、低温では高い TMR 比を実験的に実現できている一方で、室温では期待されるほどの高い TMR 比は得られていない。この TMR 比の温度依存性を改善することが大きな課題である。そこで本研究では、良質な薄膜を作製可能な分子線エピタキシー (MBE) 法に注目した¹⁾。MBE 法を用いることで、ホイスラー合金電極や MgO 絶縁層の結晶性が向上し、TMR 比の改善が期待される。また、ホイスラー合金/MgO 界面に極薄装飾を行うことで、TMR 比の温度依存性を改善できる可能性がある^{2),3)}。本発表では、 $\text{Co}_2\text{FeAl}/\text{MgO}$ 界面に極薄の挿入層を用いた MTJ 素子の TMR 効果について報告する。

実験方法

MgO(001)基板上に Cr (20)/ Co_2FeAl (30)/A (d)/MgO (2.0)/CoFe (5)/IrMn (10)/Cr (5) (nm)を MBE 法により作製した。ただし、IrMn のみマグネトロンスパッタ法により成膜を行った。ここで、 d は挿入層 A の膜厚である。微細加工後、1T の磁界印加中で 400°C の熱処理を行い、TMR 特性を 4 端子法により評価した。

実験結果

ホイスラー合金電極を有する MTJ において室温で TMR 比が低下する原因の一つが、界面での局所的なキュリー温度の低下であると考えられている⁴⁾。そこで、MgO との界面で高いキュリー温度を有する Fe 極薄膜を $\text{Co}_2\text{FeAl}/\text{MgO}$ 界面に挿入することで、室温での TMR 比が向上することが期待される。Fig. 1 は、Fe を挿入した際の室温での TMR 比と磁化平行状態における面積抵抗 RA_p である。期待していた結果に反し、Fe を挿入したことで TMR 比が低下した。これは Fe を挿入することで $\text{Co}_2\text{FeAl}/\text{MgO}$ 界面の酸化が促進されたためと考えられる。しかし、このことは、極薄の Fe 挿入が、TMR 特性に大きな影響を及ぼしていることも示唆している。学会当日は、他の極薄界面材料を挿入した MTJ 素子の TMR 効果についても併せて報告する。

謝辞

本研究は JSPS 科研費及び東北大学 GP-Spin プログラム、CSIS、CSRN 及び CIES の支援を受けて行われた。

参考文献

- 1) N. Tezuka *et al.*, Appl. Phys. Lett. 94, 162504 (2009)
- 2) Y. Miura *et al.* J. Phys.: Conf. Ser. 200, 052016 (2010)
- 3) H. L. Yu *et al.*, Appl. Phys. Lett. 109, 083509 (2011)
- 4) Y. Miura *et al.*, Phys. Rev. B 83, 214411 (2011)

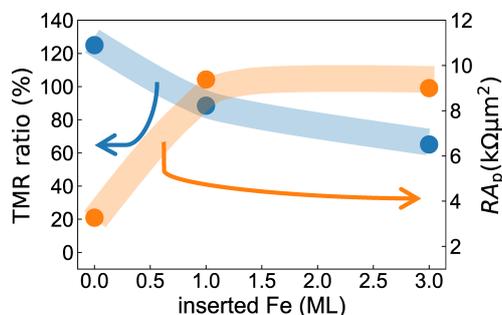


Fig.1 TMR ratio and resistance area product in magnetic parallel state RA_p of Fe inserted Co_2FeAl electrode-MTJ

Fe/MgAlO/Fe(001)単結晶トンネル接合における 巨大トンネル磁気抵抗効果

介川裕章、T. Scheike、Z. Wen、葛西伸哉、三谷誠司
(物材機構)

Giant tunnel magnetoresistance in epitaxial Fe/MgAlO/Fe(001) magnetic tunnel junctions
Hiroaki Sukegawa, Thomas Scheike, Zhenchao Wen, Shinya Kasai, and Seiji Mitani
(NIMS)

はじめに

強磁性トンネル接合 (MTJ) はハードディスク読み取りヘッドや磁気ランダムアクセスメモリの記録ビットなどスピントロニクス応用の中核となる素子である。しかし、現状では実用に用いることができるトンネル磁気抵抗比 (TMR 比) は 200~300%以下であり、応用の幅を広げるためには TMR 比の巨大化が必要である。最近、我々は Fe/MgO/Fe(001)の従来型 MTJ においても、界面構造の改善によって大幅に TMR 増大が可能であり、室温 400%以上の TMR 比が得られることを報告した [1]。しかし MgO と Fe との格子不整合により界面構造のさらなる構造改善は困難とわかった。このため本研究ではより格子整合性がよいスピネルバリアに着目した。Mg リッチ組成の Mg₄Al-O_x (MAO) をバリアとした Fe/MAO/Fe(001)素子を開発することで TMR 比の増大が観察されたこと、TMR 比のバリア膜厚に対する振動の振幅にも増大がみられたことを報告する [2]。また TMR 振動の精密なデータ取得のため多数の微細加工素子を用いたデータ収集を行った。

実験方法

マグネトロンスパッタ装置を用い、MgO(001)単結晶基板上に Cr 下地/Fe (50 nm)/Mg-Al-O ($t_{\text{MAO}} = 1-3$ nm)/Fe (5 nm)/IrMn (12 nm)/Ru 保護膜の構造を持つ面内磁化型 MTJ を作製した。MAO バリア層は Mg₄Al-O_x 組成の焼結体から電子線蒸着により作製し、線形移動シャッターによってウェハ内連続傾斜膜として形成した。磁場中熱処理後に 10×5 μm²サイズの MTJ へ微細加工し、直流 4 端子法によって磁気抵抗曲線と電流-電圧特性を評価した。素子は MAO 膜傾斜方向に 46 行、傾斜に垂直な方向に 20 列作製し全数評価を行うことで信頼性の高い MAO 膜厚依存性データを取得した。

実験結果

作製した Fe/MAO/Fe 素子の TMR 比は最大で室温 429%、10 K で 1,034%が得られ、Fe/MgO/Fe [1] よりも大きな値が得られた。MAO バリア導入により、低温では理論計算による Fe/MgO/Fe での典型的な予測値である 1,000%に到達した。TMR 比のバリア膜厚に対する振動も非常に大きくなり、振幅は室温で 125%に達した [2]。この振動をより明確に解析するためウェハ内素子全数評価を行ったところ、Fig. 1 に示すように単純な正弦曲線ではなく、ノコギリ刃形状であることが新たに明らかになった。未解決の TMR 振動の物理解釈のためにも重要な知見であると考えられる。本研究は JSPS 科研費 (21H01750、21H01397) の支援により行われた。新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) の委託業務 (No. JPNP16007) の結果得られたものを含む。

参考文献

[1] T. Scheike *et al.*, Appl. Phys. Lett. **118**, 042411 (2021). [2] T. Scheike *et al.*, Appl. Phys. Lett. **120**, 032404 (2022).

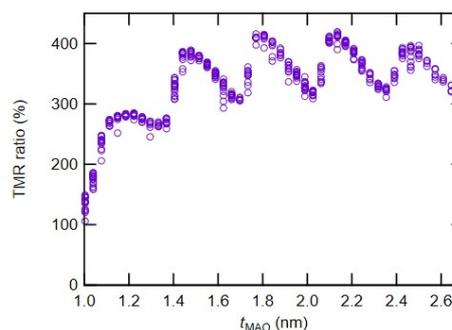


Fig. 1: TMR ratio vs. t_{MAO} of Fe/Mg₄Al-O_x/Fe(001) MTJs at room temperature.

fcc-Co₉₀Fe₁₀/MgAlO/Co₉₀Fe₁₀(111) フルエピタキシャル強磁性トンネル接合の開発

Jieyuan Song^{1,2}, Thomas Scheike², Cong He², Zhenchao Wen², 介川裕章²,
大久保忠勝², 宝野和博², 三谷誠司^{1,2}
(1 筑波大、2 物材機構)

Development of fcc-Co₉₀Fe₁₀/MgAlO/Co₉₀Fe₁₀(111) fully epitaxial magnetic tunnel junctions
Jieyuan Song^{1,2}, Thomas Scheike², Cong He², Zhenchao Wen², Hiroaki Sukegawa²,
Tadakatsu Ohkubo², Kazuhiro Hono², Seiji Mitani^{1,2}
(1 Univ. Tsukuba, 2 NIMS)

はじめに

強磁性トンネル接合 (MTJ) を用いた新規応用デバイスの創生、例えば超高密度磁気ランダムアクセスメモリや超高感度磁気センサーの実現など、には現在よりも大きなトンネル磁気抵抗 (TMR) の実現が不可欠である。現在の MTJ のほとんどは、Fe/MgO/Fe や CoFeB/MgO/CoFeB に代表される bcc(001)積層型であり、 Δ_1 バンド優先コヒーレントトンネル機構による TMR 効果が用いられている。最近第一原理計算によって、fcc(111)型積層を持つ Co/MgO/Co(111)や L1₁-CoPt/MgO/CoPt(111)構造において、従来とは異なる界面共鳴メカニズムによって大きな TMR 比 (~2000%) が得られる可能性が予測されている [1,2]。本研究では fcc 構造が安定に得られる Co₉₀Fe₁₀ を磁性層に用い、Co₉₀Fe₁₀/Mg-Al-O(MAO)/Co₉₀Fe₁₀(111)型のフルエピタキシャル MTJ を開発し TMR 効果が観測されたことを報告する。

実験方法

マグネトロンスパッタ装置を用い、サファイア(0001)単結晶基板上に Ru 下地/Co₉₀Fe₁₀ (20 nm)/Mg (0.5 nm)/MAO (2.8 nm)/Co₉₀Fe₁₀ (5 nm)/Ru (0.75 nm)/Co₅₀Fe₅₀ (2.2 nm)/IrMn (10 nm)/Ru 保護膜の構造を持つ面内磁化型 MTJ を作製した。MAO バリア層は Mg₄Al-Ox 焼結体の電子線蒸着 [3] によって作製した。また結晶性と界面平坦性を改善するため各層の成膜後のアニール条件を最適化した。各層の結晶性は反射高速電子回折 (RHEED)、X 線回折、断面走査透過顕微鏡 (STEM) 像により評価を行った。MTJ 多層膜は磁場中熱処理を行った後、10×5 μm² サイズのピラー状に微細加工パターンニングを行い直流 4 端子法によって MTJ の磁気伝導特性評価を行った。

実験結果

成長条件及びアニール条件の最適化により、Ru 下地層上の下部 Co₉₀Fe₁₀ 層、バリア層、上部 Co₉₀Fe₁₀ 層のいずれも fcc(111)エピタキシャル成長していることを確認した。断面 STEM 観察からも基板から上部層までエピタキシャル成長が明確に確認され、比較的平坦なバリア界面も得られていることが確認された。fcc-Co₉₀Fe₁₀ と MAO の格子不整合は 20%弱あるものの界面にミスフィット転移が周期的に導入されており、これが界面平滑化につながったと期待される。この薄膜試料から作製した MTJ において室温で 37%の TMR 比が観察された。電流-電圧特性はバイアス電圧極性に対して対称的であり、これはバリア上下界面がほぼ同一品質で形成できていることを示唆している。これらの結果から fcc(111)型 MTJ を安定に作製することが可能であることが明らかになった。界面構造の改善と強磁性層の開発によって今後更に TMR 特性の向上が期待できる。本研究は JST CREST (JPMJCR19J4) および JSPS 科研費 (21H01750) の支援により行われた。

参考文献

- [1] K. Masuda *et al.*, Phys. Rev. B **101**, 144404 (2020).
- [2] K. Masuda *et al.*, Phys. Rev. B **103**, 064427 (2021).
- [3] T. Scheike *et al.*, Appl. Phys. Lett. **120**, 032404 (2022).

$L1_0$ -(MnCo)Al 電極と $MgAl_2O_4$ 絶縁層を用いた強磁性トンネル接合における TMR 効果

菊地竜太郎、アルマダウィ ミフタ、角田匡清、大兼幹彦
(東北大工)

Tunneling magnetoresistance effect in magnetic tunnel junctions using $L1_0$ -(MnCo)Al electrode and $MgAl_2O_4$ insulating layer

R. Kikuchi, M. Al-Mahdawi, M. Tsunoda, M. Oogane
(Graduate School of Engineering, Tohoku University)

はじめに

垂直磁化材料である $L1_0$ -MnAl は、高い磁気異方性、低飽和磁化、低ダンピング定数を有することから、スピントランスポール型磁気ランダムアクセスメモリ (STT-MRAM) 用の強磁性トンネル接合 (MTJ) への応用が期待されている。しかし、MnAl を電極に用いた MTJ において TMR 効果を観測するためには、MnAl/MgO 界面に極薄挿入層が必要であった¹⁾。この原因として、MnAl 層と MgO 絶縁層との格子不整合が大きく、 Δ_1 電子のコヒーレントトンネルが阻害されることが考えられる¹⁾。本研究では、Co を 2% 添加することで低ラフネスかつ高 (001) 配向の (MnCo)Al 電極を作製し、さらに絶縁層として $MgAl_2O_4$ を用いることで格子不整合を低減した MTJ 素子を作製し、その TMR 効果を評価することを目的とした。

実験方法

作製した MTJ 素子の構造、各層の成膜および熱処理温度を Fig. 1 に示す。試料は超高真空マグネトロンスパッタリング法により作製した。 $MgAl_2O_4$ の組成は X 線光電子分光法 (XPS) を用いて測定した。組成分析の結果、 $MgAl_2O_4$ の組成は Mg : Al : O = 9.2 : 18.9 : 41.5 (atom%) であった。結晶構造、表面特性、磁気特性および磁気抵抗特性は X 線構造解析 (XRD)、原子間力顕微鏡 (AFM)、振動試料型磁力計 (VSM)、物理特性測定システム (PPMS) を用いた直流 4 端子法により測定した。

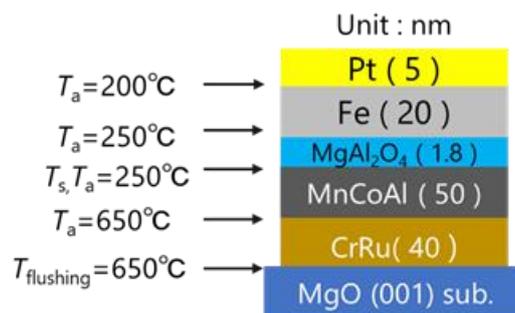


Fig. 1: Schematic illustration of a (MnCo)Al/ $MgAl_2O_4$ /Fe-MTJ structure.

実験結果

Fig. 2 に 300 K および 10 K における、(MnCo)Al/ $MgAl_2O_4$ /Fe-MTJ の垂直磁場印加の TMR 曲線を示す。作製した MTJ では、300 K および 10 K において、TMR 比が 17.4%、32.4% であった。界面挿入層無しで TMR 効果が観測されたことから、期待通り格子ミスマッチが低減できたと考えられる。さらなる TMR 比の改善のためには、 $MgAl_2O_4$ 成膜条件の更なる最適化が必要と考えられ、講演ではその最適化に関する結果も報告する予定である。

謝辞

本研究は、東北大学 GP-Spin プログラム、CSIS、CSRN 及び CIES の支援を受けて行われた。

参考文献

- 1) Haruaki Saruyama, *et al*, 2013 *Jpn. J. Appl. Phys.* **52** 063003

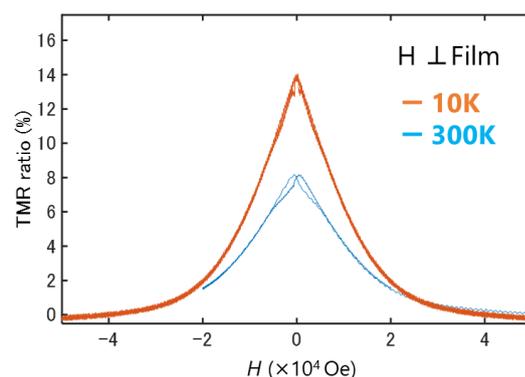


Fig. 2: TMR curve for MTJ with (MnCo)Al/ $MgAl_2O_4$ /Fe structure applying perpendicular magnetic field.

自発磁化を示す Al 添加 Cr₂O₃ 薄膜の異常ホール効果

飯野伊音, 櫻井皓基, 多田龍生, 豊木研太郎, 中谷亮一, 白土 優

(大阪大)

Anomalous Hall effect in Al-doped Cr₂O₃ thin films exhibiting spontaneous magnetization

I. Iino, H. Sakurai, T. Tada, K. Toyoki, R. Nakatani and Y. Shiratsuchi

(Osaka Univ.)

はじめに 反強磁性体は、超高密度磁気記録やテラヘルツ素子等の新規スピントロニクスデバイスの基盤材料として期待されている。しかしながら、反強磁性体は自発磁化を生じないため、磁気モーメント（ネールベクトル）をどのように制御し、検出するかが課題となっている。我々は、反強磁性体として Cr₂O₃ を用いることで、電気磁気効果[1]や、非磁性元素 (Al) の添加により生成する自発磁化[2]を用いたネールベクトルの制御とともに、Pt/Cr₂O₃ 界面で生じる異常ホール効果を用いたネールベクトルの検出[3]を進めている。一方、Pt/Cr₂O₃ 系では自発磁化が生じないため、異常ホール効果の起源が必ずしも明らかになっていない。本研究では、自発磁化を有する Al 添加 Cr₂O₃ 薄膜に対して、異常ホール効果の測定を行うことで、本系での異常ホール効果の起源について検討した。

実験方法 試料として、Pt(2 nm)/(Al_xCr_{1-x})₂O₃(200 nm)/α-Al₂O₃(0001)subs. (x = 0–0.255) を用いた。試料作製には、マグネトロンスパッタリング法を用いた。製膜時において、Cr に対する投入電力を固定し、Al に対する投入電力を変えることにより Al 組成を変化させた。構造評価には、X 線回折法、反射高速電子線回折法を用いた。Al 組成は、蛍光 X 線分析法により評価した。ホール効果測定のために、作製した薄膜をフォトリソグラフィ法、Ar イオンミリング法を用いて、ホール素子に微細加工を行った。磁化測定には、超伝導量子干渉磁束計を用いた。

実験結果 Fig. 1(a)に、200 K で測定した磁化曲線と異常ホール効果曲線を示す。Al 濃度は 4.04at.% とした。いずれも角型比が約 1 のヒステリシスを示し、保磁力も一致した。ここから、異常ホール伝導度 ($\sigma_{xy} = \rho_{xy}/\rho_{xx}^2$) と磁化は、磁場依存性に関して類似性を持つことがわかった。(b)に、同一試料に対する残留磁化と異常ホール伝導度の温度依存性を示す。自発磁化は、温度の上昇とともに単調に低下することに対して、 σ_{xy} は、温度の上昇により一度、上昇した後、ピークを取り、再度低下する。低温領域での σ_{xy} の上昇の原因は、明らかになっていないが、Pt/Cr₂O₃ 界面で予測されるキラルスピン構造[4]の存在を示唆する。磁化が 0 となる温度をキュリー温度とすると、 σ_{xy} が消失する温度は概ねキュリー温度に一致した。

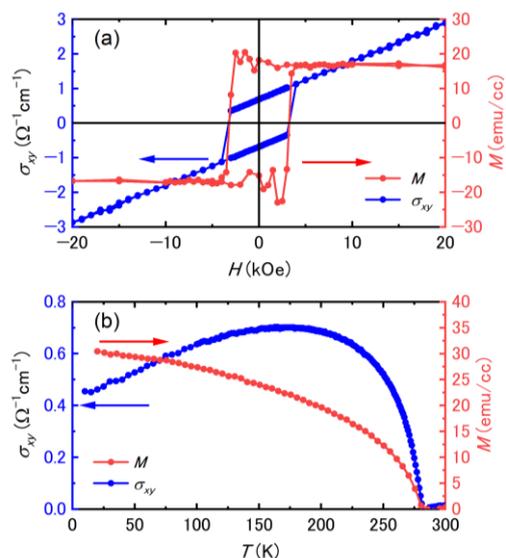


Fig. 1(a) 200 K で測定した磁化曲線 (右軸) と異常ホール効果曲線 (左軸). (b) 異常ホール伝導度と磁化の温度依存性.

[1] Y. Shiratsuchi *et al.*, JPCM 33, 243001 (2021). [2] 多田龍生他 日本金属学会第 169 回講演大会.

[3] X. Wang *et al.*, AIP Adv. 12, 035216 (2022). [4] T. Moriyama *et al.*, PRAppl. 13, 034052 (2020).

導電性コバルトフェライト電極上に作製した垂直磁化 コバルトフェライト薄膜によるトンネル型スピフィルター効果

田中雅章、古田元春、森下雅也、市川知幸、洪鈺珉*、本多周太**、小野輝男*、壬生攻
(名工大工、*京大化研、**関西大シス理)

Spin-filtering tunnel effect of perpendicularly magnetized insulative cobalt ferrite layers grown on
conductive cobalt ferrite electrodes

M. A. Tanaka, M. Furuta, M. Morishita, T. Ichikawa, Y.-M. Hung*, S. Honda**, T. Ono*, and K. Mibu
(Nagoya Inst. Tech., *ICR, Kyoto Univ., ** Kansai Univ.)

はじめに

強磁性絶縁体薄膜を用いたトンネル接合では、障壁の高さが電子のスピンにより異なるため、トンネル電子のスピンに依存した透過率の差が生じ、スピン偏極した電流を生成することができる。この現象はトンネル型スピフィルター効果と呼ばれ、新しいスピン注入源として期待できる。一方で、[001]配向した強磁性絶縁体コバルトフェライト薄膜は、面内方向の引張歪みにより垂直磁気異方性を示すことが知られている。キュリー温度が高いコバルトフェライトの垂直磁化薄膜は実用的な垂直磁化型のトンネル型スピフィルター層として期待できる。本研究では Fe^{2+} と Fe^{3+} が存在するため導電性を示すコバルトフェライト $\text{Co}_y\text{Fe}_{3-y}\text{O}_{4+c}$ (C-CFO) 電極層上に Fe^{2+} がほとんど存在しないため絶縁性を示すコバルトフェライト $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_{4+\delta}$ (I-CFO) 薄膜を製膜し、垂直磁化のコバルトフェライト層を障壁層とする磁気トンネル接合(MTJ)素子を作製した。この MTJ 素子に対してトンネル磁気抵抗効果の測定を行い、コバルトフェライト薄膜のスピフィルター効率の評価を行った。

実験方法

YAG 2 倍波レーザーを用いたパルスレーザー堆積法で、MgO(001)基板上にバッファ層 I-CFO(20 nm)、下部電極用の C-CFO (20 nm)、スピフィルター層 I-CFO ($t=0, 0.8, 1.5, 3.0$ nm)、上下の強磁性層の磁気結合切断層 MgO (2.0 nm)の順番で製膜した。その上にスピン検出用強磁性層として $\text{Co}(1.0 \text{ nm})/\{\text{Tb}(0.45 \text{ nm})/\text{Co}(0.56 \text{ nm})\}_{15}/\text{Co}(2.0 \text{ nm})$ を電子ビーム蒸着法で製膜して MTJ 素子用の多層膜を用意した。X 線回折装置で結晶構造と格子歪みの評価を行い、SQUID 磁束計を用いて磁化測定を行った。またフォトリソグラフィと Ar イオンミリングを用いて直径が数 μm の MTJ 素子を作製し、膜面垂直方向に外部磁場を印加して磁気抵抗測定を行い I-CFO 薄膜のスピフィルター効率の評価を試みた。

実験結果

MgO(001)基板上では I-CFO 薄膜および C-CFO 薄膜は(001)方向にエピタキシャル成長することがわかった。また I-CFO 薄膜および C-CFO 薄膜の膜面垂直方向の格子定数はそれぞれ 8.32\AA と 8.37\AA であり、面内方向の格子定数はどちらも 8.42\AA であることから、面内方向の引張歪みが存在することがわかった。磁化測定から MTJ 素子用の多層膜は垂直磁化を示し、面内方向の引張歪みや層間の磁気結合により I-CFO 薄膜と C-CFO 薄膜は垂直磁気異方性が誘起されていることがわかった。MTJ 素子の電流電圧測定ではトンネル伝導を示す三次曲線が得られ、I-CFO 薄膜は良好なトンネル特性を示すことがわかった。また $t=0, 0.8, 1.5, 3.0$ nm のすべての MTJ 素子の磁気抵抗測定で強磁性層の磁化反転に伴う負の TMR 効果が観測された。第一原理計算から I-CFO の障壁高さはマイノリティスピンの方が低いため、負の TMR 効果は妥当である。TMR 比は $t=3.0$ nm の MTJ 素子において、100 K で -20% であり、I-CFO 薄膜のスピン注入効率は 18% 程度であった。TMR 比のバイアス電圧依存性の評価から、低バイアス電圧では TMR 比の絶対値が小さく、バイアス電圧を大きくすると TMR 比の絶対値が大きくなることがわかった。また $t=3.0$ nm の MTJ 素子では 150 K の場合 ± 0.25 V で TMR 比の絶対値が極大となり、それ以上のバイアス電圧では TMR 比の絶対値が低下することがわかった。この現象は I-CFO 薄膜における Fowler-Nordheim トンネル現象を用いて説明することができる。以上のように、本研究では I-CFO 薄膜による垂直磁化方式のトンネル型スピフィルター現象の観測に成功した。

FeCoNi/Cu 多層膜 GMR における NiFeCr 下地層組成の効果

Prabhanjan D. Kulkarni, 中谷友也, Zehao Li, 佐々木泰祐, 桜庭裕弥
(物質・材料研究機構)

The effects of the composition of NiFeCr seed layer on GMR in FeCoNi/Cu multilayer
Prabhanjan D. Kulkarni, Tomoya Nakatani, Zehao Li, Taisuke Sasaki, Yuya Sakuraba
(National Institute for Materials Science)

はじめに

反強磁性的に層間結合した強磁性/非磁性多層膜系における巨大磁気抵抗 (GMR) は、低コスト・量産性・耐久性の観点からエンコーダ等の磁気センサとして重要であり、軟磁気特性と高 GMR 比の両立は重要な課題である。高 GMR 比を得るためには、Co/Cu や Fe/Cr といった界面散乱のスピンの非対称性が大きい材料系の選択に加え、界面ラフネスなどに起因する 90°層間交換結合を低減し、反平行磁化を実現することが重要である。過去の研究から、NiFeCr などの下地層が、GMR 比に大きく影響することが知られているが[1, 2]、その組成依存性や GMR 増大のメカニズムについての理解は十分でない。本研究では、FeCoNi/Cu 多層膜の GMR、磁化特性、微細構造に対する NiFeCr 下地層組成の効果を調査した。

実験方法

スパッタリングによって熱酸化 Si 基板上に NiFeCr (5 nm)/[FeCoNi (3 nm)/Cu (1.1 nm)]₅/FeCoNi (3 nm)/Ru (5 nm) を室温成膜した。NiFeCr 下地層は Ni, Fe, Cr ターゲットから同時スパッタリングすることで、単体および 2 元合金を含めた 72 種類の組成について作製した。FeCoNi の組成は Fe₁₆Co₆₆Ni₁₈ (at. %) であり、軟磁性かつ低磁歪の組成を選択した。未熱処理の試料に対し、GMR、磁化特性、結晶・微細構造を評価した。

結果

図(a)に NiFeCr 組成に対する GMR 比 ($\Delta R/R$) の等高線図を示す。 $\Delta R/R$ は明確な NiFeCr 組成依存性を示し、(Ni_{0.55}Cr_{0.45})_{100-y}Fe_y (0 ≤ y ≤ 47 at. %) の組成の下地に対して、高い $\Delta R/R$ が得られる。図(a)中のクロスシンボルは代表的な試料 1-4 を示し、それらの GMR 曲線を図(b)に示す。図(c)に残留磁化の飽和磁化に対する比 (M_r/M_s) および $\Delta R/R$ の、反強磁性結合エネルギーの 90°結合エネルギーに対する比 (J_1/J_2) の依存性を示す。 J_1 と J_2 は磁化曲線から独立に求めることができる。層間交換結合の現象論モデルから導かれる通り、 $M_r/M_s = \sqrt{2 - J_1/J_2}/2$ に従い、 $\Delta R/R$ は J_1/J_2 に比例する。 $J_1/J_2 \geq 2$ であれば、 $M_r/M_s = 0$ すなわち完全な反平行磁化状態が実現され、 $\Delta R/R$ は 41.4% となることが予想されるが、実験における J_1/J_2 の最大値は 1.58 ($M_r/M_s = 0.33$) であり、反平行磁化状態は不完全である。

また、試料 1 と 3 は下地層の組成は近いものの、 $\Delta R/R$ は大きく異なる。X 線回折および走査透過電子顕微鏡による構造解析の結果、試料 3 は 1 に比べて、結晶粒が小さく、[111] 結晶配向性が低く、界面ラフネスが大きいことがわかった。また、試料 2 は 3 に比べて、[111] 配向性は低いものの、界面ラフネスが小さいために、比較的大きな $\Delta R/R$ を示すことが説明される。

文献 [1] Vas'ko *et al.* J. Appl. Phys. 93, 8409 (2003). [2] Bannikova *et al.* Phys. Met. Metallogr 116, 987 (2015).

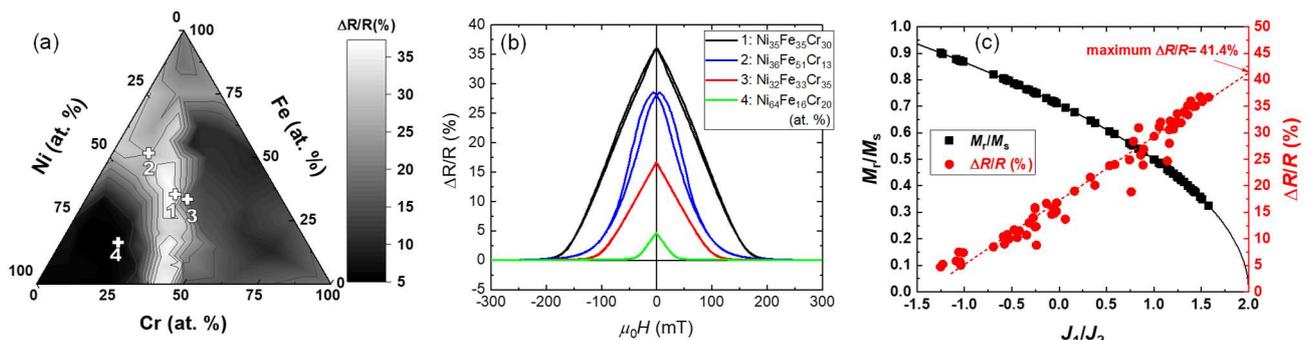


図 (a) $\Delta R/R$ の NiFeCr 組成依存性, (b) GMR 曲線, (c) M_r/M_s および $\Delta R/R$ の J_1/J_2 依存性.

異常ホール効果を用いた HDD 用リードセンサの検討

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

Study of HDD read sensors using anomalous Hall effect

Tomoya Nakatani, Prabhanjan D. Kulkarni, Hitoshi Iwasaki, Hirofumi Suto, Yuya Sakuraba
(National Institute for Materials Science)

はじめに

近年、次世代の HDD 用書き込み技術であるエネルギーアシスト記録の進展によって、HDD の記録密度が増大しており、 3 Tbit/in^2 を超す面記録密度が実証されている[1]。高記録密度化に伴う記録パターンの縮小にあわせて、読み出し素子（リーダー）の寸法も縮小する必要があるため、 4 Tbit/in^2 ではシールド間ギャップ G は 17 nm 、幅 W は 9 nm 程度となることが予想されている[2]。図 1(a) に示す現行のスピバルブ型トンネル磁気抵抗 (TMR) リーダーでは、膜厚の観点から、 4 Tbit/in^2 に対応した微小なリーダーの実現は難しい。そこで我々は、単一の強磁性体膜から構成される、異常ホール効果 (AHE) を用いたリーダーの可能性を検討した。

AHE リーダーの構造

図 1(b) は記録媒体対向面から見た AHE リーダーの模式図である。センサ層（スピバルブにおける自由層に相当）は AHE の大きな強磁性体からなり、その磁化はサイドシールドからの漏洩磁界によって横向きにバイアスされる。サイドシールドとセンサ層は、それらの間に挿入された導電性の非磁性層によって磁気的に分離されており、サイドシールドをリード電極として、センサ層にバイアス電流が通電される。上下シールドとサイドシールドは絶縁されており、リーダーの出力であるホール電圧 (ΔV) は上下シールドを電極として取り出され、その大きさはホールクロスとの類推から、 $\Delta V = 2\rho_{xy}J_xG\eta$ で表される。ここで、 ρ_{xy} は異常ホール抵抗率、 J_x はバイアス電流密度、 η は磁界回転範囲の利用率である。

信号雑音比の見積もり

超低抵抗 TMR センサ[3]と比較して、AHE リーダーの信号雑音比(SNR)を計算した。AHE リーダーのセンサ層には、現在知られている最も大きい AHE を示す材料の一つである Co_2MnGa 単結晶膜の値 ($\rho_{xy} = 20 \mu\Omega \text{ cm}$, 抵抗率 $\rho_{xx} = 220 \mu\Omega \text{ cm}$) を用いた[4]。リーダーやアンプの特性値は文献[2]に記載の値を用いた。

図 2 に SNR と記録密度の関係を示す。AHE リーダーは 2.4 Tbit/in^2 以上の記録密度にわたって、TMR リーダーより優れた SNR を示す。これは、 Co_2MnGa の大きな AHE（通常の $3d$ 金属・合金では $\rho_{xy} < 1 \mu\Omega \text{ cm}$ ）に加え、AHE リーダーではシールド間ギャップのほぼすべての空間をセンサ層で占めることができ、磁化の熱擾乱によるマグノイズが低減できるためである。この結果から、AHE リーダーは将来のリーダー技術としての可能性を有する。講演では、有限要素法シミュレーションによって見出された課題についても議論する。

文献 [1] Seagate Technology [2] Albuquerque *et al.* IEEE Trans. Magn. 58, 3100410 (2022). [3] Park *et al.* presented at TMRC 2019, D4 [4] Sumida *et al.* Commun Mater 1, 89 (2020).

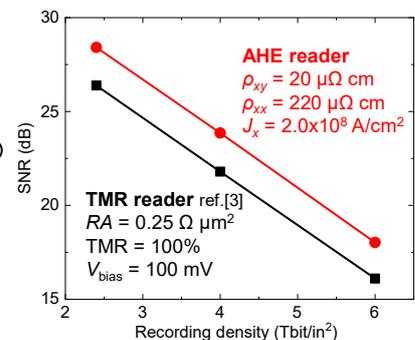
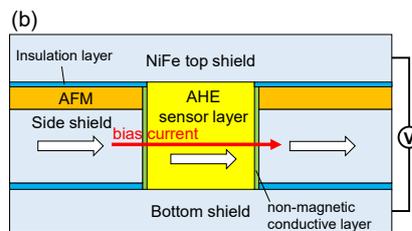
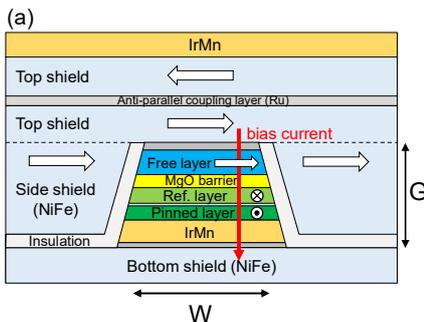


図 1 (a) スピバルブ TMR リーダーと, (b) AHE リーダー。

図 2 SNR の計算値。

Co₃Sn₂S₂ 化合物における強磁性転移によるスピントロニクス変換効率の増大

関剛斎¹、ラウヨンチャン^{1,2}、池田絢哉¹、藤原宏平¹、飯浜賢志^{3,4}、小沢耀弘¹、
野村健太郎⁵、塚崎敦^{1,6}

(¹ 東北大金研、² 中国科学院、³ 東北大学際研、⁴ 東北大材料高等研、⁵ 九大理、⁶ 東北大 CSIS)

Enhanced Spin Conversion Efficiency for Co₃Sn₂S₂ Compound by Ferromagnetic Phase Transition

T. Seki,¹ Y.-C. Lau,^{1,2} J. Ikeda,¹ K. Fujiwara,¹ S. Iihama,^{3,4} A. Ozawa,¹ K. Nomura,^{1,5} and A. Tsukazaki^{1,6}

(¹IMR, Tohoku Univ., ²CAS, ³FRIS, Tohoku Univ., ⁴WPI-AIMR, Tohoku Univ., ⁵Depart. of Phys., Kyushu Univ., ⁶CSIS, Tohoku Univ.)

はじめに 電流-スピントロニクス変換効率が高い材料の探索は、スピントロニクスデバイスの超省エネルギー化に向けた喫緊の課題である。スピントロニクス効果(SHE)は電流-スピントロニクス変換 (以下、スピントロニクス変換と記す) の代表的な現象であり、Pt や Ta などのスピントロニクス相互作用の大きい非磁性金属がスピントロニクス変換材料として利用されることが多い。最近では強磁性体や反強磁性体におけるスピントロニクス変換機構も重要な研究対象になっており、様々な材料で高いスピントロニクス変換効率が報告されている。

スピントロニクス変換材料の探索において、電子構造のトポロジカルな特徴に着目することが有効な指針となりうる。我々のグループでは、カゴメ格子を持つシャンドイト化合物である Co₃Sn₂S₂ (CSS) に注目し、CSS 薄膜における磁性および伝導特性を詳細に調べてきた¹⁻³⁾。CSS は磁性ワイル半金属の一つとして期待され、およそ 175 K の強磁性転移温度(T_c)以下で高いスピントロニクス分極率と巨大な異常ホール効果を示すことが知られている。一方で、 T_c 以上の温度で常磁性 CSS となるが、In あるいは Ni を元素ドーピングすることでフェルミ準位をチューニングでき、その結果としてスピントロニクス変換効率を増強できることがわかってきた⁴⁾。このことから常磁性 CSS はスピントロニクス変換材料の候補になることが示されたが、強磁性 CSS におけるスピントロニクス変換の効率および機構は未だ明らかになっていない。そこで本研究では、スピントロニクス強磁性共鳴(ST-FMR)法を用いて CSS のスピントロニクス変換の温度(T)依存性を評価し、強磁性転移により CSS のスピントロニクス変換効率がどのように変化するかを調べた。

実験結果 RF マグネトロンスパッタ法を用いて Al₂O₃ (0001)基板上に CSS 層および Si-O キャップ層を 400°C で成膜した後に 800°C でアニール処理した。その後、Si-O キャップ層を Ar イオンミリングで除去し、イオンビームスパッタ法により Cu 層、Co₂₀Fe₆₀B₂₀ (CFB)層および Al-O キャップ層を成膜した。この CSS (10 nm) / Cu (1.8 nm) / CFB (2 nm) / Al-O の積層膜を、ホールバー形状およびコプレーナ導波路形状へと微細加工し、電気伝導特性および ST-FMR スペクトルを測定した。

$T > T_c$ では、常磁性 CSS 層の SHE によるスピントロニクス軌道トルクと CFB 層の異方性磁気抵抗(AMR)効果によって整流電圧を生じて、ST-FMR の信号が観測された。一方、 $T < T_c$ では、CSS の強磁性転移に伴い CSS / Cu / CFB 三層構造での GMR 効果も発現するため、 $T < T_c$ における ST-FMR スペクトルの起源を説明するためには、CFB の AMR 効果のみならず CSS / Cu / CFB の GMR 効果の寄与も考慮する必要があることがわかった。さらに、ST-FMR スペクトルの磁場角度依存性を解析した結果、強磁性 CSS 層における SHE あるいはスピントロニクス異常ホール効果がダンピングライクトルク発生の主要因であることが示された。50 K $\leq T \leq$ 300 K の温度範囲でスピントロニクス変換効率を見積もったところ、強磁性転移を境にスピントロニクス変換効率の増大が観測され、 $T = 50$ K では 300 K の値の 1.4 倍に変換効率が向上することが明らかになった。

参考文献 1) K. Fujiwara *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **58**, 050912 (2019). 2) J. Ikeda *et al.*, *Commun. Mater.* **2**, 18 (2021), 3) J. Ikeda *et al.*, *Commun. Phys.* **4**, 117 (2021). 4) Y.-C. Lau *et al.*, arXiv:2203.02356.

Synthetic AF 構造を用いた Spin-orbit torque 効率の増大

斉藤好昭¹、池田正二^{1,4}、遠藤哲郎¹⁻⁵

(東北大¹CIES、²CSIS、³CSRN、⁴RIEC、⁵工学研究科)

Enhancement of current to spin current conversion efficiency in synthetic antiferromagnetic layer

Yoshiaki Saito¹, Shoji Ikeda^{1,4}, and Tetsuo Endoh¹⁻⁵

(Tohoku Univ. ¹CIES, ²CSIS, ³CSRN, ⁴RIEC, ⁵Graduate School of Engineering.)

はじめに

スピン軌道トルク(SOT)-MRAM、skyrmion、domain wall デバイス等の実現を目指し、重金属/強磁性接合系のスピン軌道トルク技術の研究開発が盛んに行われている。特に、磁化反転の効率、つまり、ある電流(J_C)を流したときのスピン流(J_S)の生成効率であるスピンホール角($|\theta_{SH}|=|J_S/J_C|$)を増加させるため、多くの重金属材料や重金属/強磁性界面の研究が行われ、 $|\theta_{SH}|$ が日に日に増加している。しかし、 $|\theta_{SH}|$ が大きな重金属材料の多くは、比抵抗が大きいのが現状である。LSIなどの大規模回路中で大きな比抵抗材料を配線として用いると、消費エネルギーの増大、スピードの遅延、大きな電圧降下をもたらす好ましくない。これらの課題を解決するためには、比抵抗の増大に起因する $|\theta_{SH}|$ の増大に頼らずにスピンホール効果を増大することが重要である。我々はこれら課題を解決するために、(Pt/Ir(またはRu)/Pt)多層膜材料を基軸とした Synthetic 反強磁性(AF)構造(Fig. 1)による $|\theta_{SH}|$ の増大を試みている¹⁻³。Synthetic AF 構造は、漏れ磁場が無い点、外部磁場に対する感受性が低い点、強磁性体よりも高速スイッチングが可能な点(反強磁スピントロニクス)からも最近注目されており、その観点からも大変興味深い。

実験方法

超高真空スパッタ装置を用いて、様々な Pt, Ir, Ru, Co 膜厚を有する Synthetic AF 構造を作製した。比較のため、Pt 単層膜を有する試料も作製した¹⁻³。例として、Sample I (Pt 単層膜)、Sample II (Synthetic AF 構造)の詳細構造をそれぞれ、Fig. 2(a) 2(b)に示す。磁気特性評価から、全ての試料は垂直磁気異方性を有していることを確認している^{1, 2}。それらの試料を微細加工しホールバー形状に加工し、SOT switching 特性を測定した。その反転磁場の電流によるシフトおよびスピンホール MR (SMR) の測定結果からスピン Hall 角の評価を行った¹⁻³。

実験結果

Fig. 2(c) 2(d)に、電流パルス幅 200 μ sec で測定した Sample I, Sample II の Switching 曲線を示す³。異常 Hall 効果の大きさは、Hall 曲線の値と一致していることから³、Pt 単層膜/Co は Co 膜全体がスピン反転し、Co/Pt/Ir/Pt/Co synthetic AF 構造は上下の Co が反強磁性結合を保ったまま電流パルスにより同時に反転していることが明らかになった³。反転電流密度の大きさの外部磁場 $H_y = 0$ Oe への外挿値は、Sample I, Sample II のそれぞれに対して、 $J_C (H_y = 0) = 7.9 \times 10^7$ A/cm²、 4.2×10^7 A/cm²と求めた³。以上より、Co/Pt/Ir/Pt/Co synthetic AF 構造のスピン反転電流密度は Pt 単層膜/Co のそれに比べて、約 1/2 倍に低減されることが明らかになった。 θ_{SH} の大きさは、Sample I, Sample II のそれぞれに対して、 $\theta_{SH} = 7\%$ 、 15.6% と求まり³、上記に示した反転電流密度の大きさと Consistent な値が得られた。当日は、磁気特性、電気特性の詳細を報告する。本研究は CIES コンソーシアム事業、JST-OPERA(JPMJOP1611)、文部科学省 次世代 X-nics 事業、科研費 (JP19H00844, JP21K18189) の支援のもとで行われた。

参考文献

1) Y. Saito, N. Tezuka, S. Ikeda and T. Endoh, Phys. Rev. B 104, 064439 (2021). 2) Y. Saito, S. Ikeda and T. Endoh, Appl. Phys. Lett. 119, 142401 (2021). 3) Y. Saito, S. Ikeda and T. Endoh, Phys. Rev. B 105, 054421 (2022).

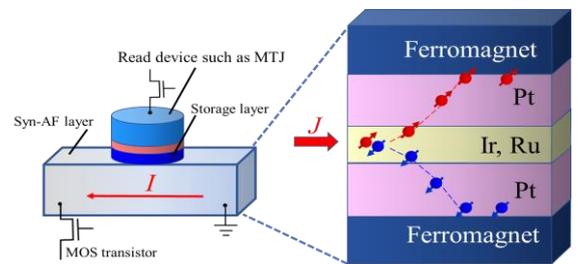


Fig. 1 Schematic diagram of our proposed memory cell with synthetic antiferromagnetic (AF) layer for SOT-MRAM.

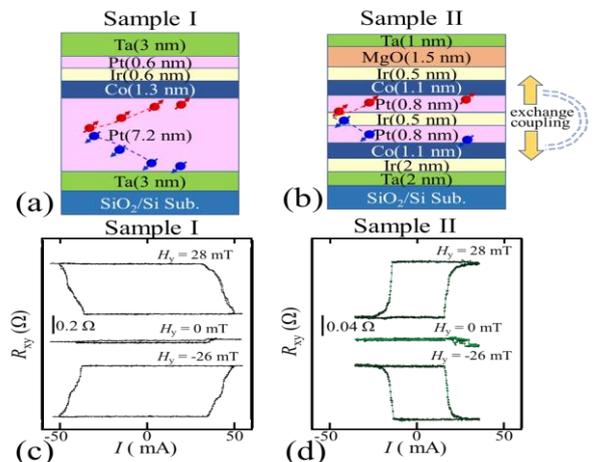


Fig. 2 Schematic of detailed film structures in (a) Sample I and (b) Sample II, and SOT switching properties under various fixed external magnetic fields (H_y) for (c) Sample I and (d) Sample II.

Ta 層上に積層した Gd / FeCo 多層膜のスピン軌道トルク

矢内峻介, 大島大輝, 高橋茂樹*, 平山義幸*, 加藤剛志
(名古屋大, *サムスン R&D)

Spin orbit torques of Gd / FeCo multilayers on Ta layer
S. Yanai, D. Oshima, S. Takahashi*, Y. Hirayama*, T. Kato
(Nagoya Univ., *Samsung R&D Institute Japan)

はじめに

スピン軌道トルク (SOT) 磁化反転は, 現行の MRAM 磁化反転方式であるスピン移行トルク (STT) 磁化反転方式に比べ高速かつ低消費エネルギーで書き込みでき, 読み出し・書き込み電流を別経路とすることが可能であるという特徴を有し, 次世代の MRAM 書き込み方式として注目されている^{1), 2)}。これまで我々は Ta 上に積層した GdFeCo 合金の SOT を調べ, ダンピングライクトルクによる有効磁界が磁化補償組成に近づくほど大きくなること, フィールドライクトルクによる有効磁界の符号が磁化補償組成を境に反転することを報告した³⁾。GdFeCo 合金に対して Gd/FeCo 多層膜はより高い垂直磁気異方性を示し, GdFeCo 合金と同様に磁化補償組成を持つことが知られている。また GdFeCo 合金において Gd 原子と FeCo 原子の膜厚方向の組成勾配により DMI が発現することが報告されており⁴⁾, Gd/FeCo 多層膜では膜厚方向の組成勾配を層厚比により容易に制御できる。本研究では Gd/FeCo 多層膜の SOT を測定し, GdFeCo 合金の SOT と比較した。

実験方法

試料作製には RF マグネトロンスパッタ装置を用いて, 熱酸化シリコン基板の上に Ta(20) / [Gd(t_{Gd}) / Fe₉₀Co₁₀(1 - t_{Gd})]₅ / SiN(5) (数字の単位は nm) を積層した。Gd 膜厚 t_{Gd} は 0.44 nm から 0.59 nm まで変化させた。サンプルはホールクロス幅が 8 μm になるように微細加工を行い, 異常ホール効果 (AHE), SOT 磁化反転, ダンピングライクトルクとフィールドライクトルクによる有効磁界 (それぞれ H_{DL} , H_{FL}) の測定を行った。

実験結果

図 1 の(a)と(b)は Gd/FeCo 多層膜の H_{DL} , H_{FL} の Gd 層厚依存性を示したものである。また同図に GdFeCo 合金のデータの Gd 原子組成比を Gd 層厚に変換し載せている。図 1 の(a)より, Gd/FeCo 多層膜の H_{DL} の大きさは GdFeCo 合金と同様に補償点に近づくほど大きくなる。また図 1 の(b)より, Gd/FeCo 多層膜の H_{FL} の符号は GdFeCo 合金と同様に補償点を超えると変化することが分かった。したがって Gd/FeCo 多層膜の SOT は GdFeCo 合金とほぼ同じとなる。

参考文献

- 1) L. Liu et al.: Science **336**, 555 (2012).
- 2) L. Liu et al.: Phys. Rev. Lett. **109**, 096602 (2012).
- 3) K. Kawakami et al.: J. Appl. Phys. **59**, SEEF01 (2020).
- 4) D.-H. Kim et al.: Nature Mater. **18**, 685 (2019).

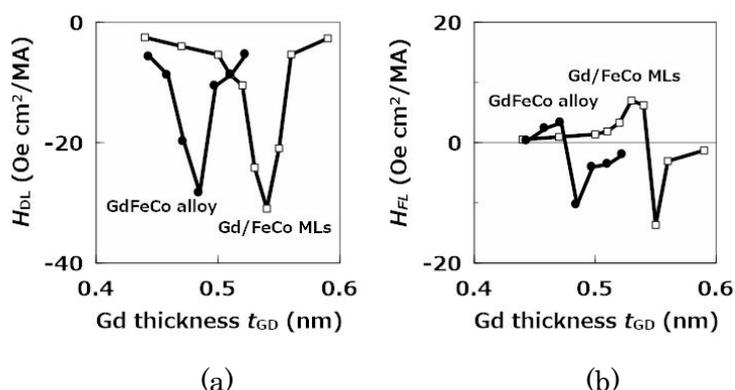


Fig.1 Gd thickness t_{Gd} dependence of (a) damping-like SOT effective field H_{DL} and (b) field-like SOT effective field H_{FL} of Ta / [Gd / FeCo] MLs (open symbols). H_{DL} and H_{FL} of Ta / GdFeCo bilayers are also shown as closed symbols³⁾.

交換バイアスを印加した Tb-Fe 層における無磁場中 スピンオービットトルク磁化反転の観察

黒川雄一郎、若江将和、濱田勇樹、藤本真大、伊藤正裕、湯浅裕美
(九大)

Observation of field free spin orbit torque-induced magnetization switching in Tb-Fe alloy film with
exchange bias field

Y. Kurokawa, M. Wakae, Y. Hamada, M. Fujimoto, M. Itoh, H. Yuasa
(Kyushu Univ.)

序論

電流による磁化方向の操作は不揮発性メモリである MRAM(MagnetoResistive Random Access Memory)への応用が可能であり、多くの研究が行なわれている。電流によって生じる磁化を操作するためのトルクは大きく分けて二つ存在し、そのうちの一つが Spin Orbit Torque (SOT)である。SOT による磁化操作は非常に高速に行うことができるという、MRAM で用いるうえでのメリットが存在するが、一方で、SOT を用いた磁化反転には外部から面内磁場を印加する必要があるというデメリットが存在する。メモリに応用する際には外部面内磁場を印加する機構は小型化の障壁となりうる。そのため、SOT 磁化反転の観測に必要な外部面内磁場を取り除くことは、実用化する上で重要な課題である。近年、この問題を解決する方法として、反強磁性体と強磁性体の界面で生じる交換バイアスを用いる方法が提案された[1]。しかしながら、この手法では面内磁場中での熱処理を必要とし、工程が増えるという課題がある。本研究では面内磁場を印加しながら磁性体を積層することで、交換バイアスの付与を行い、熱処理工程を無くしても無磁場中 SOT 磁化反転が観察可能であるかどうかを調べた。

実験方法

熱酸化 Si 基板上に Pt/Tb-Fe/IrMn 多層膜をスパッタリングによって堆積した。その際、永久磁石を試料ホルダにセットすることで、面内方向の磁場を基板に印加した。その後、フォトリソグラフィを用いて $5\mu\text{m}$ の幅を持つ細線に加工した。SOT 磁化反転は印加電流を変化させながら異常ホール効果を観察することで検出した。

実験結果

図 1 に作製した試料に無磁場中で通電したときのホール電圧を示す。黒い線は磁場中で試料の製膜を行ったもの、赤い線は無磁場中で試料の製膜を行ったものをそれぞれ示している。図から明らかのように、無磁場中製膜では SOT 磁化反転が観察されなかったのに対し、磁場中で製膜を行ったものはヒステリシスを有し、無磁場中でも SOT によって磁化反転していることが分かる。これより、磁場中製膜を行うことで、明らかに Tb-Fe に IrMn からのバイアス磁場が印加されることが分かった。したがって、熱処理を行わなくても磁場中製膜により面内方向にバイアス磁場を印加できることが分かった。

謝辞

この研究は科研費(JP18K13805、JP21K14487)の支援を受けて行われたものです。

参考文献

- 1) S. Fukami, C. Zhang, S. DuttaGupta, A. Kurenkov, and H. Ohno, Nat. Mater. **15**, 535 (2016).

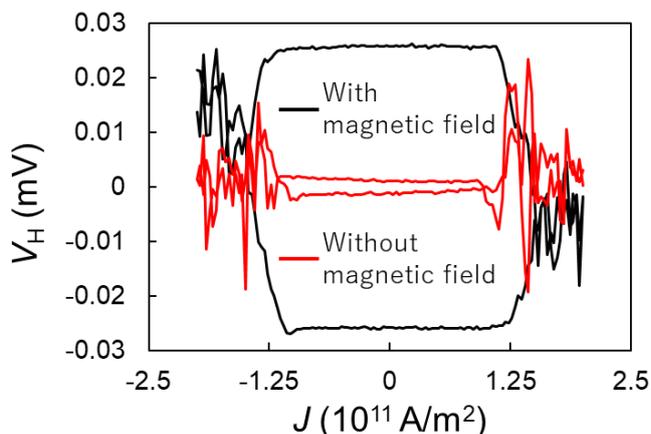


Fig. 1 Hall voltage (V_H) as a function of current density (J) under in-plane magnetic field $\mu_0 H_x = 0$ mT for the samples sputtered with (black line) or without magnetic field (red line).

スピン軌道トルクによるノンコリニア反強磁性体の カイラルスピン構造の回転

竹内祐太郎¹、山根結太^{2,3}、尹注鏞^{3,4}、伊藤隆一^{3,4}、陣内佛霖¹、金井駿³⁻⁵、家田淳一⁶、大野英男^{1,3-5,7}、深見俊輔^{1,3-5,7}

(¹東北大学 WPI-AIMR、²東北大学 FRIS、³東北大学 通研附属ナノ・スピン実験施設、⁴東北大学 工学研究科、⁵東北大学 CSIS、⁶原子力機構 ASRC、⁷東北大学 CIES)

Spin-orbit torque induced rotation of chiral-spin structure in non-collinear antiferromagnet

Y. Takeuchi¹, Y. Yamane^{2,3}, J.-Y. Yoon^{3,4}, R. Itoh^{3,4}, B. Jinnai¹, S. Kanai³⁻⁵, J. Ieda⁶,
H. Ohno^{1,3-5,7}, and S. Fukami^{1,3-5,7}

(¹WPI-AIMR, Tohoku Univ., ²FRIS, Tohoku Univ., ³Laboratory for Nanoelectronics and Spintronics, RIEC, Tohoku Univ., ⁴Graduate School of Engineering, Tohoku Univ., ⁵CSIS, Tohoku Univ., ⁶ASRC, JAEA, ⁷CIES, Tohoku Univ., Japan)

反転対称性が破れた磁性ヘテロ構造などでは電流の印加によってスピン軌道トルク(SOT)が誘起され、種々の磁性材料の磁気秩序を電氣的に制御できる¹⁾⁻⁵⁾。このような中、ノンコリニア反強磁性体が僅かな非補償磁化しか有さないにもかかわらず大きな異常ホール効果⁶⁾を示すことから近年注目されている。また、最近では SOT によるノンコリニア反強磁性体の非補償磁化の反転⁷⁾が報告されるなど機能性デバイス応用に向けた研究が活発になっている。一方、ノンコリニア反強磁性体特有の現象や新機能に着目した研究はきわめて少ない。本講演では、ノンコリニア反強磁性体 Mn_3Sn のエピタキシャル薄膜からなるヘテロ構造において、SOT によって誘起されたカイラルスピン構造の恒常回転現象を観測した結果を報告する。

スパッタリング法によって MgO(110)基板上に W(3 nm)/Ta(1 nm)/ Mn_3Sn (8.3-22.3 nm)/Pt(4 nm)の構造の薄膜⁸⁾を成膜し、成膜後に 500°C で熱処理を行ったのち、ホール素子に加工した。Fig. 1 は成膜した薄膜の走査透過電子顕微鏡像である。 Mn_3Sn 層が M 面配向エピタキシャル成長している様子が確認できる。SOT に対する Mn_3Sn カイラルスピン構造の応答を調べるために、 Mn_3Sn のホール抵抗 R_H とパルス電流の振幅 I の関係を調べた。Fig. 2(a),(b)にその結果を示す (R_H と外部磁場 H の関係も Fig. 2(a)中に示す)。電流による異なる R_H 状態への遷移、その閾値電流の電流方向依存性、高電流領域での R_H の擾乱、といった特徴的な振る舞いが観測された。より詳細な実験と計算結果から、この R_H の特徴的な振る舞いは SOT による Mn_3Sn のカイラルスピン構造の回転によるものであることが明らかになった⁹⁾。この現象は従来のスピントロニクス現象とは一線を画すものであり、今後の高効率・新機能デバイスへの展開が期待される。

参考文献

- 1) I. M. Miron *et al.*, Nature **476**, 189 (2011).
- 2) L. Liu *et al.*, Science **336**, 555 (2012).
- 3) S. Fukami *et al.*, Nat. Nanotechnol. **11**, 621 (2016).
- 4) P. Wadley *et al.*, Science **351**, 587 (2016).
- 5) S. DuttaGupta *et al.*, Nat. Commun. **11**, 5715 (2020).
- 6) S. Nakatsuji *et al.*, Nature **527**, 212 (2015).
- 7) H. Tsai *et al.*, Nature **580**, 608 (2020).
- 8) J.-Y. Yoon *et al.*, Appl. Phys. Express **13**, 013001 (2019).
- 9) Y. Takeuchi *et al.*, Nat. Mater. **20**, 1364 (2021).

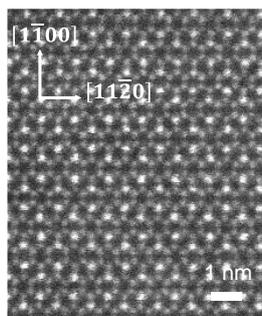


Fig.1 Cross-sectional STEM image of Mn_3Sn layer in prepared stack.

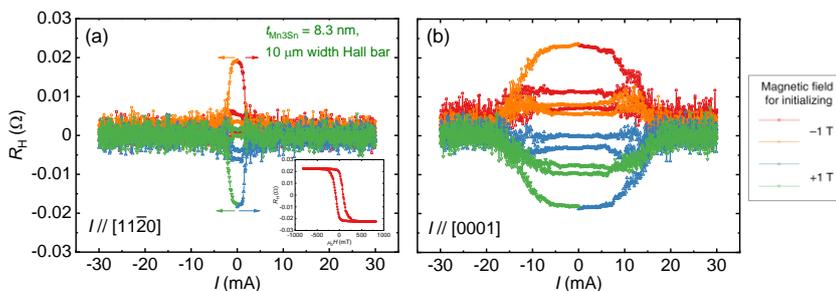


Fig. 2 (a), (b) Hall resistance (R_H) as a function of applied current pulse amplitude (I) in W(3 nm) / Ta(1 nm) / Mn_3Sn (8.3 nm) / Pt(4 nm) heterostructure for cases of $I \parallel [11\bar{2}0]$ and $I \parallel [0001]$, respectively. The width of current pulse is 100 ms. The inset of Fig. 2(a) shows R_H versus out-of-plane magnetic field (H).

人工反強磁性体における電流誘起磁化反転プロセスの 磁区構造イメージング

増田啓人^{1,2}、山根結太^{3,4}、関剛斎^{1,5}、ラークラウス⁶、土肥昂堯⁶、モダックラージクマール⁵、
内田健一^{1,5}、家田淳一⁷、クラウイマティアス⁶、高梨弘毅^{1,7}

(¹東北大金研、²東北大院工学研究科、³東北大学際研、⁴東北大通研、⁵物材機構、
⁶ヨハネスグーテンベルク大メインツ、⁷原子力機構先端基礎)

Domain structure imaging of current-induced magnetization switching process in a synthetic antiferromagnet
H. Masuda^{1,2}, Y. Yamane^{3,4}, T. Seki^{1,5}, K. Raab⁶, T. Dohi⁶, R. Modak⁵, K. Uchida^{1,5}, J. Ieda⁷,
M. Kläui⁶, and K. Takanashi^{1,7}

(¹IMR, Tohoku Univ., ²Grad. Sch. Eng., Tohoku Univ., ³FRIS, Tohoku Univ., ⁴RIEC, Tohoku Univ., ⁵NIMS,
⁶Johannes Gutenberg Univ. Mainz, ⁷ASRC, JAEA)

はじめに 反強磁性体は、磁場ノイズ耐性、漏れ磁場の抑制及び高速な磁化ダイナミクスなど磁気メモリデバイスの高密度化及び高速化に有利な性質を備え、近年スピン軌道トルクを用いた磁気構造の電氣的制御が実証されたことからデバイス応用化に向けた研究が盛んに行われている[1]。しかしながら、反強磁性磁気構造と伝導電子スピン間の相互作用については未だ不明な点も多く、系統的な実験に基づいた物理機構の解明が求められている。反強磁性磁気構造と伝導電子スピンの相互作用を系統的に調べる対象として注目されているのが、人工反強磁性体である。Co/Cu/Co や Co/Ir/Co など強磁性層と非磁性層を nm オーダーで交互に積層した構造では、層間交換結合により特定の層厚で二つの強磁性層の磁化が非磁性中間層を介して反強磁性的に結合し、さらに層厚変調により反強磁性結合強度が周期的に変化することが知られている[2,3]。この性質はバルク反強磁性体にはなく、反強磁性磁気構造に作用するスピン軌道トルクの系統的な実験を可能にする。これまで中間層もしくは隣接する外部層にスピンホール効果を示す非磁性材料を配置することで電流誘起磁化反転が調べられてきたが[4,5]、反強磁性結合が強い系において効率的に磁化反転させるための指針は確立されておらず、反転機構についても十分な理解が得られていない。そこで本研究では、結合強度を層厚によって大きく変調できる Co/Ir/Co を人工反強磁性体として選択し、それを大きなスピンホール効果を示す Pt で挟んだ構造において、カー顕微鏡を用いた磁区構造観察により電流誘起磁化反転プロセスの解明を試みた。

実験結果 マグネトロンスパッタリングにより熱酸化 Si 基板上に Ta(1 nm)/Pt(2 nm)/Co(0.65 nm)/Ir($t_r = 0.45$ nm, 0.5 nm, 0.8 nm, 1.3 nm)/Co(0.9 nm)/Pt(2 nm)/Ta(1 nm) を成膜した。振動試料型磁力計により測定した垂直磁化曲線から t_r に対する飽和磁場の周期的変化が観測され、Co/Ir/Co 構造における層間交換結合が確認された。また、 $t_r = 0.5, 0.8$ 及び 1.3 nm では垂直磁気異方性が支配的であったが、 $t_r = 0.45$ nm においては面内方向にも残留磁化が観測された。これらの試料を微細加工法により幅 5 μm のホールバー形状へと加工し、100 ms 幅の dc 電流を印加しながらカー顕微鏡により磁区構造観察を行なった。反強磁性結合を有する $t_r = 0.5$ 及び 1.3 nm では 20 mA 程度の電流印加後にワイヤー部分の広い領域でコントラスト変化が生じ、電流誘起磁化反転が観測された。一方、強磁性結合を有する $t_r = 0.8$ nm では電流値 10 mA の印加後に部分的なコントラスト変化がワイヤー内でまばらに生じ、電流値が増加するにつれて徐々に反転領域が広がっていく振る舞いが観測された。また、面内磁化成分を持つ $t_r = 0.45$ nm では異なる色のコントラスト変化の混在が観測された。これらの観察結果は、電流誘起磁化反転プロセスが結合強度の大きさや磁化の面内成分の有無に強く依存することを示唆している。講演時にはマクロスピンモデルを用いた解析も示し、より詳細な磁化反転機構を議論する予定である。

参考文献 1) V. Baltz *et al.*, *Rev. Mod. Phys.* **90**, 015005 (2018). 2) H. Masuda *et al.*, *Phys. Rev. B* **101**, 224413 (2020). 3) H. Masuda *et al.*, *Phys. Rev. Appl.* **17**, 054036 (2022). 4) G. Y. Shi *et al.*, *Phys. Rev. B* **95**, 104435 (2017). 5) Q. Ma *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **117**, 172403 (2020).

スモールデータ機械学習に基づく磁性多層膜設計： アンサンブル学習とデータ拡張法による予測精度の向上

名和憲嗣^{1,2}, 萩原克幸¹, 三浦良雄², 中村浩次¹
(¹三重大院,²物材機構)

Magnetic multilayer design by small-data-based machine learning:
Implementation of data augmentation and ensemble learning for high prediction accuracy

K. Nawa^{1,2}, K. Hagiwara¹, Y. Miura², K. Nakamura¹
(¹Mie Univ., ²NIMS)

はじめに

機械学習を応用したマテリアルズ・インフォマティクスに関する近年の研究開発は著しく、磁性・熱電・超伝導体などの多様な材料系で応用されるなど、その適用範囲は幅広い¹⁾。このようなデータ駆動型の材料開発を効率的かつ高精度に実施するには、高い信頼度のデータを膨大に含むビッグデータの構築が必要である。一方、第一原理計算の観点からは、定量的な物理量の評価にはしばしば大きな計算コストを要するため、十分な第一原理データベース構築は重大な障壁となり得る。我々は、スモールデータに基づく機械学習による材料設計の実現を目指している。本研究では、階層型ニューラルネットワーク (NN) を用いたスモールデータの適切な学習を目的に、アンサンブル学習 (Bootstrap aggregating; Bagging) とガウスノイズによるデータ拡張法 (GDA) を導入した。さらにケーススタディとして、人工多層膜 CoFe の磁気モーメント、生成エネルギー、結晶磁気異方性エネルギー、磁気ダンピング定数の学習・予測に適用した。ここでは MgO(001)上に9原子層の $\text{Co}_{0-x}\text{Fe}_x$ を積層し、全 512 ($=2^9$) 通りの積層配列に対する各物性値を、一般化勾配近似に基づくフルポテンシャル線形化補強平面波法²⁾により算出した。NN の入力データである積層配列は 2 値のダミー変数 ($0 = \text{Fe}$, $1 = \text{Co}$) で定義した。NN の中間層を 3 層とし、中間層と出力層の活性化関数はそれぞれ ReLU (Rectified Linear Unit) および線形関数を用いた。

結果と考察

CoFe 多層膜の全 512 配列の中からランダムに選択した 102 配列 (全体の 20%) と対応する磁気モーメント (m_{spin}) を教師データとして NN に学習させた後、残り 410 配列 (全体の 80%) の m_{spin} を予測した。続いて、第一原理計算の結果に対する予測精度を決定係数 R^2 により評価した。Table I より、GDA および Bagging アンサンブル学習を用いない場合は、 $R^2 = 0.5895$ の予測精度が得られ、NN による予測の正解率は約 6 割弱となった。次に Bagging を導入したところ $R^2 = 0.7693$ と向上が見られ、さらに GDA も導入すると $R^2 = 0.9097$ となり、9 割超の高い予測精度が得られた。以上の結果から、スモールデータ駆動型の材料設計において GDA や Bagging が機械学習の予測精度向上に有効であることが示唆される³⁾。発表では、Bagging および GDA の導入による予測精度向上の起源と、生成エネルギーや結晶磁気異方性エネルギー、磁気ダンピング定数に対する適用結果も報告する。

本研究の一部は、科研費 (JP22K14290, JP21K03444, JP21H04562, JP19K03716)、岡三加藤文化振興財団、中部電気利用基礎研究振興財団の支援により実施された。

Table I. Summary of R^2 score for conventional NN and NNs with Bagging only or both Bagging and GDA applied.

	R^2 score
Conventional NN	0.5895
NN with Bagging	0.7693
NN with Bagging & GDA	0.9097

参考文献

- 1) Y. Iwasaki, et al., *Commun. Mater.* **2**, 31 (2021); V. Stanev, et al., *npj Compu. Mater.* **4**, 29 (2018).
- 2) K. Nakamura, et al., *J. Magn. Magn. Mater.* **537**, 168175 (2021); 中村浩次, 加藤夕奈, まぐね **15**, 217 (2020).
- 3) K. Nawa, K. Hagiwara, K. Nakamura, submitted.

Pt/Co/Spacer(Pt, Ir, Au)/Cr₂O₃/Pt 積層膜における垂直交換磁気異方性 に対するスペーサ層材料の影響

江川浩史, 沈佳琦, 豊木研太郎, 中谷亮一, 白土優

(大阪大学)

Influence of heavy metal spacer layer on perpendicular exchange anisotropy
in Pt/Co/Spacer(Pt, Ir, Au)/Cr₂O₃/Pt stacked films

Hirofumi Ekawa, Shen Jiaqi, Kentaro Toyoki, Ryoichi Nakatani and Yu Shiratsuchi

(Osaka Univ.)

はじめに 強磁性体と反強磁性体の界面で発生する交換バイアスは、強磁性体の磁化方向を一方向に固定する効果として、磁気ランダムアクセスメモリなどの磁気メモリ素子に活用されている。最近では、外場によって交換バイアスを等温可逆的に制御することも可能になっており、新たな磁化制御方法としても注目されている。特に、反強磁性体としてCr₂O₃を用いた交換バイアスは、電気磁気効果による等温可逆反転が可能な有望な系である。本技術の実現に向けた一つの課題は、交換バイアスと保磁力の制御にある。本研究では、我々は強磁性体Co層と反強磁性体Cr₂O₃層の界面に重金属層をスペーサ層として挿入することで、交換バイアスの制御を試みた結果について報告する。

実験方法 試料作製には、DC マグネトロンスパッタリング法を用いた。作製した試料の構成は、Pt/Co/X(Pt, Ir)/Cr₂O₃/Pt 積層膜である。基板には、 α -Al₂O₃(0001)単結晶基板を用いた。スペーサ層の膜厚を、0.5 nm, 1.0 nm, 1.5 nm, 2.0 nm と変化させることで、Co-Cr₂O₃ 関連の交換結合強度を制御した。構造評価には、RHEED と X線回折法を用いた。磁気特性評価には、振動資料型磁力計と極磁気光学 Kerr 効果 (MOKE) 測定装置を用いた。MOKE 測定は、極配置で行い、入射光の波長を 405 nm とした。測定温度は、80 K から 300 K とした。

実験結果 室温での磁化曲線測定により、作製した全ての薄膜が垂直磁気異方性を示すことが分かった。Pt をスペーサ層として挿入した薄膜の交換バイアスと保磁力の温度依存性を、Fig. 1(a), (b) にそれぞれ示す。スペーサ層膜厚を 0.5 nm, 1.0 nm とした薄膜では、測定した温度範囲内で交換バイアスが観測された。80 K における交換バイアス磁場は、スペーサ層膜厚に対して指数関数的に低下する。同様の交換バイアス磁場の指数関数的低下は、スペーサ層材料を Ir, Au とした場合にも生じるが、減衰長はスペーサ層材料によって変化する。スペーサ層として Ir を用いた場合は、スペーサ層膜厚が 1.0 nm 以上で交換バイアスは低下し、Pt 層と比較して減衰長が早い。一方、スペーサ層として Au を用いた場合は、スペーサ層膜厚を 2.0 nm とした場合でも交換バイアスが保持され、減衰長が長いことが分かった。

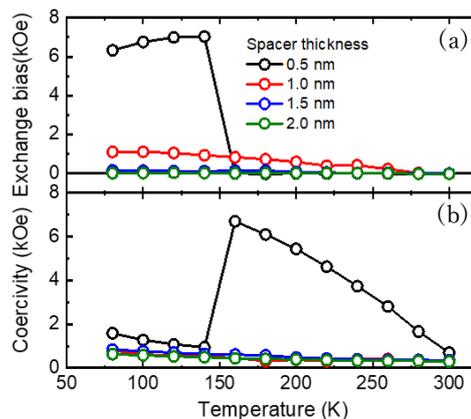


Fig. 1 Pt スペーサ層を挿入した試料に対する (a) 交換バイアス磁場と (b) 保磁力の温度依存性。

PMN-PT 基板を用いた Pt / CoFeB 二層膜系スピンドイナミクスの電界制御

一兜博人、飯森陸、大日方初良、大西紘平、山田和正、木村崇
(九大院理)

Electric field control of spin dynamics in Pt / CoFeB bilayer system using PMN - PT substrate

H. Hitotsukabuto, R. Iimori, S. Obinata, K. Ohnishi, K. Yamada and T. Kimura

(Dept. of Phys., Kyushu Univ.)

はじめに

強誘電体 / 強磁性体のマルチフェロイック界面における歪みを媒介とした電気 - 磁気結合は、超低消費電力なスピンドバイスにおける駆動機構として有望視されている^{1,2)}。本研究では、強誘電体の piezo 効果を利用した歪みの伝播または強誘電体ドメイン状態の変化等による重金属層のスピホール角の変調を捉えることを目的とし、強誘電体 / 重金属 / 強磁性体の素子構造におけるスピン流 - 電流変換の電界効果を評価した。

実験方法

薄膜作製は高真空マグネトロンスパッタ装置により行い、任意の面方位の $0.7\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3 - 0.3\text{PbTiO}_3$ (PMN - PT) 単結晶基板の上に Pt / CoFeB の 2 層膜を成膜した。その後、200 nm 程度の Cu 膜を蒸着し、piezo 電極及び検出用電極とした。得られた PMN - PT / Pt / CoFeB において、強磁性共鳴を利用した動的スピン注入を実施し、逆スピホール効果を介したスピン流 - 電流変換強度の電界依存性を評価した。

実験結果

Fig. 1 に面内電極構造における素子の模式図、Fig. 2 に動的スピン注入実験により得られたスピン流 - 電流変換強度 $I(E)/I(0)$ の電界依存性、内挿図に各電界における検出スペクトル $\Delta V/V_{\text{max}}$ を示す。Fig. 1 の素子構造において、 $\Delta V/V_{\text{max}}$ は CoFeB の共鳴磁場に対応したピークを示した。 $I(E)/I(0)$ は、電界印加に伴い減少し、 $E > 10 \text{ kV/cm}$ では急激な減少を示した。 $E > 10 \text{ kV/cm}$ における振る舞いは、電界に誘起された PMN - PT の構造相転移³⁾が関与していると考えられる。講演では、CoFeB の磁化及び PMN - PT の構造の電界応答等を交え、PMN - PT / Pt / CoFeB における Pt のスピホール角の電界変調や制御の可能性について議論する。

参考文献

- 1) S. Fujii, *et al.* NPG Asia Mater., **14**, 43 (2022).
- 2) Song C., *et al.* Prog. Mater. Sci., **87**, 33 (2017).
- 3) W. Zhiguang, *et al.* Phys. Rev. B **90**, 134103 (2014).

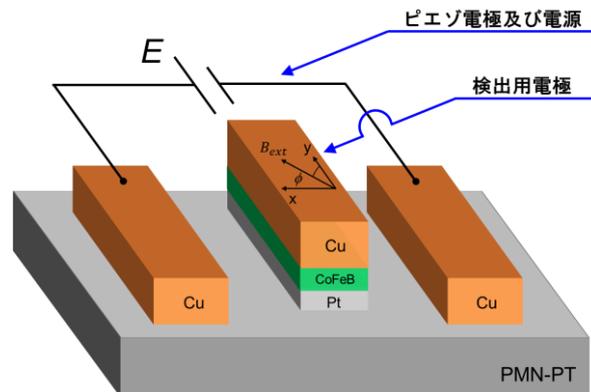


Fig. 1 面内電極構造における PMN-PT / Pt / CoFeB 素子の模式図

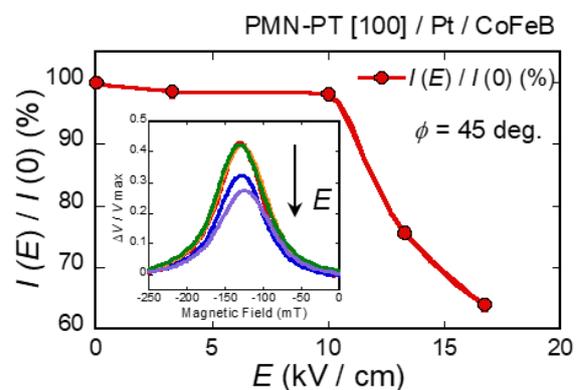


Fig. 2 磁場方向 $\phi = 45 \text{ deg.}$ における $I(E)/I(0)$ の電界依存性(内挿図は検出スペクトル)

NiFe/Pt 二層膜を伝播する表面弾性波の非相反的な減衰効果

篠崎 諒^A, 山野井 一人^A, 能崎 幸雄^{A,B}
(慶大理工^A, 慶大スピン研^B)

Nonreciprocal Attenuation of Surface Acoustic Wave Propagating in NiFe/Pt Bilayer

Ryo Shinozaki^A, Kazuto Yamnoi^A, Yukio Nozaki^{A,B}
(^ADept. of Phys. Keio Univ., ^BKeio Spintronics Center)

はじめに

スピンホール効果(SHE)などスピン軌道相互作用(SOI)を用いたスピン流の生成は、次世代スピンメモリの磁化スイッチングへの応用に向けて盛んに研究されている。一方、SHEの発現にはSOIの強い貴金属やその界面などが不可欠なため、これがデバイス応用における材料選択を限定していた。これに対し、巨視的な回転運動とミクロな電子スピンの角運動量変換理論(磁気回転効果)が松尾らによって予言されて以降[1]、物質固有のSOIに頼らないスピン流生成法が注目されている。実際、弱SOI物質のCu薄膜を伝播するレイリー型表面弾性波(SAW)の格子回転運動が交流スピン流を生成し、これによるスピン波共鳴の励起が実証されている[2]。今回、強SOI物質のPtと強磁性NiFeの二層膜にSAWを注入し、スピン波共鳴の誘引に伴うその原因の解明のために、SAWの減衰の外部磁場印加角度依存性を測定し、定量的に解析した。SAWの減衰強度を測定したところ、正負の共鳴磁場においてSAWの減衰強度が非対称になる非相反性を発見したのでこれを報告する。

実験方法

素子の模式図を図1に示す。電子ビーム蒸着を用いたリフトオフ法により、LiNbO₃圧電基板上にTi(3 nm)/Au(30 nm)からなる一对のSAW生成・検出用すだれ状電極(IDT)を作製し、IDT間に300 μm角のNiFe(20 nm)/Pt(40 nm)二層膜を成膜した。Pt層を伝播するSAWが磁気回転効果によりスピン流を生成すると、これがNiFeに注入され、スピントランスファートルクによりスピン波共鳴が生じる。このときのSAW減衰強度を、ベクトルネットワークアナライザを用いて測定した。なお、SAWの励起周波数は1.33GHzに固定した。

実験結果

図2(a)および(b)は、外部磁場をSAW伝播方向および伝播方向から160°面内に回転させた方向で正から負の方向に掃引しながら測定したSAW減衰強度である。印加したSAWと周波数、波長が一致するスピン波が励起される磁場で減衰強度が大きくなることを確認した。また、正磁場と負磁場で見られるSAW減衰強度は、磁場印加角度に依存して非対称になる結果が得られた。これは、SAWにより非相反的にスピン波が誘引されることを示唆している。これまで、磁気弾性効果[3]や磁気異方性[4]を有する強磁性薄膜においてSAW誘引のスピン波が非相反的になる報告はあるが、今回の実験のようにこれらが小さなNiFe薄膜で大きな非相反性が見られた例はほとんどない。発表では、その起源について議論する。

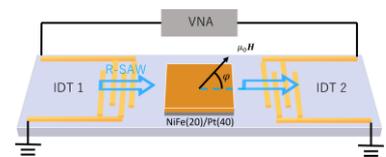


図1 SAW素子の模式図

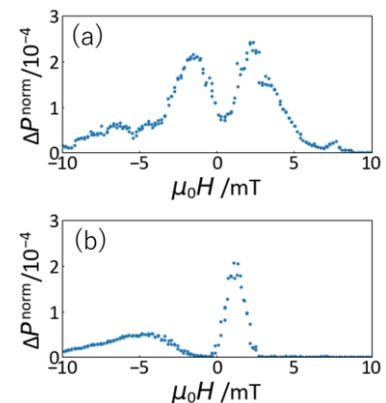


図2 SAW減衰強度の磁場依存性。磁場印加角度(a)0、(b)160°

- [1] M. Matsuo et al., Phys. Rev. B, **87**, 180402 (2013).
 [2] D. Kobayashi et al. Phys. Rev. Lett. **119**, 077202 (2017).
 [3] R. Sasaki et al., Phys. Rev. B **95**, 020407(R) (2017).
 [4] M. Xu et al., Sci. Adv. **6**, eabb1724 (2020).

永久磁石を有する直交磁心型可変インダクタ

会津翔太, 中村健二, *大日向 敬, *有松健司
(東北大学, *東北電力)

Orthogonal-Core-type Variable Inductor with Permanent Magnets

S. Aizu, K. Nakamura, *T. Ohinata, and *K. Arimatsu
(Tohoku University, *Tohoku Electric Power Co., Inc.)

はじめに

可変インダクタは、電力用コンデンサと組み合わせることで、系統に並列に接続することで、無効電力補償型の電圧調整装置として応用できる。先に筆者らは、カットコアと積層コアの2種類のコアからなる、新しい直交磁心型可変インダクタを提案した¹⁾。本可変インダクタは両コアの接合面で積層が平行に揃うため、層間短絡が生じない。

本稿では、上述の可変インダクタの直流制御磁束の磁路に永久磁石を挿入することで、無制御時にもある一定の大きさの無効電力の供給を可能にするとともに、制御電流を正負に変化させることで、無効電力を線形かつ連続的に制御可能な新しい可変インダクタについて、リラクタンسネットワーク解析(RNA)を用いて検討したので報告する。

永久磁石を有する直交磁心型可変インダクタの特性

Fig. 1 に、考察に用いた直交磁心型可変インダクタの諸元を示す。カットコア側に直流制御巻線を配置し、積層コア側に交流主巻線を配置する。

Fig. 2 に、永久磁石を挿入した直交磁心型可変インダクタを示す。カットコア側から生じる直流制御磁束の磁路に対して直列に永久磁石を挿入することで、制御電流がゼロの状態でも、ある一定の大きさの無効電力を発生させることができる。また、直流制御電流の大きさと向きを制御することで、無効電力を増減させることができる。

本稿では、同図(a)~(c)に示すように、3種類の磁石配置について、RNAを用いて無効電力制御特性を算定した。なお、磁石材料はフェライト磁石である。

Fig. 3 に、各磁石配置に対する無効電力制御特性の算定結果を示す。また、磁石の無い従来の可変インダクタの特性も同図中に示す。なお、磁石厚は各配置毎に調整して最適化している。この図を見ると、いずれの配置においても、制御電流が0 Aの点で一定の大きさの無効電力を発生できていることがわかる。また、制御電流を正負に変化させることで、線

形かつ連続的に無効電力を制御できていることが了解される。

参考文献

- 1) 佐藤, 中村, 大日向, 有松, 日本磁気学会論文特集号, Vol. 6, No. 1, pp. 53-57 (2022)

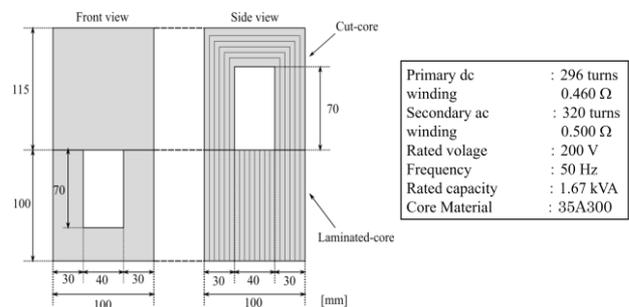


Fig. 1 Specifications of an orthogonal-core-type variable inductor consisting of cut core and laminated core.

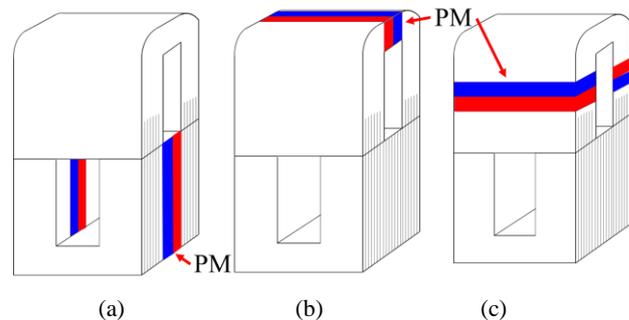


Fig. 2 Three variable inductor models with different magnet arrangements.

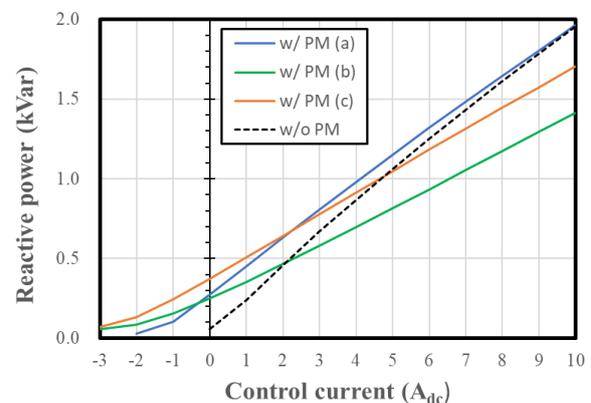


Fig. 3 Comparison of calculated reactive power characteristics of the variable inductors with different magnet arrangements.

倍電流整流回路用結合インダクタの作製

川田奈波, *大山秀樹, 南澤俊孝, 曾根原誠, 佐藤敏郎
(信州大学, *味の素ファインテクノ)

Development of Coupled Inductor for Current-Doubler rectification circuit
Nanami Kawada, *Hideki Oyama, Toshitaka Minamisawa, Makoto Sonehara, Toshiro Sato
(Shinshu Univ, *Ajinomoto Fine-Techno Co.)

1.はじめに

近年, 電子機器の小型化および省電力化に対する要求はますます大きくなっている. それに伴い, 専有面積の大きいインダクタ等の受動素子の小型化および高効率化が期待されている. 筆者らのグループは, これまで, MHz 帯での使用に適した複合磁性材料を用いて, Beyond MHz スイッチング電源用インダクタの開発を試みてきた^[1]. 今回, MHz 帯スイッチング LLC 共振型コンバータの低電圧・大電流出力化に有利な倍電流整流回路の結合インダクタについて, 三種類の磁性材料を組み合わせることで試作を行ったので報告する.

2.実験方法

共振周波数 15 MHz の LLC 共振型 DC-DC コンバータに使用する倍電流整流回路用の結合インダクタを試作した. Fig.1 に作製した結合インダクタの構造を示す. インダクタの導体ラインは四層プリント基板を用いた. 一次側導体と二次側導体を交互に配置することで, 結合係数の向上を図った. 磁性材料には Fe 系ナノ結晶球形粉末/エポキシ樹脂コンポジット材料, Fe-Si 多結晶球形粉末/エポキシ樹脂コンポジットシート, および Ar 中熱処理扁平粉末/エポキシ樹脂コンポジットシート^[2]を使用した. スラリ状のコンポジット磁心材料と 100°C以上の加熱で可塑性を有するコンポジットシート磁心で導体ライン周りに閉磁路を形成し, 高透磁率 Fe 系ナノ結晶扁平粉末シート磁心を最外層に配置することで導体ライン周辺の磁束密度の向上と外部への漏れ磁束の低減を図った. Fig. 1 で示したインダクタ構造を対象に三次元電磁界解析(HFSS Ver.19.2, ANSYS 社)で特性解析を行うとともに試作・評価した.

3.実験結果

Fig.2 に結合インダクタの和動動作時インダクタンスの解析結果と実測値を示す. なお, 実測値の No.1, No.2 は二個のインダクタのデータである. 30 MHz 付近までは解析値と実測値はほぼ一致するが, それ以上の高周波領域においては相違が現れた. 共振周波数は 150~200MHz であり, 実測値の方が鋭い共振を示していることから, 解析で使った磁性材料の損失の違いが影響している可能性がある. 結合係数 k の実測値は約 0.99 であり, 倍電流整流回路用結合インダクタとして十分な結合度を確保した. 現在, 10MHz 帯スイッチング LLC 共振/倍電流整流コンバータへの適用を進めている.

参考文献

[1] S.Kimura, et al., IEEE Shin-etsu Section Student Branch(SSB) Online Poster Session, Dec.2021, [2] 梶原あさみ, 令和 2 年度電気学会全国大会, 2-101, 2020 年 3 月.

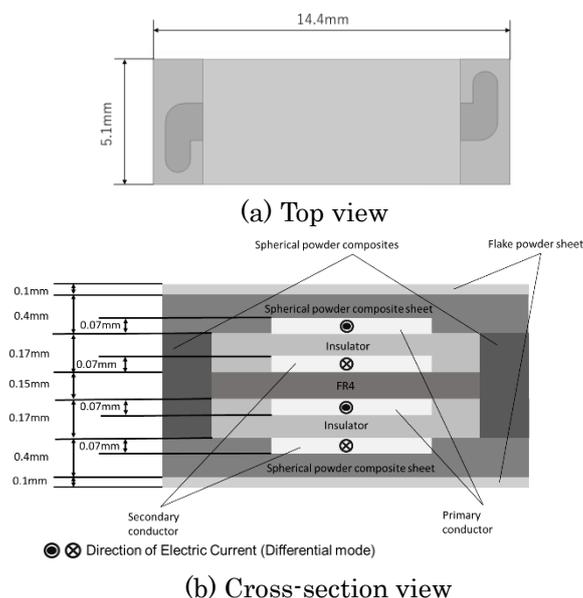


Fig.1 Structure of Coupled Inductor

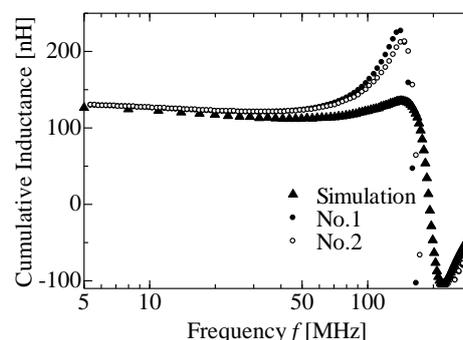


Fig.2 Cumulative Inductance vs. frequency

Beyond 10MHz スイッチング DC-DC コンバータ用 プレーナパワーインダクタの開発

宮田涼平, 木村創一, 川田奈波, 南澤俊孝, 曾根原誠, 佐藤敏郎
(信州大学)

Development of Planer Power Inductor for Beyond 10MHz Switching DC-DC Converter
Ryohei Miyata, Soichi Kimura, Nanami Kawada, Toshitaka Minamisawa,
Makoto Sonehara, Toshiro Sato
(Shinshu University)

1. はじめに

USB PD 用 DC-DC コンバータ (24V 入力, 5~20V 出力) への適用を目的に, プレーナパワーインダクタを試作し, 10MHz 帯スイッチング二相 GaN-FET Buck コンバータに適用した. インダクタには鉄系メタルコンポジット磁心材料と PCB ベースのプレーナコイルを組み合わせた外鉄内部コイル型構造を採用した.

2. プレーナパワーインダクタの試作

Fig.1 に試作したプレーナパワーインダクタの外観と断面構造を示す. インダクタの導体ラインは銅導体厚 $35\mu\text{m}$ の四層プリント基板を用いた. $2.6\mu\text{m}$ 径 Fe-Si-B-C-Cr 系アモルファス球形合金粉末/エポキシ樹脂コンポジット (Fe-AMO) [1], ならびに低保磁力が期待できる $3.5\mu\text{m}$ 径 Fe-Si-B-Nb-Cu 系ナノ結晶球形合金粉末/エポキシ樹脂コンポジット (Fe-Nano) [2] を主磁束磁路に採用して Fig. 1 に示すような閉磁路構造を構成し, コンバータ回路基板実装面側の表面に磁気シールド用として高透磁率 Fe-Si- B-Nb-Cu 系ナノ結晶扁平粉末/シリコンコンポジットシートを配置した.

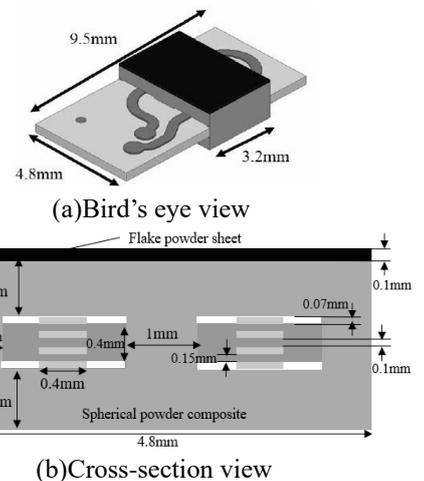


Fig.1 Structure of Planer Power Inductor

3. プレーナパワーインダクタの諸特性とコンバータの効率

Fig.2 に主磁束磁路に Fe-Nano コンポジットを使用して試作したインダクタのインダクタンスと Q 値の周波数特性を示す. 12MHz におけるインダクタンスは 245nH, Q 値は 41 であり, インダクタンスが 10%低下する直流重畳電流は約 4.5A, コイル直流抵抗は $45\text{m}\Omega$ であった. 主磁束磁路に Fe-AMO コンポジットを使用した場

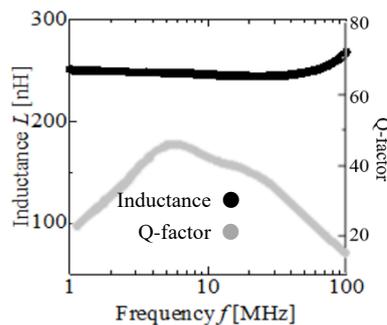


Fig.2 Inductance & Q-factor vs. frequency

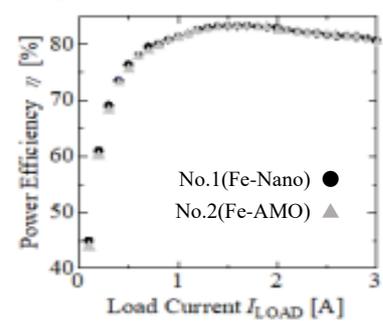


Fig.3 Power Conversion Efficiency.

12MHz におけるインダクタンスは 229nH, Q 値は 48 となった. 4.5A まででは直流重畳特性はみられず, コイル直流抵抗は $36\text{m}\Omega$ であった. Fig.3 に試作インダクタを実装した 24V 入力-5V 出力 12MHz スイッチング二相 Buck コンバータの電力変換効率の出力電流特性を示す. No.1 はインダクタの主磁束磁路に Fe-Nano コンポジット, No.2 は Fe-AMO コンポジットを使用した場合を示している. 最大効率はいずれも負荷電流 1.7A のときに 83.3%となる. それより軽負荷側ではインダクタンスの違いにより, Fe-Nano コンポジット磁心を採用した方が若干効率が高くなっている.

[1] Kanako Sugimura *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, 53, #2801406, 2017.

[2] 木村創一, 他, 第 45 回日本磁気学会学術講演概要集, 02pC-3, 2021.

myRIO を用いたリングコア用磁気特性測定システムにおける 簡易波形制御手法に関する検討

川口正隆, 羽根吉紀, 中村健二
(東北大学)

A Study on Simple Waveform Control Method
in Magnetic-Properties Measurement System for Ring Core Using myRIO

M. Kawaguchi, Y. Hane, K. Nakamura
(Tohoku University)

はじめに

一般に電気機器の解析・設計においては、鉄心材料の磁気特性の実測データが用いられる。高精度な磁気特性の測定においては、フィードバック制御により磁束正弦波条件を満たすことが求められる。これに対して先行研究では、種々の波形制御手法が提案されてきたが、その多くは特別な機器の使用が必要であり、実装は必ずしも容易ではない。そこで本稿では、多くの高等教育機関で用いられている NI 社製 myRIO を磁束波形制御に用いた磁気特性測定システムを構築するとともに、これをリングコアの磁気特性測定に適用することにより、本システムの妥当性の検証を行ったので報告する。

提案する磁気特性測定システム

Fig. 1 に本稿で提案する磁気特性システムを示す。本システムでは、サーチコイル電圧 v_s を制御量、出力電圧 v_o を操作量とし、myRIO に搭載された FPGA をフィードバック制御に用いて、出力波形をリアルタイムで更新しながら磁束波形制御を行っている。

本稿では、提案システムを用いて、無方向性ケイ素鋼板 (35A300) のリングコアの測定を行うことで、その妥当性の検証を行った。Fig. 2 に、周波数 50 Hz, 最大磁束密度 1.8 T における励磁電圧 v_e , サーチコイル電圧 v_s , 励磁電流 i の各波形を示す。このように、波形制御を行うことで、高磁束密度領域においてもサーチコイル電圧を正弦波に制御可能である。

次いで、上述のサーチコイル電圧波形の時間積分により求まる磁束波形について、Fig. 3 に示すように、制御時と非制御時の各最大磁束密度における歪み率を計算した。同図より、非制御時には高磁束密度において歪み率が著しく増加しているのに対して、制御時にはすべての最大磁束密度において歪み率を 1% 未満にまで抑えられていることがわかる。

今後は、より高い周波数帯や直流重畳時の磁気特性測定に提案手法を適用し、有用性について検証を行う予定である。

なお、本研究の一部は、JSPS 科研費 JP22K14232 およびパワースタディウム研究助成の交付を得て行った。

参考文献

- 1) 中瀬知哉, 他: 電学論 A, Vol. 199, No. 7, pp. 1019-1025 (1999).

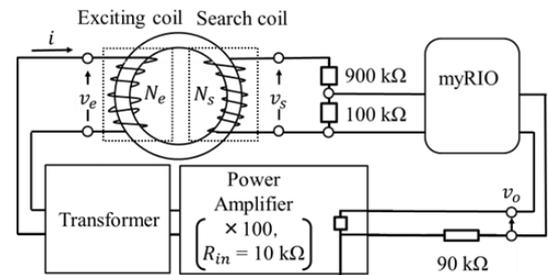


Fig. 1 Proposed magnetic-properties measurement system.

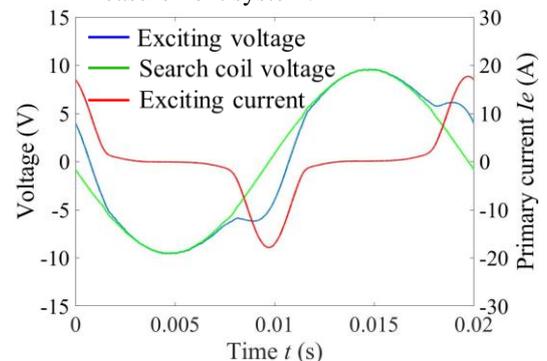


Fig. 2 Each waveform when controlled at $B_m = 1.8$ T and $f = 50$ Hz.

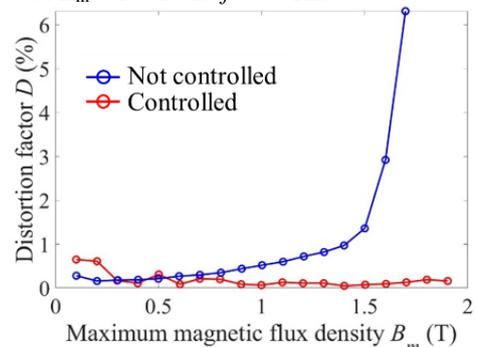


Fig. 3 The distortion factor of magnetic flux density characteristics according to maximum magnetic flux density.

単一アトマイズ粒子の測定のためのトランス結合型透磁率測定装置の感度向上

田丸 慎吾

(産総研 新原理コンピューティング研究センター)

Sensitivity enhancement of transformer coupled permeameter for characterizing a single atomized particle

Shingo Tamaru

(AIST, Research Center for Emerging Computing Technologies)

はじめに

パワエレ回路は、脱炭素社会実現に向けた中核技術の一つとして、その重要性が益々高まっている。現在のパワエレ回路ではインダクタコアの損失が周波数に伴い急激に増加し、高周波限界を決めている。従ってコア用軟磁性材料の高周波における損失機構の解明及びその低減は喫緊の課題となっている。

重要なコア材の一つに、アトマイズ粉をプレス成型した圧粉磁心がある[1]。この材料は数 100 kHz 程度までは優れた特性を示すが、パワエレ回路の高周波化のためには、さらなる高性能化が必要である。これまで透磁率測定はコア最終形状においてのみ可能であったが、粉末状態、理想的には単一粒子の透磁率が測定できれば、高周波特性や損失機構の詳細が明らかになり、高性能な圧粉磁心材料の創成に繋がる事が期待される。我々は高周波透磁率を高感度で測定するトランス結合型透磁率測定装置(Transformer coupled permeameter, TC-Perm)を開発し、これを用いてノイズ抑制シートに含まれる扁平磁性粒子単体の透磁率測定に成功した[2]。本研究では、圧粉磁心用アトマイズ粉の単一粒子測定のために TC-Perm の改良を行った。

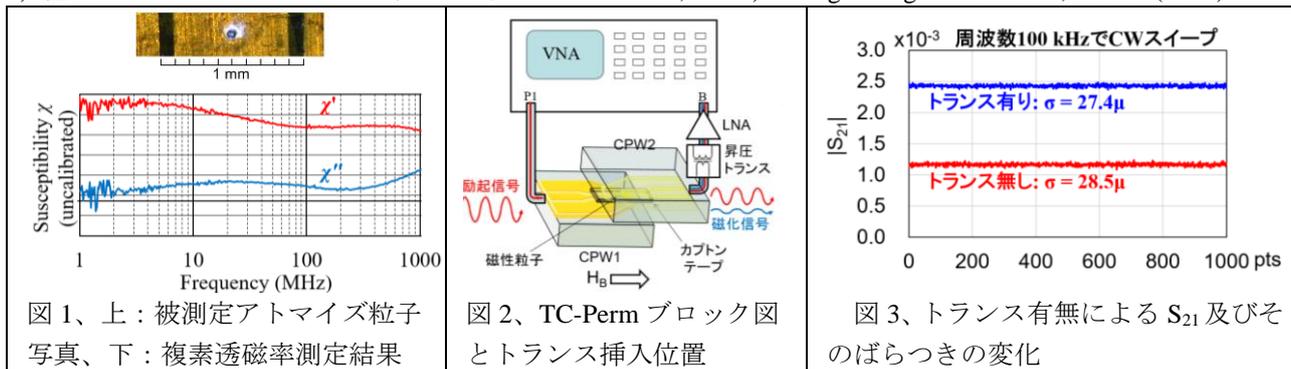
装置改良の概要

図1は、現在の TC-Perm 構成による、直径 50 μm の Fe_2B アトマイズ粒子の透磁率測定結果である。1 MHz 程度までは概ね良好な感度が得られているが、それ以下では感度の低下により測定が困難となってしまっている。現在の圧粉磁心の動作周波数は数 100 kHz 以下なため、これでは下限周波数がまだ高すぎる。TC-Perm においては磁束変化の検出に短絡終端された平面導波路(CPW)が用いられ、その出力インピーダンスは非常に低い一方、検出信号は入力インピーダンス 50 Ω の低雑音アンプ(LNA)に送られるため、非常に大きな不整合が生じている。これを解消するため、図2に示すように、CPW と LNA の間に巻線比 1:10 の昇圧トランスを挿入し、100 kHz における透過係数 S_{21} 及びそのばらつきを測定した。その結果を図3に示す。トランス挿入により S_{21} が約2倍に増加したが、標準偏差は全く変化しなかった。このトランスは本来 10 kHz 以下で動作し、またもっと高いインピーダンス間の整合を取るよう設計されているため、トランスを TC-Perm に最適化することにより、更なる感度向上が期待できる。発表では、TC-Perm に合わせたトランスの設計指針やその性能、またトランス導入後の TC-Perm による単一アトマイズ粉の測定結果を報告する。

(謝辞) Fe_2B 粒子をご提供頂いた(株)トーキン五十嵐利行様に感謝致します。本研究開発は、文部科学省 革新的パワーエレクトロニクス創出基盤技術研究開発事業 JPJ009777 の助成を受けたものです。

参考文献

- 1) 住友電工テクニカルレビュー、2016年1月号 No.188, 2) J. Magn. Magn. Mater. 501, 166434(2020).



円筒形状の鉛直方向移動用リニアアクチュエータの開発 (形状が推力特性に与える影響に関する基礎的検討)

野阪肇、小川和輝、内野大悟、加藤太朗、池田圭吾、遠藤文人、成田正敬、加藤英晃
(東海大学、*¹東京工科大学、*²北海道科学大学、*³福岡工業大学)

Development of Cylindrical Linear Actuator for Vertical Transfer
(Fundamental Consideration on Effect on Thrust Characteristics with Shape)

H. Nosaka, K. Ogawa, D. Uchino, T. Kato, K. Ikeda, A. Endo, T. Narita, H. Kato
(Tokai Univ., *¹Tokyo Univ. of Tech., *²Hokkaido Univ. of Sci., *³FIT)

はじめに

超高層ビルなどの大型建造物において人や荷物などを運搬する際にエレベータなどの昇降用デバイスが利用される。このようなデバイスを昇降させるには滑車やタイヤなどを用いてケーブルと接触させることにより発生する摩擦力を利用して昇降する駆動方式が一般的である¹⁾。しかしながらケーブルの摩擦係数が小さい場合は、デバイスの自重を上回る摩擦力を必要とするため、接触面方向の力が増加する。この接触面方向の力の増加は効率の低下や、異物の巻き込みによるケーブルの破損の原因となる。そこで著者らは Fig. 1 に示すような導電体で一様なケーブル (リアクションプレート) を鉛直方向に昇降する円筒型リニア誘導モータ²⁾を用いたアクチュエータを提案する。提案したリニア誘導モータが円筒型であることの利点は、アクチュエータからケーブルに対して磁力を均一に印加できる点である。本報告は、有限要素法による電磁界解析を行い、ケーブルの形状や材質が発揮される推力特性に与える影響について検討を行った。

電磁界解析によるリニアアクチュエータの推力特性

作成した有限要素解析モデルを Fig. 2 に示す。可動子となる 1 次側には、6 個のコイルとコア、ボビンが設置され、導体であるケーブルが固定子となる。コイルは 3 相交流源に接続されており、上から U⁺、W⁻、V⁺、U⁻、W⁺、V⁻相となる。各コイルの巻数は 182 回、電流値は 7.85 A、周波数は 7 Hz とした。ケーブルに使用する材料は銅とし、直径は 30 mm、可動子とのエアギャップは 1 mm とした。以上の解析条件をもとに過渡応答解析を行い、発生する鉛直方向の推力について検討を行った。解析の結果ケーブルの直径を増加させることによって、可動子の重量も増加するが、推力を自重で除した比推力において増加する傾向が得られた。

参考文献

- 1) 松野, 最近のエレベータ制御技術, 計測と制御, Vol. 21, No. 7, pp. 686-689, 1982.
- 2) 森尋, 古関, 正田, 円筒型リニア誘導モータの鉛直移動への応用可能性の検討, 電気学会論文誌 D, Vol. 122, No. 12, pp. 1149-1156, 1991.

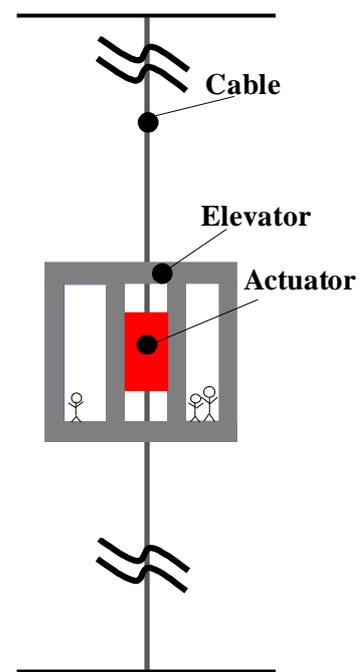


Fig. 1 Schematic diagram of an elevator that omits the counterweight and moves on a single cable.

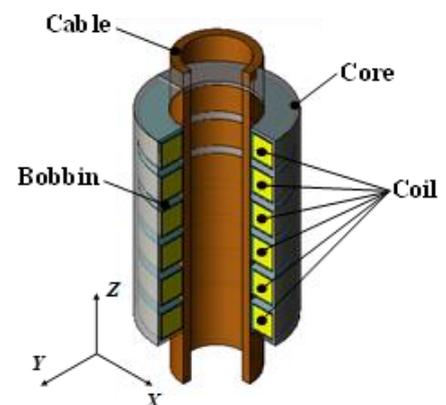


Fig. 2 Analysis model of proposed cylindrical linear induction motor for vertical transfer.

電磁駆動バルブシステムにおけるリニアモータの開発 (アクチュエータ形状に関する基礎的検討)

黒田純平, 木村海斗, 真島悠平, 田中雅人, 内野大悟, 小川和輝,
加藤太朗^{*1}, 池田圭吾^{*2}, 遠藤文人^{*3}, 成田正敬, 加藤英晃
(東海大学, ^{*1}東京工科大学, ^{*2}北海道科学大学, ^{*3}福岡工業大学)

Development of linear motor of electromagnetic valve drive system
(Fundamental consideration on actuator shape)

J. Kuroda, K. Kimura, Y. Majima, M. Tanaka, D. Uchino, K. Ogawa, T. Kato,
K. Ikeda, A. Endo^{*}, T. Narita, H. Kato
(Tokai Univ., ^{*1}Tokyo Univ. of Tech., ^{*2}Hokkaido Univ. of Sci., ^{*3}FIT)

はじめに

先進国ではカーボンニュートラルの実現を目的として自動車の電動化が推し進められている。今後、自動車の動力は電動化が加速するが、内燃機関も引き続き使用されていくものと予想される。エンジンの更なる性能向上を目的にリニアアクチュエータを用いてエンジンバルブを駆動させる方法が検討されている^{1,2)}。しかしながら運転状況に応じて動作タイミングを自在に変化させる手法ははまだ実現していない。そこで当研究グループでは、環境保護を念頭に置いたエンジンの性能向上を目的に、リニアアクチュエータによってバルブを開閉する電磁駆動バルブシステム (EVDS) を用いた吸排気系システムの開発を目指している。

本報告では電磁界解析を利用したアクチュエータ形状が推力特性に与える影響について基礎的検討を行った。

電磁界解析を用いた EVDS の推力に関する検討

Fig. 1 に EVDS の概略を示す。EVDS は永久磁石とコイルで構成されている。駆動方法はローレンツ力を利用している。コイルを通る電流と永久磁石の磁場をコイルに直交させることで可動子が駆動する。バルブの変位量を最大 10mm に設定し、バルブを 1mm ずつ変位させた際の推力を電磁界解析によって求めた。解析によって得られた変位 0 mm における EVDS の磁束密度のベクトルプロットを Fig. 2 に示す。同図より磁束がコイルに直交していることが分かる。このことからバルブの上下運動における推力変化が少なく安定した推力を得ることができた。しかしながらケース中央上部で磁気飽和が発生していることが分かった。

参考文献

- 1) 宇野, 村口, 金野, 岡田, 「運動と振動の制御」シンポジウム講演論文集, Vol. 10, (2007), 177-180.
- 2) 柴崎, 岡崎, 小倉, 日本機械学会関東学生支部総会講演会論文集, Vol. 19, (2013), 451-452

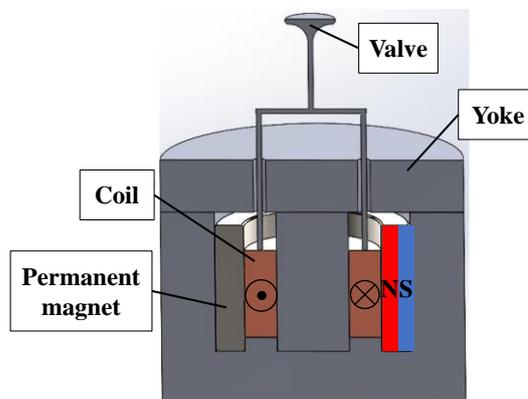


Fig. 1 Analysis model of linear actuator for EVDS.

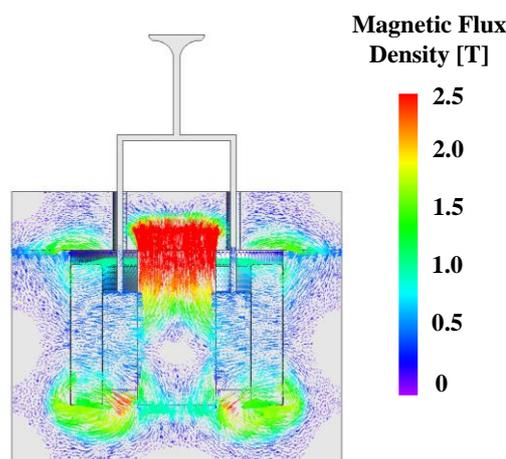


Fig. 2 Vector plot of magnetic flux density

デュアルハルバッハ配列を用いた高速往復運動用 リニアアクチュエータに関する基礎研究 (磁石配列が推力特性に及ぼす影響に関する基礎的検討)

田中雅人、木村海斗、黒田純平、真島悠平、内野大悟、小川和輝、
加藤太朗^{*1}、池田圭吾^{*2}、遠藤文人^{*3}、成田正敬、加藤英晃
(東海大学、^{*1}東京工科大学、^{*2}北海道科学大学、^{*3}福岡工業大学)

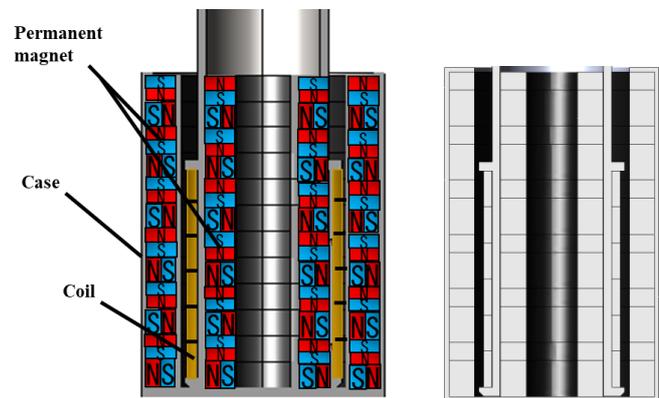
A basic study on linear actuators for high-speed reciprocating motion with dual halbach arrays
(Fundamental consideration on effect of magnet arrangement on thrust characteristics)

M. Tanaka, K. Kimura, J. Kuroda, Y. Majima, D. Uchino, K. Ogawa, T. Kato,
K. Ikeda, A. Endo, T. Narita, H. Kato

(Tokai Univ., ^{*1}Tokyo Univ. of Tech., ^{*2}Hokkaido Univ. of Sci., ^{*3}FIT)

はじめに

機械製品を動作させる上で往復運動は様々な箇所に用いられている。一般に往復運動を発生させるためには、カム機構やピストン・クランク機構など、モータやエンジンの回転運動から機構的に変換される場合が多い。しかしながら高精度かつ高速な往復運動を利用する目的で、リニアアクチュエータによるダイレクトドライブが求められている。著者らはより高速な往復運動が可能なりニアアクチュエータの実現を目的として、固定子の永久磁石配列にデュアルハルバッハ配列を用いたリニアアクチュエータを提案し検討を行っている。本報告は、永久磁石の形状を変化させた際に推力特性に与える影響について検討を行った。



(a) Schematic of the actuator (b) Shape of the array at 2:1

Fig. 1 Analysis model of linear actuators with dual Halbach arrays

電磁界解析を用いた永久磁石配列と推力に関する検討

Fig. 1(a)にハルバッハ配列を用いたリニアアクチュエータの概略図を示す。このリニアアクチュエータは永久磁石を配列した固定子と可動子となるコイルで構成され、ローレンツ力により可動子を駆動する。可動子の変位量は最大24mmとし、0.1mmずつ上下方向に変位させた際の推力を電磁界解析によって求めた。ラジアル方向とスラスト方向の永久磁石の寸法の比をRT比とし、ラジアル方向の永久磁石の領域をスラスト方向の2倍としたモデルをFig. 1(b)に示す。解析によって得られた変位0mmにおけるの磁束密度のベクトルプロットをFig. 2に示す。同図より磁束が直交し、安定した推力を発生させることができた。

参考文献

T. Jimbu and Y. Okada: Development of Lorentz force type self-bearing motor using Halbach magnet, 日本機械学会論文集 (C編) 70巻 698号 (2004-10).

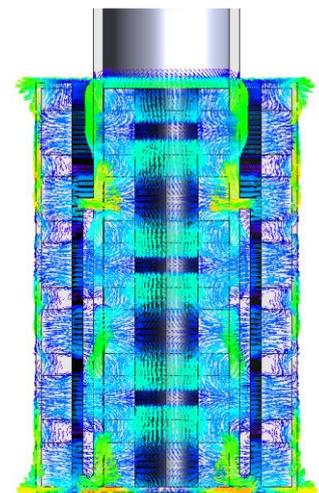


Fig. 3 Vector plot of magnetic flux density

小型化した磁気駆動マイクロポンプの冷却性能

田中龍之介、本田崇
(九工大)

Cooling performance of a miniaturized magnetically driven micropump

R. Tanaka, T. Honda
(Kyushu Inst. Tech.)

はじめに

著者らは、ノート PC 等に搭載する液冷システムへの応用を目指し、弾性板の羽ばたきを利用した磁気駆動マイクロポンプの開発を進めている。本研究では、磁石サイズを見直すことでポンプの低背化を図るとともに、直列接続した場合の液冷システムの冷却性能を評価したので報告する。

素子構成

Fig. 1(a)にポンプ単体の構成と動作原理を示す。可動子は、厚さ方向に着磁された2個のNdFeB磁石($\phi 3\text{mm} \times 1\text{mm}$)の間に、NdFeB磁石($\phi 1\text{mm} \times 0.5\text{mm}$)を2個重ねたものを両端の2ヶ所に配置し、その磁石間に厚さ $50\mu\text{m}$ のPIフィルム(幅 3mm 、長さ 6mm)を挟んで構成した。この可動子を固定子内に回転軸を介して取り付けた。ポンプの厚さは 5.5mm である。ポンプ長手方向に交流磁界 H を印加すると、磁石の磁気モーメント M が磁気トルク T を受け、磁石は回転軸を中心に回転振動する。それに伴い弾性板が揺動し液体を送り出すことでポンプとして機能する。

本研究では、ポンプ性能向上のため、2つのポンプを直列接続したストレートポンプ(同図(b))、U字ポンプ(同図(c))を作製し評価を行った。

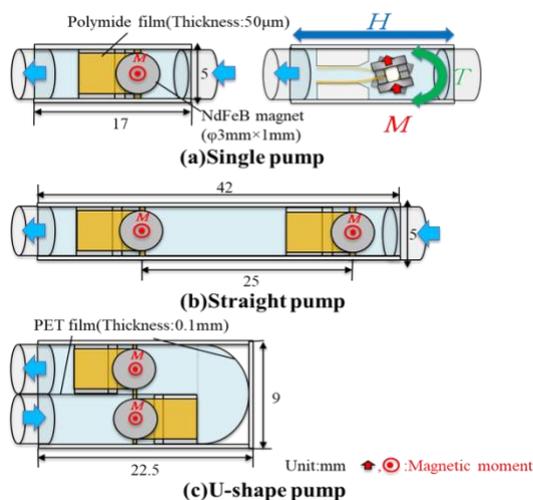


Fig.1 Structure of micropump

実験結果

Fig. 2に 4kA/m の交流磁界印加時における無負荷流量の周波数特性を示す。但し、濃度20%に水で希釈した不凍液を使用し、駆動はソレノイドコイルによって行った。流量はいずれのポンプも 170Hz で最大値を示す周波数特性となった。その最大値は単体に対し、直列接続することで40%程度向上した。

Fig. 3に各ポンプをノートPCを模した自作の冷却システムに組み込んだ際の冷却性能を示す。但し、ヒーター出力を 50W とし、測定開始60分後までのヒータープレート表面温度を評価した。ストレートポンプ、U字ポンプにおいて目標温度である 55°C 以下を満たすことができた。この結果より、小型化したポンプにおいても連結することで冷却システムへの応用が可能であることがわかった。

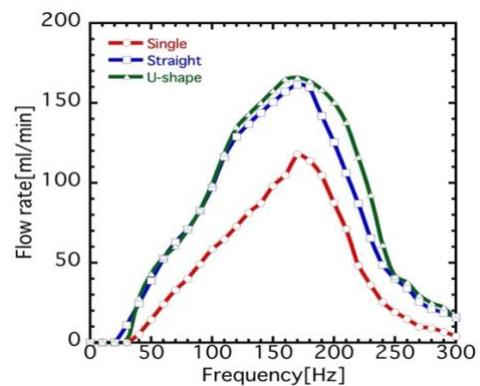


Fig.2 Frequency characteristics of flow rate

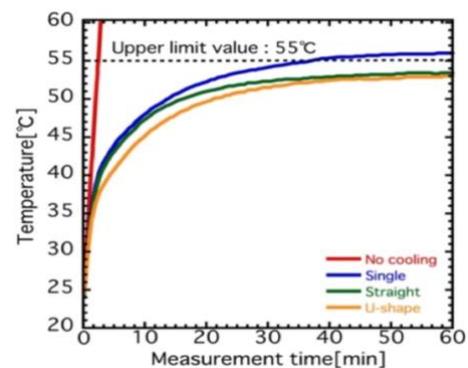


Fig.3 Cooling performance

磁気駆動羽ばたき PAV における推力と翅構造の関係

上原 健太郎、本田 崇
(九工大)

Relationship between thrust and wing structure for magnetically driven flapping Pico Air Vehicle

K. Uehara, T. Honda
(Kyushu Inst. Tech.)

はじめに

超小型飛翔体における最小の分類として PAV(Pico Air Vehicle)がある。PAVに関する先行研究では、圧電素子による羽ばたき PAV があるが、駆動にはケーブルによる給電が必要であった。これに対し本研究では、永久磁石を素子に搭載し、外部磁界を印加することで羽ばたき飛翔を行う PAV の開発を進めており、交流磁界中においてワイヤレスでの飛翔に成功している。しかし、課題として翅の設計指針が確立できていなかった。本報告では、基準となる翅構造を新たに選定し、推力増大のための指針を実験的に考察した。

素子構成と動作原理

Fig.1 に素子の上面図を示す。胴体部は、厚さと形状の異なる 2 種類の PI フィルム(25 μm 厚,125 μm 厚)を重ね合わせた構造で、左右に露出した厚さ 25 μm の PI フィルム(4.5mm 長)が捻りバネとして機能する。この捻りバネの中央部分に NdFeB 磁石($\phi 1 \times 2\text{mm}$)を極性が逆になるように配置した。翅は長方形の PI フィルム(5 μm 厚)であり、その上に V 字形の棒(PEs)を配置し、翅の根元部分のみで接着した。なお、翅フィルムの翼弦方向へのたわみを防ぐため、従来の翼弦 10mm から 6mm へと基準を変更した。Fig.2 に動作原理を示す。外部から交流磁界を印加することで、素子に搭載した磁石は磁気トルクを受け捻りバネを中心に回転振動し羽ばたき運動が起こる。このとき打ち上げと打ち下ろしで翅形状が変化することで抗力差が発生し上向きの推力となる。

実験結果と考察

本実験では、捻りバネ幅を 0.50mm から 1.00mm の 4 種類、翼長を 3mm から 9mm と条件を変えて推力の測定を行った。駆動する磁界強度は 4kA/m とした。Fig.3 は横軸に翼長、縦軸に各素子の最大推力を示した周波数をプロットしたものである。とくに 0.45mN 以上の高推力(自重は 0.35mN)が発生した点を赤色で示した。また、捻りバネ幅 0.50mm、1.00mm における V 字型の棒と磁石による羽ばたき運動の共振周波数の計算値を実線で表し、両者に囲まれる範囲をグレーで着色した。各素子の最大推力を示した周波数は羽ばたき運動の共振周波数の近傍にあり、バネ幅が長く翼長が短いほど高周波数となった。ここで高推力の赤色に着目すると、長い翼長では羽ばたき運動の共振周波数の低周波側、短い翼長では高周波側で発生する傾向が見られる。この赤点を累乗近似すると青色の破線のように翼長の -2 乗の曲線が得られた。この結果は羽ばたきの共振と翅フィルムの曲げ共振が一致する条件で高推力が得られることを示唆している。この知見から翼長を短くする小型化には、捻りバネのバネ定数を高くし羽ばたき運動の共振周波数を高めるか、翅フィルムの曲げ共振の周波数を低下させる必要があると考えられる。

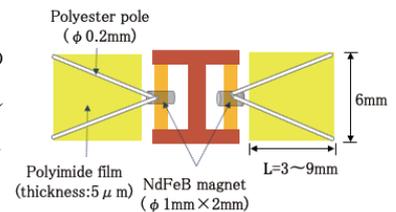


Fig. 1 Structure of flapping mechanism

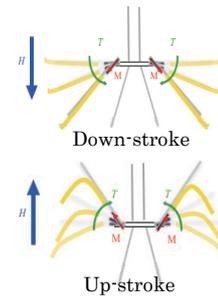


Fig. 2 Actuation principle

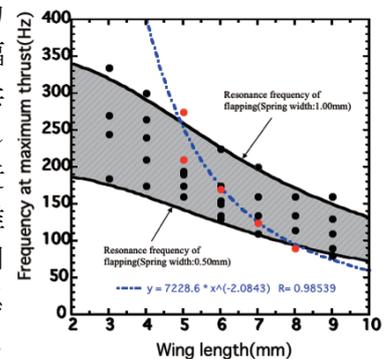


Fig. 3 Relation between frequency at maximum thrust and wing length

永久磁石と電磁石を併用した薄鋼板の磁気浮上装置の開発 (永久磁石配置が浮上性能に与える影響に関する実験的検討)

嘉山周汰、市川優介、長吉竜也、川村慎太郎、小川和輝、内野大悟、
池田圭吾*¹、加藤太朗*²、遠藤文人*³、成田正敬、加藤英晃
(東海大学、*¹北海道科学大学、*²東京工科大学、*³福岡工業大学)

Development of electromagnetic levitation system for thin steel plate with
electromagnets and permanent magnets

(Experimental consideration of the effect of permanent magnet arrangement on levitation performance)

S. Kayama, Y. Ichikawa, T. Nagayoshi, S. Kawamura, K. Ogawa, D. Uchino,
K. Ikeda*¹, T. Kato*², A. Endo*³, T. Narita, H. Kato

(Tokai Univ., *¹Hokkaido Univ. of Sci., *²Tokyo Univ. of Tech., *³FIT)

はじめに

冷間圧延されたベルト状の薄鋼板は切断されて切板の状態となり、ローラによって接触搬送される。このとき薄鋼板表面のめっきの傷や剥がれといった、表面品質の劣化が問題となる。そこで当研究グループでは、長方形薄鋼板の磁気浮上装置を用いた非接触磁気浮上搬送制御の検討を行い、これまでに安定した浮上に最適な永久磁石の配置の検討を、遺伝的アルゴリズム (GA) を用いて静的な鋼板のたわみを抑制する配置を探索し、浮上安定性を向上することを確認している¹⁾。さらに、浮上方向に加えて水平方向電磁石を設置した磁気浮上システムにおいて、水平方向電磁石中心間距離を変化させた際の永久磁石の最適配置の GA 探索を行った²⁾。しかし、水平方向電磁石中心間距離を変化させた際の永久磁石最適配置による、妥当性の検証は行われていない。そこで本報告では、水平方向電磁石を設置した磁気浮上システムについて、GA による探索で得られた永久磁石の最適配置による浮上実験を行い、妥当性の検証を行った。

磁気浮上装置

Fig.1 に浮上装置の概略図を示す。浮上対象は長さ 800 mm、幅 600 mm の長方形亜鉛めっき鋼板 (SS400) を使用する。浮上した鋼板のエッジに対して水平方向電磁石ユニットによる吸引力を加え、鋼板の相対する 2 辺に沿って電磁石を 2 個ずつ設置している。水平方向位置決め制御は各電磁石表面から鋼板エッジまでの距離を 5 mm になるように制御を行う。Fig.2 に永久磁石と鋼板の距離 (GAP) の概略図を示す。GAP を 40 mm から 75 mm まで変化させて、GA による探索で得られた永久磁石の最適配置による浮上実験を行った結果、今回の実験条件の範囲においては、GAP が増加すると鋼板の浮上方向の変位標準偏差が減少する傾向を示した。

参考文献

- 1) 石井宏尚, 成田正敬, 加藤英晃, “電磁石と永久磁石による薄鋼板のハイブリッド磁気浮上システム (磁場の相互作用を考慮した最適配置探索に関する基礎的検討)”, 日本 AEM 学会誌, vol. 24, no. 3, pp.149-154, 2016.
- 2) 嘉山周汰, ムハマドヌルハキミビンモハマドカマ, 椎名敦紀, 遠藤文人, 成田正敬, 加藤英晃, “永久磁石と電磁石を併用した薄鋼板の磁気浮上装置の開発 (遺伝的アルゴリズムを用いた永久磁石の最適配置に張力印加位置が与える影響に関する基礎的考察)”, 日本磁気学会論文特集号, vol. 6, no. 1 pp.93-99, 2022.

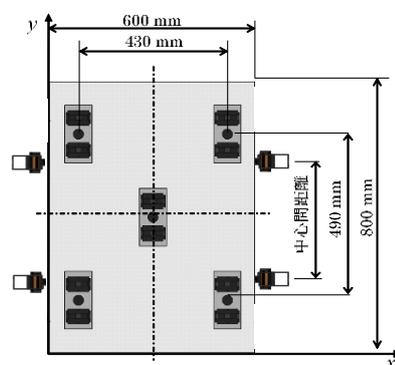


Fig.1 Electromagnetic levitation system

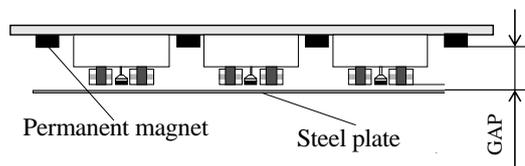


Fig.2 GAP between permanent magnets and steel plate

湾曲させた柔軟鋼板の磁気浮上搬送システムの開発 (鋼板の把持位置が浮上性能に与える影響に関する基礎的検討)

川村慎太郎、市川優介、長吉竜也、嘉山周汰、小川和輝、内野大悟、
池田圭吾*¹、加藤太朗*²、遠藤文人*³、成田正敬、加藤英晃
(東海大学、*¹北海道科学大学、*²東京工科大学、*³福岡工業大学)

Electromagnetic levitation and transportation system for bent flexible steel plate

(Fundamental consideration on effect of gripping position for steel plate on levitation performance)

S. Kawamura, Y. Ichikawa, T. Nagayoshi, S. Kayama, K. Ogawa, D. Uchino, K. Ikeda*¹, T. Kato*²,
A. Endo*³, T. Narita, H. Kato

(Tokai Univ., *¹Hokkaido Univ. of Sci., *²Tokyo Univ. of Tech., *³FIT)

はじめに

工業製品に広く使用され、薄鋼板の製造において、各工程へと搬送する際は、ローラによる接触搬送が行われている。しかし、ローラとの接触により傷や凹凸が生じ表面品質の劣化が問題となっている。そこで、電磁石の吸引力を利用した薄鋼板の非接触磁気浮上搬送が提案されている。当研究グループでは、これまでに水平方向位置決め制御システムと湾曲磁気浮上システムを併用した磁気浮上システムの浮上性能について検討してきた²⁾。しかし、水平方向位置決め制御システムと湾曲磁気浮上システムを併用した磁気浮上システムの浮上性能についてエッジ部に設置した電磁石と鋼板の把持位置を変更した際の浮上安定性の評価について十分な検討が行えていない。そこで本報告では、鋼板の把持位置が浮上性能に与える影響について実験的検討を行った。

磁気浮上搬送システム

実験装置の写真を Fig.1 に示す。浮上対象は長さ 800 mm、幅 600 mm、厚さ 0.24 mm の長方形亜鉛めっき鋼板 (材質 SS400) とする。浮上用電磁石ユニットは 2 基の電磁石と薄鋼板までの変位を測定するための渦電流式非接触センサを中央に電磁石で挟むように配置して構成されている。アルミフレーム製装置内に設置した 5 箇所の浮上用電磁石ユニットを用いて鋼板を非接触支持するため、鋼板の変位を 5 個の渦電流式非接触変位センサにより検出する。変位、そのデジタル微分値である速度、電磁石コイル電流をフィードバックし、鋼板の端部が各電磁石表面から 5 mm の距離を保つように制御を行う。また、薄鋼板を湾曲浮上させるために周囲の電磁石には傾斜ステージを取り付け、電磁石を任意の角度に傾ける。さらに、中央に設置してある電磁石には高さが調整可能なステージを取り付けた。これらを用いて薄鋼板を任意の角度に湾曲させながら浮上できる機構となっている。さらに、浮上制御用電磁石ユニットと水平方向位置決め制御用ユニットの配置を Fig.2 に示す。図中の電磁石の角度と水平方向電磁石ユニットの中心間距離 a を 400 mm、500 mm、600 mm に変化させて実験を行った。

参考文献

- 1) 孫鳳, 岡宏一, 円盤磁石を用いた可変磁路制御機構による磁気浮上(二つの鉄球同時浮上実験), 機論 C 編, vol.78-792, pp2771-2780, 2012.
- 2) 椎名敦紀, ムハマドヌルハキミビンモハマドカマ, 小川和輝, 成田正敬, 加藤英晃, エッジ方向からの磁場による湾曲磁気浮上薄鋼板の振動抑制効果(浮上性能に関する基礎的検討), 日本 AEM 学会誌, vol. 29-1, pp. 111-117, 2021.



Fig. 1 Photograph of conveyance system of the steel plate

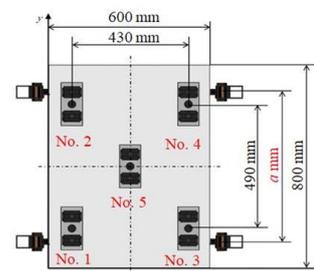


Fig. 2 Layout of electromagnetics for levitation control and horizontal positioning control

シームレスな極薄鋼板の磁気ガイドウェイシステムの開発 (電磁石の制振効果に関する実験的検討)

大久保貴之、加納蓮、加藤英晃、内野大悟、小川和輝、池田圭吾*¹、
加藤太朗*²、遠藤文人*³、成田正敬

(東海大学、*¹北海道科学大学、*²東京工科大学、*³福岡工業大学)

Development of electromagnetic guideway for seamless ultra-thin steel plate

(Experimental consideration of damping effect from electromagnet)

T. Okubo, R. Kano, H. Kato, D. Uchino, K. Ogawa, K. Ikeda*¹, T. Kato*², A. Endo*³, T. Narita

(Tokai Univ., *¹HUS., *²TUT., *³FIT)

はじめに

鋼板を製造するラインでは、鋼板とローラによる接触支持搬送が行われている。この間、鋼板はローラとの接触支持搬送により生じる摩擦が原因で鋼板の表面品質の劣化が問題視されており、高品質な製品の実現には鋼板とローラの接触を避ける必要がある。この問題点を解決するために当研究グループでは走行する連続鋼板のエッジ近傍に電磁力を印加することで鋼板の振動を抑制する非接触案内を検討してきたり。また、マルチボディダイナミクスを用いて鋼板に外乱が入力された際の応答から非接触案内制御用電磁石の制振性能に関する検討および最適な電磁石の配置位置に関する検討を行った²⁾。しかし、電磁石の制振性能に関する実験的検討は行われていない。そこで本報告は電磁石の定常電流を変更した際に鋼板に外乱が入力されたときの制振効果について検討を行った。

非接触案内形成装置

電磁石を用いた非接触ガイドウェイの振動抑制効果を評価するため、Fig. 1 に示す連続鋼板の進行方向部分を模擬した装置を用いて検討を行った。長さ 6894 mm、幅 150 mm、厚さ 0.3 mm のステンレス鋼材製ベルトを溶接した連続鋼板を直径 700 mm、幅 154 mm のプーリから吊り下げた。また、Fig. 1 に示すようにプーリから下に 500 mm、鋼板の面外方向に 50 mm 離れた箇所に外乱用電磁石、図中の 0° の点に制御用電磁石を設置した。なお、この点は電磁石を設置しない場合に振動が大きい点である。

外乱入力時における制振性能の実験

Fig. 1 に示す位置に制御用電磁石を設置した。制御用電磁石に与える定常電流は 0.5 A とし、測定角度は 0°、45°、90°、135°、180° とした。実験により得られた鋼板面外方向の変位標準偏差を Fig. 2 に示す。同図中には同等の定常電流を設定して行ったマルチボディダイナミクスの結果を重ねて表示している。同図より進行方向変更部の 0° に制御用電磁石を配置することで高い制御抑制効果を得ることができ、この結果はマルチボディダイナミクスの結果と比較して同様の傾向であることが確認できた。

参考文献

- 1) 柏原, 押野谷, 石橋, 日本 AEM 学会誌, Vol. 11, No. 4, (2003), 235-241.
- 2) 中須賀, 奈良輪, 石原, 山口, 小川, 成田, 加藤, 日本磁気学会論文特集号, Vol. 5, No. 1, (2021), 37-43.

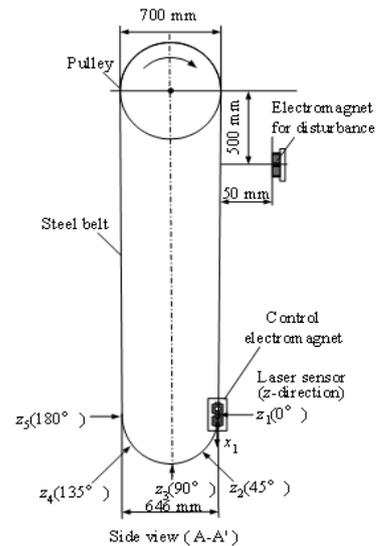


Fig. 1 Schematic diagram of electromagnetic guideway for seamless thin steel plate.

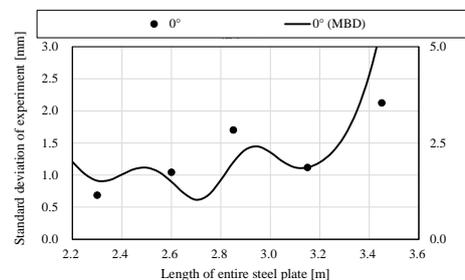


Fig. 2 Experimental results of changing the position of the electromagnet.

柔軟鋼板の湾曲磁気サスペンションに関する研究 (浮上中の鋼板の動的挙動に関する基礎的考察)

宮崎陸、内田大日、船田孔明、小川和輝、内野大悟、池田圭吾*¹、加藤太朗*²、遠藤文人*³、
成田正敬、加藤英晃

(東海大、*¹北海道科学大、*²東京工科大、*³福工大)

A study on bending magnetic suspension for flexible steel plate

(Fundamental consideration on dynamic behavior of steel plate during levitation)

R. Miyazaki, Y. Uchida, K. Funada, K. Ogawa, D. Uchino, K. Ikeda, T. Kato, A. Endo, T. Narita, H. Kato
(Tokai Univ., *¹Hokkaido Univ. of Sci., *²Tokyo Univ. of Tech., *³FIT)

はじめに

電磁石の吸引力を利用した非接触支持を行うため、磁気浮上技術の検討が盛んにおこなわれている¹⁾。当研究グループでは、過去に磁気浮上による非接触搬送の実現性を確認している²⁾。また薄鋼板を対象とする場合には、鋼板を塑性変形しない範囲で曲げた状態で浮上させる湾曲磁気浮上を考案した³⁾。しかし、磁気浮上中の鋼板振動については、詳しく検討されていない。そこで本報告では、有限差分法を用いた数値解析を用いて湾曲磁気浮上を行った際の鋼板振動について検討を行った。

湾曲磁気浮上シミュレーション

Fig. 1 に湾曲磁気浮上装置の概略図を示す。本報告では、有限差分法を用いて数値解析によって湾曲磁気浮上シミュレーションを行った。浮上対象は長方形鋼板(長さ $a = 800$ mm、幅 $b = 600$ mm、厚さ $h = 0.19$ mm)とした。湾曲磁気浮上装置は、5か所の電磁石ユニットによって薄鋼板を磁気浮上させることができる。シミュレーションでは、実機の装置構成を再現できるようにプログラムを設計した。磁気浮上シミュレーションでは、鋼板全体の初期位置を制御点より 1 mm プラス方向に与え、制御点へ鋼板変位が収束するときの変位を観測した。Fig. 2 に湾曲磁気浮上シミュレーションの結果(鋼板の変位時刻歴)、Fig. 3 に解析によって得られた鋼板形状($t = 1$ s)を示す。

参考文献

- 1) 油野他, 日本磁気学会誌, Vol. 35, No. 2, (2011), pp. 123-127.
- 2) 丸森他, 日本機械学会論文集, Vol. 81, No. 823, (2015), 14-00471.
小川他, 日本磁気学会論文特集号, Vol. 3, No. 1, (2019), pp. 101-106.

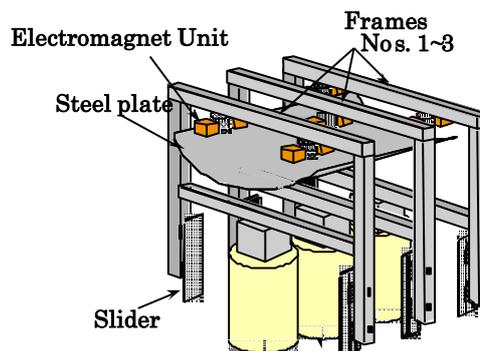


Fig. 1 Schematic illustration of experimental apparatus

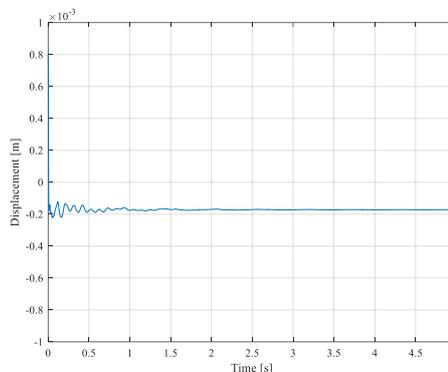


Fig. 2 Time history of displacement in levitated steel plate

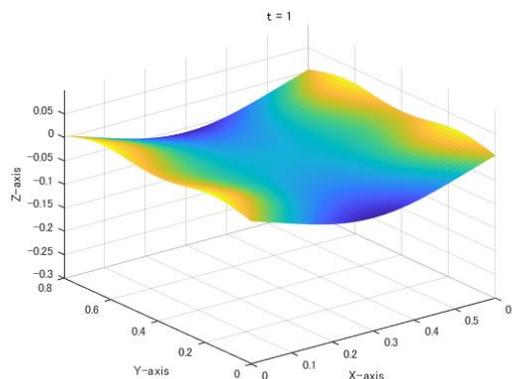


Fig. 3 Motion of levitated steel plate ($t = 1$ s)

ボンド磁石を用いた非対称磁極構造 IPM モータの実機評価

塚田裕太*、吉田征弘、半田修士、田島克文
(秋田大学)

Prototype Test of Asymmetric Pole Structure IPM Motor Using Bonded Magnet

Y.Tsukada, Y.Yoshida, N.Handa, K.Tajima
(Akita Univ.)

研究背景・目的

我が国の交流電動機生産台数のうち永久磁石 (PM) モータは 50%以上を占めるに至っている¹⁾。PM モータの多くは、現在最も強力な磁力を有するとされているネオジウム焼結磁石が用いられている。しかしながら、ネオジウム焼結磁石の原料となるジスプロシウム (Dy) は重希土類であり、高コスト、供給が不安定、採掘や精錬に環境破壊を伴うといった問題が指摘されてきた。筆者らは、ボンド磁石を用いた非対称磁極構造の IPM モータの検討を進めており、先行研究において提案された非対称磁極構造 IPM モータは、トルク性能を維持したまま Dy フリーな磁石への材料置換が可能であることが解析により示された²⁾。

本研究では Fig.1(a)に示す Dy フリーであるサマリウム鉄素磁石を使用した非対称磁極構造を有する回転子を試作し、実測値と解析で得られた諸特性を比較評価した。同時に、同図(b)に示す同体格のネオジウム焼結磁石を使用した従来 IPM モータと比較し、非対称磁極構造の効果を検証したので報告する。

結果

Fig.2 に、本研究で使用した非対称磁極構造 IPM モータの 1/4 解析モデルを示す。固定子は両モデルで同じものを使用し、固定子一回転子間のギャップは 0.5 mm、積厚は 30 mm である。

Fig.3 に相電流振幅が 4 A、回転速度 1500 rpm における電流位相角 β 対トルク特性の実測値を示す。実測値において非対称磁極構造 IPM モータのトルク最大値は、従来 IPM モータと比較すると 0.1 N·m 向上しているのが分かる。また、トルクが最大となる電流位相角は、従来 IPM モータが $\beta=20^\circ$ 付近で最大になるのに対し、非対称磁極構造 IPM モータは 40° 付近で最大となり、 20° 程度進角していることが分かる。この結果から、実機においても非対称磁極構造 IPM モータの特徴である、マグネットトルクをリラクタンストルクが最大となる位相付近まで進角し、トルク向上が可能であることが明らかになった。

参考文献

- 1) 経済産業省生産動態統計調査 https://www.meti.go.jp/statistics/tyo/seidou/result/ichiran/08_seidou.html
- 2) 柳沢敏輝, 吉田征弘, 田島克文:「ネオジウムボンド磁石を用いた IPM モータの非対称磁極構造に関する研究」, Journal of the Magnetics Society of Japan, No.44, pp.45-51 (2020)



(a)Asymmetric IPM (b)Conventional IPM
Fig.1 Appearance of the rotors.

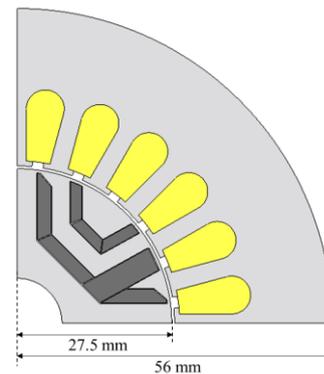


Fig.2 1/4 calculation model of asymmetric IPM

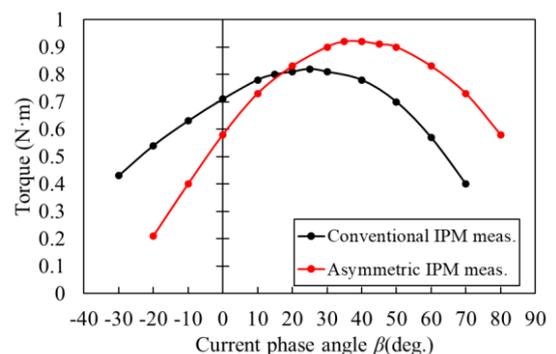


Fig.3 Comparison of measured torque characteristic

セグメント構造アウターロータ型 高速 PM モータの効率改善に関する検討

櫻井 将, 中村健二
(東北大学)

Efficiency Improvement of Outer-Rotor-type High-Speed PM motor with Segmented-shaped Rotor
S. Sakurai, K. Nakamura
(Tohoku University)

はじめに

情報通信技術の発展と共に、大容量の情報を高速に処理する必要性から、サーバ等の増強が進められている。一方、サーバの小型化や CPU の高性能化に伴い、発熱の増大が顕在化し、冷却装置の性能向上が喫緊の課題となっている。

先に筆者らは、冷却ファン用モータに関して、リラクタンストルクの活用と磁石渦電流損の低減を狙った、セグメント構造のアウターロータ型永久磁石モータ (以下、Segment PM モータと称す) を提案し、従来機よりも高性能であることを実証した¹⁾。しかし、試作機効率が設計値を下回ったことから、原因の解明と効率の改善が必要不可欠である。そこで本稿では、Segment PM モータの機械損の要因分析と、これに基づく効率改善について検討したので報告する。

Segment PM モータの機械損分析と効率改善

Fig. 1 に、試作した Segment PM モータの諸元を示す。本稿では、機械損は軸受けにかかる荷重に比例すると仮定し、①シャフト (10.3 g) のみ、②シャフトとケース (44.9 g) のみ、2 種類の回転子の機械損を測定し、それらの差分から荷重と機械損の関係を求めた。

Fig. 2 に、上記①および②の機械損の実測値と、そこから推定した試作機の機械損を示す。また、回転子の各パーツの重量で按分した機械損の内訳を示す。この図を見ると、30,000 rpm 時の推定機械損は約 15 W であること、また、ケースと回転子鉄心で損失の 8 割を占めることから、両部品の軽量化が高効率化につながる事が了解される。

上述の考察に基づき、Fig. 3 に回転子ケースをステンレスから CFRP に置き換えた場合の効率の試算結果を示す。ケース材を CFRP にすることで約 38 g 軽量化し、これにより約 1% 効率が向上した。

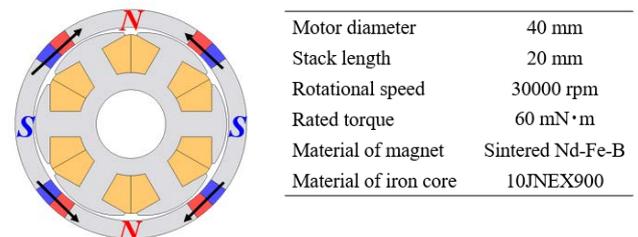


Fig. 1 Specifications of a prototype segment PM motor.

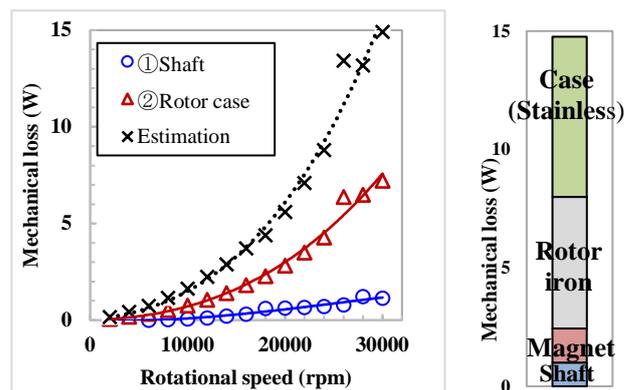


Fig. 2 Estimated mechanical loss and its breakdown.

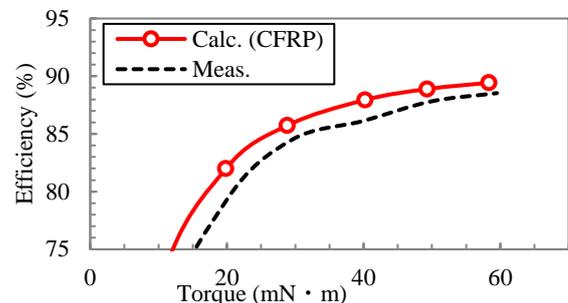


Fig. 3 Estimated efficiency.

今後は、さらに回転子鉄心の削減による軽量化と高効率化について検討を行う予定である。

参考文献

1) 櫻井, 内山, 中村, 日本磁気学会論文特集号, 6, 69 (2022)

超高速磁気ギヤの試作試験

朝雛えみり, 三ツ谷和秀, 中村健二, *立谷雄一, *鈴木雄真, *操谷欽吾
(東北大学, *(株)プロスピイン)

Prototype Tests of Ultra High Speed Magnetic Gear

E. Asahina, K. Mitsuya, K. Nakamura, *Y. Tachiya, *Y. Suzuki, *K. Kuritani
(Tohoku University, *Prospine Co., Ltd.)

はじめに

近年, 出力密度向上を目的に超高速モータの開発が盛んに行われているが, これを減速する機械式ギヤには摩耗や発熱の問題が生じる。そこで本稿では, 非接触で増減速可能な磁気ギヤ¹⁾に着目し, 80,000 rpm で動作可能な磁束変調型磁気ギヤの試作試験を行ったので報告する。

提案する磁気ギヤード SRM の特性算定結果

Fig. 1 に, 試作した磁束変調型磁気ギヤの諸元を示す。本磁気ギヤのギヤ比は 6.667 であり, 入力軸は内側回転子, 出力軸はポールピースである。また, 入力側の最高回転数は 80,000 rpm である。

Fig. 2 に, 試作した超高速磁気ギヤの外観を示す。ポールピースホルダやケースなどは, 漏れ磁束などによる渦電流の発生を防ぐため, すべて CFRP (炭素繊維強化プラスチック) で製作した。

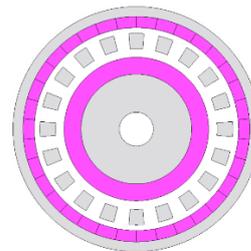
Fig. 3(a)に, 入出力速度特性の実測値を示す。この図より, 速度比は設計通り 6.667 になっていることがわかる。なお, 最大入力トルクの実測値は 85 mN·m であった。

Fig. 3(b)に, 速度対効率特性を示す。このときの入力側のトルクは 83 mN·m である。この図を見ると, 低速側では最大で約 95%の効率を達成していることがわかる。一方, 高速側は徐々に効率が低下していくが, 最高回転数の 80,000 rpm においても 80%以上の効率を達成できたことがわかる。

高速側での効率低下要因を明らかにするため, 試作した磁気ギヤの無負荷損失を測定するとともに, 未着磁ロータを用いて軸受け損を測定した。

Fig. 4(a)に無負荷損失の実測値を示す。また, 同図(b)は入力トルク 83 mN·m, 回転数 80,000 rpm 時の損失内訳である。この図を見ると, 全損失の約 77%が軸受け損であり, この低減が最も重要であることがわかる。

本研究の一部は東北大学 AIE 卓越大学院プログラムにより支援された。

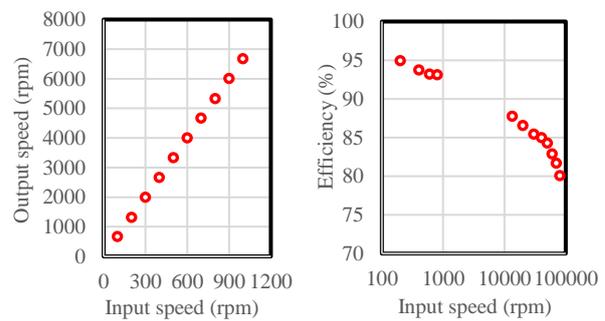


Gear ratio:	6.667
Axial length:	20 mm
Diameter:	44 mm
Shaft diameter:	6 mm
Inner gap length:	1.5 mm
Outer gap length:	1 mm
Material of inner magnet	Sintered Nd-Fe-B
Material of outer magnet	Bonded Nd-Fe-B

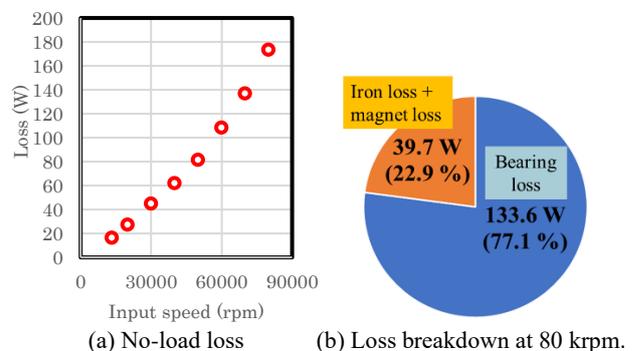
Fig. 1 Specifications of an ultra high speed magnetic gear.



(a) Inner rotor (b) Pole-pieces (c) Magnetic gear
Fig. 2 Appearance of the prototype magnetic gear.



(a) Input vs. output speed (b) Efficiency vs. speed
Fig. 3 Characteristics of the prototype magnetic gear.



(a) No-load loss (b) Loss breakdown at 80 krpm.
Fig. 4 No-load loss and loss breakdown of the prototype magnetic gear.

参考文献

- 1) K. Nakamura, M. Fukuoka, O. Ichinokura, *Journal of Applied Physics*, **115**, 17A314 (2014).

アルミコイルを適用した SR モータに関する基礎検討

朝雛えみり, 中村健二, *柳沢恭平, *古屋勇太
(東北大学, *(株)アスター)

Basic Examination of SR Motor with Aluminum Coils

E. Asahina, K. Nakamura, *K. Yanagisawa, *Y. Furuya
(Tohoku University, *Aster Co., Ltd.)

はじめに

スイッチトリラクタンス (SR) モータは、鉄心とコイルのみで構成されるため、構造が単純で堅牢、保守性が良好、安価などの利点を有する。しかしながら、永久磁石 (PM) モータと比べて出力密度が小さく、低効率であるという課題がある。そこで筆者らは銅コイルと比べて、軽量のアルミコイルに着目した。本稿では、Fig. 1 の SR モータを考察対象とし、アルミコイルの適用について 3 次元有限要素法 (3D-FEM) を用いて検討を行ったので報告する。

アルミコイルを適用した SR モータの基礎特性

Fig. 2 に、従来の銅コイルの巻線配置と、本稿で着目したアルミコイルの巻線配置を示す。アルミは銅と比べて柔らかいため、同図のように巻線の断面積は一定のまま、アスペクト比を 1 ターン毎に変えることができる。これによりデッドスペースを極限まで減らし、巻線の占積率を高め、トルクを増大することができる。

Fig. 3 に銅コイル (占積率 44%) と、アルミコイルの占積率を 50, 60, 70, 80, 90% と変化させた際の巻線電流密度対トルク特性を示す。この図を見ると、占積率の向上に伴い、トルクが増大していることが了解される。

次いで、Fig. 4 に銅損対トルク特性を示す。この図を見ると、占積率 70% までは銅コイルと比べて、アルミコイルの銅損が大きいのにに対して、占積率が 70% を超えると、銅損においても優位性を示すことがわかる。つまり、アルミコイルの使用において最も懸念される導電率の低下に伴う銅損の増大は、占積率を向上させることで改善することができる。

以上、アルミコイルを適用した SR モータの特性について検討を行った。今後はモータ形状や鉄心材料についても検討を行い、さらなる高トルク化と高効率化を図る。なお、本研究の一部は東北大学 AIE 卓越大学院プログラムにより支援された。

参考文献

- 1) K. Nakamura, Y. Kumasaka, and O. Ichinokura, *Journal of Physics: Conference Series*, **903**, 012040 (2017).

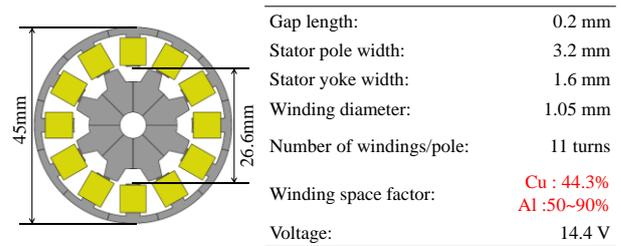


Fig. 1 Specifications of a 12/8 SR motor ¹⁾.

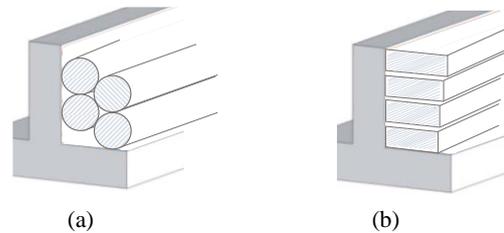


Fig. 2 Comparison of winding arrangements; (a) conventional copper coil, (b) proposed aluminum coil.

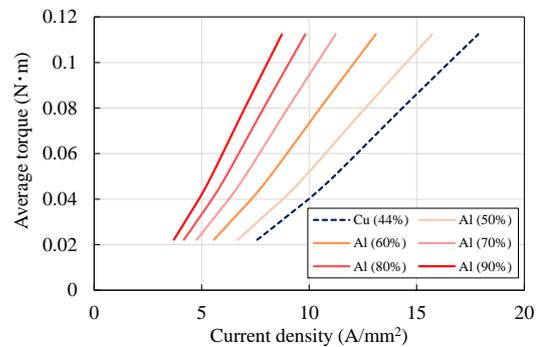


Fig. 3 Comparison of torque characteristics of copper coil and aluminum coil with different winding space factors.

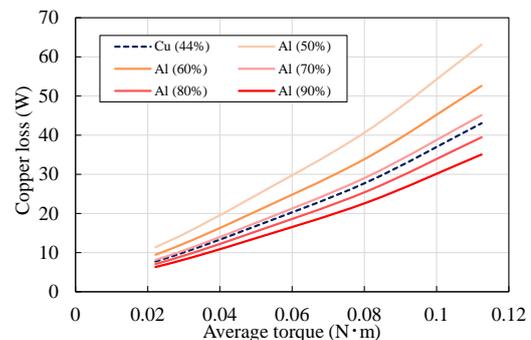


Fig. 4 Comparison of copper loss characteristics of copper coil and aluminum coil with different winding space factors.

小型 EV 用インホイール磁気ギヤード SR モータの提案

伊藤亘輝, 中村健二
(東北大学)

Proposal of Magnetic-Geared SR Motor for In-wheel Drive type Compact EV

Koki Ito, Kenji Nakamura
(Tohoku University)

はじめに

ダイレクトドライブモータや磁気ギヤードモータはトルク密度が高いことから、電気自動車 (EV) のホイール内に収めたインホイールモータへの応用が期待されている^{1),2)}。しかし、上述のモータは一般に表面磁石型であることから、弱め界磁制御の効果が得にくく、移動体モータに要求される低速・大トルクと高速・低トルクの両立が困難である。

そこで本稿では、磁気ギヤとスイッチトリラクタンス (SR) モータを一体化した新しい磁気ギヤードモータについて検討を行ったので報告する。

提案する磁気ギヤード SR モータの特性

Fig. 1 に、提案する磁気ギヤード SR モータ (MG-SRM) の諸元を示す。MG-SRM は磁束変調型磁気ギヤの内側に SR モータが組み込まれた構造を有し、磁気ギヤ部は 8 極対の高速回転子 (HSR), 82 極のポールピース (PP), 74 極対の低速回転子 (LSR) で構成される。SR モータ部は 4 相 16 スロット集中巻のステータと 20 極の HSR で構成され、磁気ギヤ部と SR モータ部で 1 つの HSR を共有している。

Fig. 2 に、比較用に設計したダイレクトドライブ PM モータの諸元を示す。比較用の PM モータは、ダイレクトドライブモータとして一般的な表面磁石型のアウトロータ構造である。また、分数スロットを採用し、16 極 18 スロット (16p18s)、並びに 32 極 30 スロット (32p30s) の構成とした。なお、MG-SRM と PM モータで直径、積み厚、磁石使用量を統一し、直流電源電圧 48 V、電流実効値上限 30 A_{rms} の条件で特性の比較を行った。

Fig. 3 に、有限要素法による特性算定結果を示す。電流密度対トルク特性の図より、MG-SRM は SR モータと磁気ギヤを組み合わせたことで PM モータと同等のトルクが得られていることがわかる。次いで、速度対トルク特性の図から、PM モータは低速側で 100 N·m 以上のトルクを達成可能である一方、弱め界磁制御を用いても最高速度が 300 rpm 未満である

ことがわかる。これに対して、MG-SRM は低速側で 100 N·m を達成可能、かつ 500 rpm まで駆動できることがわかる。したがって、提案する MG-SRM は移動体モータに要求される低速・大トルクと高速・低トルクの両立が実現できることが明らかとなった。

参考文献

- 1) K. T. Chau et al., *IEEE Trans. Magn.*, **43**, 6 (2007).
- 2) S. Chung et al., *IEEE Trans. Ind. Electron.*, **63**, 1 (2016).

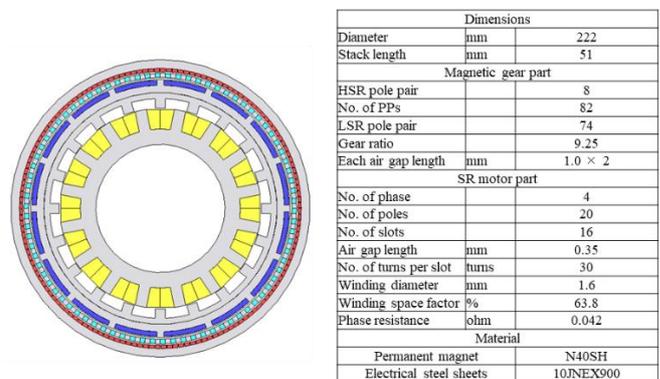


Fig. 1 Specifications of a proposed magnetic-geared switched reluctance motor (MG-SRM).

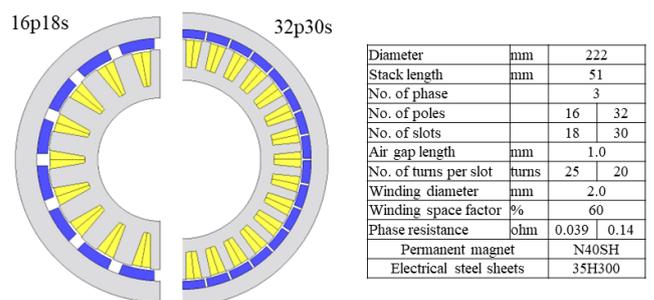


Fig. 2 Specifications of outer-rotor direct-drive permanent magnet motors.

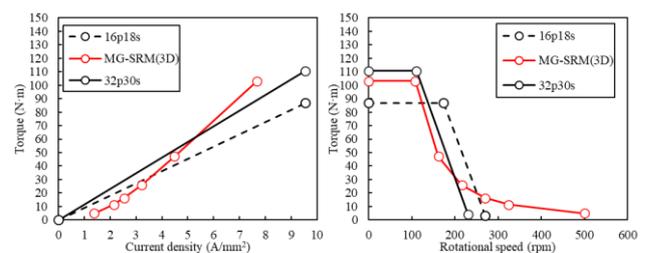


Fig. 3 Comparison of current density vs. torque and rotational speed vs. torque characteristics.

横方向磁束型 SR モータの電流アンバランス改善に関する検討

永井歩美, 中村健二
(東北大学)

Improvement of Current Unbalance of Transverse-Flux-type SR Motor

A. Nagai, K. Nakamura
(Tohoku University)

はじめに

先に筆者らは、スイッチトリラクタンス (SR) モータのトルク向上を目的として、横方向磁束型の SR モータ (TFSRM) を提案したり。しかしながら一方で、磁気回路の非対称性などに由来する電流アンバランスの問題が明らかとなった。

そこで本稿では、電流アンバランスの解消を狙い、TFSRM の相数を 3 から 2 に変更した場合の特性について、3次元有限要素法 (3D-FEM) を用いて検討を行ったので報告する。

2相 TFSRM による電流バランス改善

Fig. 1(a)に、先行研究で試作した3相 TFSRM を示す。同図に示すように、TFSRM の各相の固定子、回転子はともにカットコアで構成され、固定子カットコアの内側にトロイダル状のコイルが収められている。これらを軸方向に3段積み重ねることで、3相機となる。TFSRM のコイルはトロイダル状であることから、一般的な SR モータと比べて、巻線占積率を高くすることができる。加えて、鉄心材料に方向性ケイ素鋼板を採用できるため、動作磁束密度も高くなり、トルクや効率が向上する。

しかしながら一方で、互いに隣接する相に磁束が流入するため、1段目と3段目に対して、2段目の磁気回路が異なることや、さらに磁気飽和の影響を受けて、各相の電流にアンバランスが生じる。Fig. 2に、3相 TFSRM の各相の電流波形を示す。電流のアンバランスはトルクのアンバランスに直結するため、振動や騒音などの原因となる。

そこで本稿では、Fig. 3の2相 TFSRM について検討を行った。同図からわかるように、2相機では1段目と2段目の磁気回路は対称になる。

Fig. 4に、3D-FEM で計算した電流波形を示す。この図を見ると、軽負荷時も高負荷時も電流のアンバランスが解消されていることが了解される。

なお、本研究の一部は東北大学 AIE 卓越大学院プログラムにより支援された。

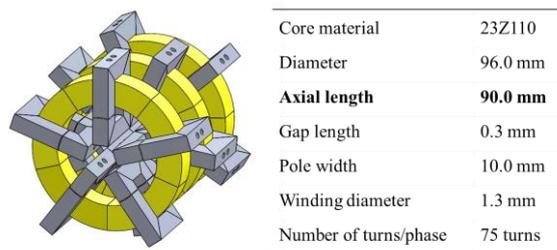


Fig. 1 Specifications of a prototype 3-phase TFSRM.

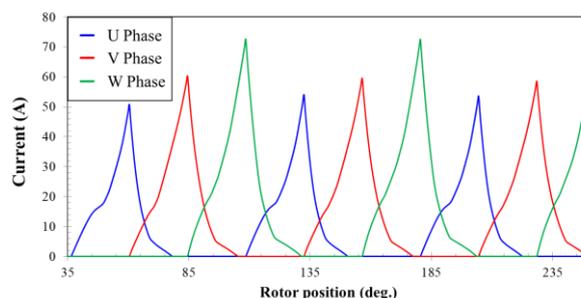


Fig. 2 Current waveforms of the 3-phase TFSRM.

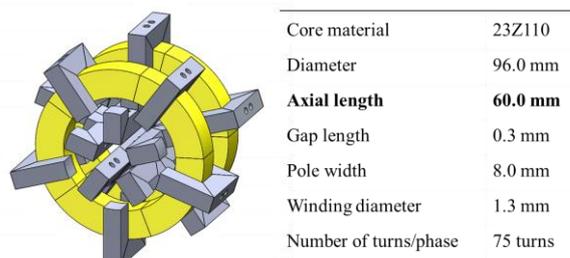
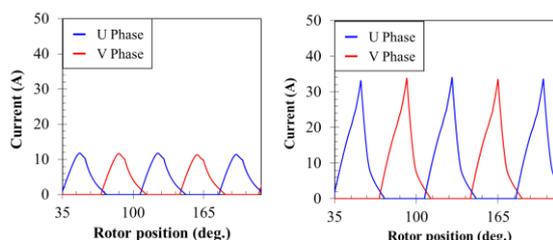


Fig. 3 Specifications of a 2-phase TFSRM.



(a) Light load (b) Heavy load
Fig. 4 Current waveforms of the 2-phase TFSRM.

参考文献

- 1) T. Komoriya, Y. Ito, K. Nakamura, *J. Magn. Soc Jpn. Special Issues*, **3**, 58 (2019).

クロスポール型フラックスリバーサルモータに関する基礎検討

于 越, 中村 健二 (東北大学)

Basic Examination of Cross-pole-type Flux-Reversal Motor

Y. Yu, K. Nakamura (Tohoku University)

1. はじめに

フラックスリバーサル (FR) モータ¹⁾は、二重突極機²⁾の一種である。永久磁石が固定子側に配置されるため、二重突極永久磁石 (DSPM) モータ²⁾と構造的特徴が似ているが、DSPM モータは固定子ヨークに永久磁石が配置されるため、巻線鎖交磁束の変化はユニポーラとなる。一方、FR モータは、Fig. 1(a)に示すように一対の磁石を固定子極先端に配置するため、巻線鎖交磁束の変化はバイポーラとなる。これにより、FR モータは一般的な永久磁石 (PM) モータと同等の出力が期待される。また、回転子に磁石を配置しないため、イナーシャが小さく、高速応答に優れる。しかしながら一方で、固定された磁石に電機子磁束が直接流入するため、磁石渦電流損の発生が指摘される。

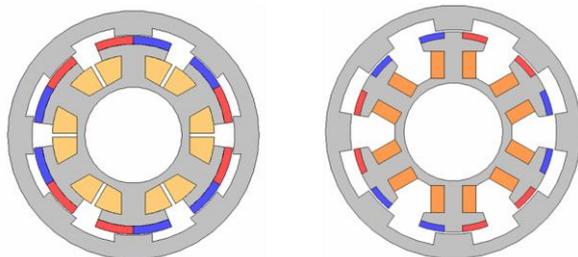
そこで本稿では、固定子極形状を工夫し、電機子磁束が磁石に流入し難い、新しい構造の FR モータについて、有限要素法 (FEM) を用いて検討したので報告する。

2. クロスポール型 FR モータの特性

Fig. 1(b)に、本稿で提案するクロスポール型 FR モータを示す。固定子極の形状を十字形にすることで、電機子磁束がより透磁率の高い鉄心を流れ、磁石への流入を防ぐ効果が期待される。

Fig. 2 に、モータの諸元を示す。本モータは 3 相 6 スロット 8 極機であり、定格回転数は 18,200 rpm、定格トルクは 290 mN・m である。

Fig. 3 に、電流密度対トルク特性の比較を示す。この図を見ると、従来の FR モータとほぼ同等のトルク特性が得られていることが了解される。



(a) Conventional-type (b) Cross-pole-type

Fig. 1 Conventional and proposed FR motors.

Fig. 4(a)に、磁石渦電流損の計算値を示す。同図(b)は効率である。同図(a)を見ると、提案機は磁石渦電流損を 60% 近く削減していることがわかる。これにより、効率も約 10% 向上した。

今後は実機の試作と実証実験を行う予定である。

参考文献

- 1) R. P. Deodhar, S. Andersson, I. Boldea and T. J. E. Miller, *IEEE Trans. Ind. Applicat.*, **33**, 925 (1997).
- 2) Y. Liao, F. Liang, and T. A. Lipo, *IEEE Trans. Ind. Applicat.*, **31**, 1069 (1995).

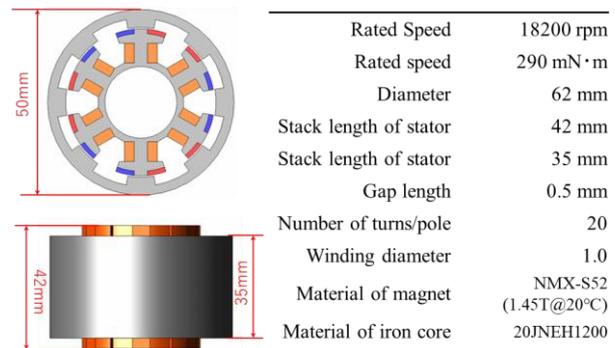


Fig. 2 Specifications of the cross-pole-type FR motor.

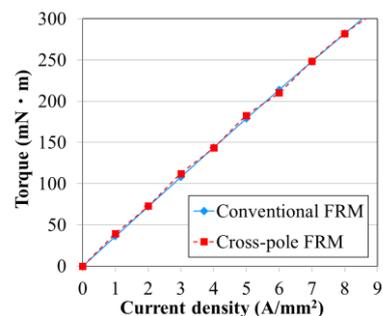
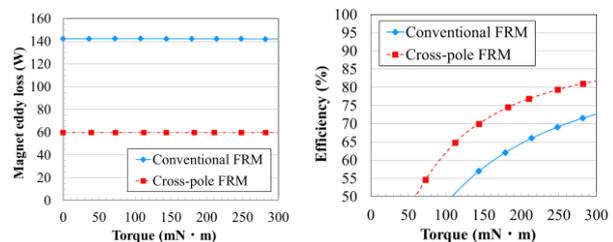


Fig. 3 Comparison of torque characteristics.



(a) Eddy current loss in magnets

(b) Efficiency

Fig. 4 Calculated characteristics of the conventional and proposed FR motor.

Kronmüller 式とランダウ理論 -自由エネルギー地形による保磁力表現 (1)-

三俣千春、小嗣真人
(東京理科大)

Kronmüller formula and Landau theory -expression for coercivity using free energy landscape (1) -

C. Mitsumata, and M. Kotsugi
(Tokyo Univ. of Science)

1 はじめに

ランダウ理論では秩序変数の関数として自由エネルギーを記述し、エネルギー極小状態を決定する。エネルギー極小状態は外場の影響で変化するが、これに追従して変化する秩序変数の追跡によって系の相転移などを解析する。磁性材料の場合、系の磁化が秩序変数となるので、磁化反転などの現象にランダウ理論を利用することが可能である。

磁性材料の特性を表す典型的な指標として保磁力が上げられる。保磁力機構については未解明な部分が多く残されているが、現象論的には以下の Kronmüller 式がその特徴を良く表現している。 $H_c = \alpha H_k - N_d M_s$ 、ここで、 H_c, H_k, N_d, M_s はそれぞれ保磁力、異方性磁場、反磁場係数および飽和磁化である。 α は減衰係数で $0 < \alpha \leq 1$ の範囲となっている。多くの実用材料では $\alpha \sim 0.3$ 程度であり、 H_k とは大きな隔りがある。 α の解析は micro-magnetics の手法で行われてきたが、保磁力機構の解析と併せてさらなる理解が必要と考えられる。ここでは、ランダウ理論を用いて Kronmüller 式の導出を行い、保磁力機構について考える。

2 結果および考察

磁性材料の自由エネルギーは全磁気モーメント m の関数として $F(m) = U(m) - k_B T S(m)$ で表される。 U, k_B, T, S はそれぞれ内部エネルギー、Boltzman 定数、温度、エントロピーである。全磁気モーメントは系の体積と磁化を V および M として $m = VM/4\pi$ である。Kronmüller 式は陽に温度を含まないので、以下では $T = 0$ として議論を進める。自由エネルギーの極小条件は、 $\partial F/\partial m = 0$ を満足する m で決定される。ここで外部磁場 H_{app} の影響を考慮するために Zeeman エネルギー $-mH_{app}$ を自由エネルギーに加える。解析対象を $m > 0 \rightarrow m < 0$ の磁化反転とし、外部磁場は $H_{app} < 0$ と考える。よって外部磁場を印加した時の磁化反転の条件は、 $m > 0$ の領域にエネルギー極小状態が存在しないことを意味する。これを式に表すと、 $\partial(U(m) - mH_{app})/\partial m \geq 0$ となる。同式を外部磁場に対して整理すると、 $\partial U(m)/\partial m \geq H_{app}$ となるので、自由エネルギー地形の傾斜の最小値よりも小さくなる H_{app} が反転磁場であり、等式の条件が保磁力 H_c を与える。具体的な内部エネルギーの形として、

$$U_1(m) = K_u V \left(1 - \frac{m^2}{m_s^2}\right) + \frac{2\pi N_d}{V} m^2 \quad (1)$$

$$U_2(m) = \frac{K_u V}{\sigma^4 m_s^4} m^4 - 2 \left(\frac{K_u V}{\sigma^2 m_s^2} - \frac{\pi N_d}{V}\right) m^2 + K_u V \quad (2)$$

を考える。 U_1 は一斉磁化回転となる SW 模型、 U_2 は二重極小状態を持つエネルギー地形で、残留磁化状態 m_r においてエネルギー極小となる関数である。ここで σ は角型比 (m_r/m_s) を示す。二つの場合ともに磁気異方性 K_u によってエネルギー障壁高さが規定されていると仮定する。これらを用いて保磁力を計算した結果は以下となる。

$$H_{c1} = \frac{2K_u V}{m_s} - \frac{4\pi N_d m_s}{V} = H_k - H_d M_s \quad (3)$$

$$H_{c2} = \sqrt{\frac{64\sigma^4 m_s^4}{27K_u V} \left(\frac{K_u V}{\sigma^2 m_s^2} - \frac{\pi N_d}{V}\right)^3} = \sqrt{\frac{16\sigma^4}{27H_k} \left(\frac{H_k}{\sigma^2} - \frac{N_d M_s}{2}\right)^3} \approx \frac{4}{\sqrt{27}} \left(\frac{1}{\sigma} H_k - \frac{3\sigma}{4} N_d M_s\right) \quad (4)$$

これらを Kronmüller 式の形に整理し直すと、 H_{c1} では $\alpha = 1$ 、 H_{c2} では $\alpha < 1$ であることを示すことができる¹⁾。

References

- 1) C. Mitsumata and M. Kotsugi: *J. Magn. Soc. Jpn.*, under review.

保磁力の温度依存性とエントロピー -自由エネルギー地形による保磁力表現 (2)-

三俣千春、小嗣真人
(東京理科大)

Temperature dependence of coercivity and entropy -expression for coercivity using free energy landscape (2) -

C. Mitsumata, and M. Kotsugi
(Tokyo Univ. of Science)

1 はじめに

ランダウ理論を用いた自由エネルギー地形の解析から、磁性材料の保磁力を表現する方法について検討を行った。その結果、磁化反転に必要な磁場の大きさは自由エネルギー地形の傾斜に依存することが明らかとなった。自由エネルギー地形は磁化過程に影響されるので、保磁力の大きさにも違いが表れることが分かった。これらの結果を利用して、保磁力の温度依存性について検討を行った。

2 結果および考察

ランダウ理論では秩序変数の関数として自由エネルギーが表現され、その極小条件を与える秩序変数が系の状態として実現される。磁性材料の場合、秩序変数は磁化によって表現可能なことから、磁化反転も系の安定状態から決定できる。系の安定条件は自由エネルギーの微分で評価されるが、エネルギーを磁化で微分することは有効磁場を計算することに他ならない。系の自由エネルギーは $F(m) = U(m) - k_B T S(m)$ で与えられる。ここで U, T, S はそれぞれ内部エネルギー、温度、エントロピーである。また、 k_B は Boltzmann 定数を表す。ここでは、 U が二重極小曲線であると考えて、

$$U(m) = \frac{K_u V}{\sigma^4 m_s^4} m^4 - 2 \left(\frac{K_u V}{\sigma^2 m_s^2} - \frac{\pi N_d}{V} \right) m^2 + K_u V \quad (1)$$

とする。 $K_u, V, \sigma, N_d, m(m_s)$ はそれぞれ磁気異方性エネルギー、系の体積、角型比、反磁場係数、全磁気モーメント（飽和）を示す。ここで、具体的にエントロピーを計算するため、以下の仮定をする。磁性材料の磁気異方性が非常に強く、磁化は Ising 模型の様に正負の2状態のみであると考えられる。すると、系のエントロピーは、

$$S(m) = \phi \left(1 - \frac{m^2}{m_s^2} \right) \quad (2)$$

のように計算できる。この仮定は磁化反転確率が Gauss 分布に従うと考えるものである。ここで ϕ は比例定数である。

以上の関数を用いて保磁力 H_c を計算する。 H_c は自由エネルギー地形の傾斜から計算されるので、 $|\partial F / \partial m|$ の最大値を求める。

$$H_c = \left| \frac{\partial F(m)}{\partial m} \right|_{m=m_c} \quad (3)$$

ただし、

$$m_c = \sqrt{\frac{\sigma^4 m_s^4}{6 K_u V} \left(\frac{2 K_u V}{\sigma^2 m_s^2} - \frac{2 \pi N_d}{V} - k_B T \frac{\phi}{m_s^2} \right)} \quad (4)$$

である。係数を整理して γ とすれば、

$$H_c \sim \sqrt{(1 - \gamma T)^3} \quad (5)$$

となり、 $-T^{3/2}$ の関数形で保磁力が温度上昇とともに低下する結果が示された¹⁾。

温度依存性は内部エネルギーおよびエントロピーの関数形に依存し、例えば $P(m) \sim e^{-\phi m}$ の形 (Poisson 分布) に磁化反転確率を制御可能であれば保磁力が温度依存しない系を実現可能である。

References

- 1) C. Mitsumata and M. Kotsugi: *J. Magn. Soc. Jpn.*, under review.

六方晶フェライト $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Sc}_x)_{12}\text{O}_{19}$ で発現する アンチフェロ成分を持つ磁気相の磁気構造解析

田中誠也¹, 丸山健一¹, 鬼柳亮嗣², 中尾朗子³, 森山健太郎³, 石川喜久³, 内海重宜¹

(公立諏訪東京理科大学大学院¹, 日本原子力研究開発機構², 一般財団法人総合科学研究機構³)

Magnetic structure analysis of magnetic phase with antiferro component appearing in $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Sc}_x)_{12}\text{O}_{19}$

S. Tanaka¹, K. Maruyama¹, R. Kiyanagi², A. Nakao³, K. Moriyama³, Y. Ishikawa³, S. Utsumi¹

(Suwa Univ. of Sci¹, J-PARC Center, JAEA², CROSS³)

はじめに

我々はこれまでに、中性子回折および磁化測定により M 型六方晶フェライト $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Sc}_x)_{12}\text{O}_{19}$ が Sc 濃度 x および温度 T で発現する磁気相を示す x - T 磁気相図を作製した。これによると、 $x \geq 0.06$ で磁気モーメントが角度配列したヘリカル磁性が発現する。ヘリカルの回転角 ϕ は x の増加とともに大きくなり、 $x \geq 0.19$ で $\phi = 180^\circ$ に達しアンチフェロ成分を持つ磁性相が発現する。本研究の目的は、中性子回折測定データの解析により $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Sc}_x)_{12}\text{O}_{19}$ のアンチフェロ成分を持つ磁気相の結晶および磁気構造を決定することである。

実験方法

試料にはフラックス法により育成した Sc 濃度 $x=0.193$ の $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Sc}_x)_{12}\text{O}_{19}$ 単結晶を用いた。J-PARC の材料・生命科学実験施設 (MLF) の BL18 に設置された TOF-Laue 単結晶中性子回折計 SENJU を用いて、6 K で中性子回折測定を行った。結晶および磁気構造解析はソフトウェア JANA2020 を用いて実施した。

実験結果

図 1 に 6 K における $x=0.193$ 結晶の構造因子の実測値 (F_{obs}) と計算値 (F_{cal}) の比較を示す。両者は良く一致し、 R 因子は結晶因子で 9%, 磁気因子で 15% であった。結晶構造解析の結果、 $x=0.193$ 結晶では Sc は Octahedral サイト ($4f_2$) を多く置換することが示された。図 2 に、解析の結果得られた $x=0.193$ 結晶の磁気構造を示す。比較のために $x=0$ 結晶のフェリ磁気構造も示す。 $x=0$ 結晶のフェリ磁気構造では c 軸方向に向いていた磁気モーメントは、 $x=0.193$ 結晶ではほぼ ab 面に横たわるが、わずかに c 軸成分を持つスピncyアント磁気構造であることが分かった。Fe2-Fe5 の磁気モーメントのなす角度に着目すると、 $x=0$ 結晶では 0° であったが、 $x=0.193$ 結晶では 115° となった。Sc の $4f_2$ への強いサイトプレファレンスにより、Fe2-Fe5 間の超交換相互作用が相対的に強化されたため、スピncyアント磁気構造が発生したと考えられる。

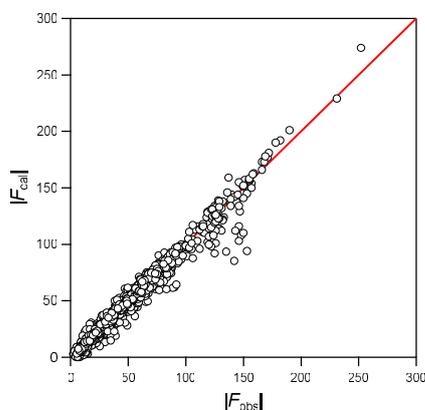


図 1 Sc 濃度 $x=0.193$ の結晶および磁気構造因子 $|F_{\text{obs}}|$ と $|F_{\text{cal}}|$ の比較。

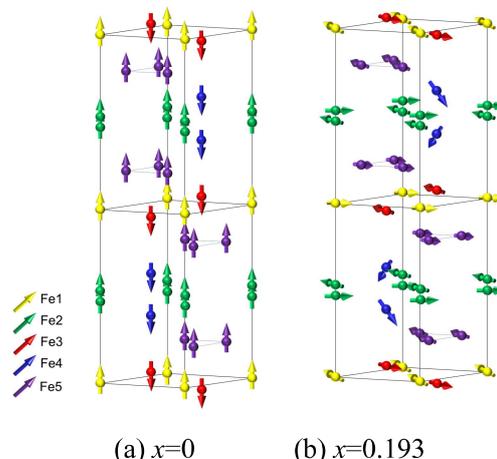


図 2 Sc 濃度 (a) $x=0$, (b) $x=0.193$ の磁気構造。

謝辞 中性子回折実験は、J-PARC の MLF のユーザープログラム (課題番号 2018B0073, 2019A0211, 2019B0098, 2020A0034) の下で行われた。

La-Co 共置換 M 型 Sr フェライトの熱処理による Co 置換サイト分布の制御

有本将吾、和氣剛、田畑吉計、中村裕之
(京都大学)

Control of Co distribution by heat treatment in La-Co co-substituted M-type Sr ferrite

S. Arimoto, T. Waki, Y. Tabata, H. Nakamura
(Kyoto University)

研究目的

M 型 Sr フェライト $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ は Fe^{3+} ($3d^5, S=5/2$) が磁性を担うフェリ磁性体であり、低価格・化学的に安定・資源的に豊富などの理由から永久磁石の母材として用いられている。この物質は Fe^{3+} の一部を Co^{2+} で置換し、電荷補償のため Sr^{2+} の一部を La^{3+} で置換することで異方性が向上することが知られている¹⁾(La-Co 共置換 M 型 Sr フェライト)。最近、Co の最優先置換サイトは四面体配位の $4f_1$ (2a と 12k にも分布) であり、また $4f_1$ サイトの Co のみが一軸異方性の増強に寄与することが明らかになっている²⁾。第一原理計算によると、 $4f_1$ 、2a、12k への Co の占有エネルギー差は合成温度程度で接近しており³⁾、熱処理による Co の分布状況の変化が期待できる。Co は供給不安のある元素であり、Co を $4f_1$ に集中させることができれば、より有効的に活用できる。本研究では、熱処理による Co の分布変化を通じた磁気異方性の変化について調査した。

実験方法

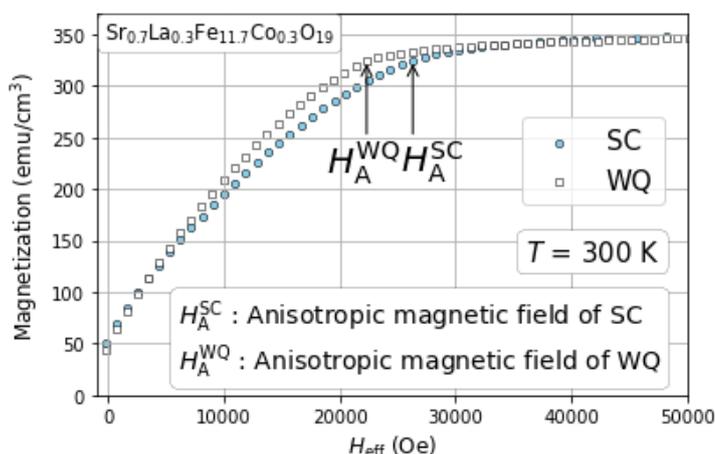
$\text{Sr}_{0.7}\text{La}_{0.3}\text{Fe}_{11.7}\text{Co}_{0.3}\text{O}_{19}$ の多結晶試料を固相反応法により合成した。 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ (99.99%)、 SrCO_3 (99.9%)、 La_2O_3 (99.99%)、 Co_3O_4 (99.9%)を、化学量論組成となるように秤量し、乾式で 1 h 混合、ペレットに成形し、焼成温度 1300 °C、焼成雰囲気中の酸素分圧 1 atm で 12 h 保持した。数回の粉碎混合焼結を繰り返し、最終的には 200 °C/h で徐冷した(SC)。また、酸素分圧 1 atm 雰囲気下で 1000 °C で焼鈍し、水冷による急冷処理を行った(WQ)。XRD、WDX により相同定を行い、磁化測定には、磁場中配向試料を用いた。磁化困難軸(磁場配向方向と垂直方向)に対し磁場を印加して SQUID 磁束計(Quantum Design 社 MPMS)を用いて磁化曲線を測定した($T=5\text{-}300\text{ K}$, $H=0\text{-}7\text{ T}$)。

実験結果

【図】に SC 試料と WQ 試料の磁化困難方向の磁化曲線を示す。SC と WQ の組成は同じであるが、磁化曲線の挙動は一致しなかった。SPD 法により異方性磁界を見積もったところ、WQ では $H_A^{\text{WQ}} = 22\text{ kOe}$ 、SC では $H_A^{\text{SC}} = 26\text{ kOe}$ となった。この異方性の違いは、熱処理の違いに起因し、Co の置換サイト分布を反映している。SC ではより低温の平衡分布が実現し、最安定置換サイトが多く占有されていると考えられる。したがって、最安定置換サイトの Co が一軸異方性を向上させていることを示している。このことはこれまでの研究結果²⁾とよく一致しており、より低温での熱処理が $4f_1$ への Co 置換占有率を向上させ磁気異方性の向上に寄与するといえる。

参考文献

- 1) K.Iida, Y. Minachi, K.Masuzawa, et al. J. Magn. Soc. Japan, **23**, 1093-1096 (1999)
- 2) H. Nakamura, J. Jpn. Soc. Powder Metallurgy, **67** (2020) 78-83
- 3) 小林 他 第 45 回 日本磁気学会学術講演概要集 (2021) 01aD - 7



【図】 SC と WQ の磁化曲線

高酸素圧 FZ 法による Co 置換 W 型フェライト単結晶の育成

中井 慎司、和氣 剛、田畑 吉計、中村 裕之

(京都大学)

Single crystal growth of Co substituted W-type ferrite by high oxygen pressure floating zone method

S. Nakai, T. Waki, Y. Tabata, H. Nakamura

(Kyoto Univ.)

はじめに

W 型フェライト ($A\text{Fe}^{2+}_2\text{Fe}^{3+}_{16}\text{O}_{27}$, $A = \text{Sr}, \text{Ba}, \dots$) は六方晶フェライトの一種であり、次世代の永久磁石材料として期待されているが、大気中で不安定という問題がある[1]。W 型フェライトの Fe^{2+} をすべて大気中で安定な Me^{2+} (Mg^{2+} , Co^{2+} , Ni^{2+} , Zn^{2+} ...) で置換した $A\text{Me}^{2+}_2\text{Fe}^{3+}_{16}\text{O}_{27}$ (以降 Me 安定化 W) は比較的容易に得られると考えられている[2]が、必ず不純物を伴い単相化しない[3]。最近我々は、 Me 安定化 W においてもなお Fe^{2+} が発生し、化学量論組成とはならないことが単相化しない原因であること、また、発生する Fe^{2+} の量が酸素分圧に依存することを報告している[4]。本研究では、化学量論組成の Co 置換 W 型フェライト ($\text{SrCo}_2\text{Fe}_{16}\text{O}_{27}$) の単結晶合成を目的として、超高酸素圧下での FZ 法による単結晶合成を試みた。

実験方法

FZ 法による結晶合成には、高圧型レーザー単結晶育成装置 (クリスタルシステム) を用い、 $p_{\text{O}_2} = 10 \text{ MPa}$ で育成した。原料棒は化学量論組成の粉末を焼結させたものを用いた。試料の相同定は粉末 X 線回折 (XRD) により行い、組成分析は走査型電子顕微鏡 (SEM) に付属のエネルギー分散型 X 線回折 (EDX) と波長分散型 X 線回折 (WDX) により行った。

実験結果

FZ 法による結晶育成の結果、Fig. 1 の様な結晶が得られた。また劈開により、c 面が見られた。一方で、結晶の一部を粉末化し XRD による相同定の結果、W 相が主相であるものの、不純物としてスピネルフェライト、M 型フェライト、X 型フェライトが確認された。また EDX による元素マッピング (Fig. 2) では、Co スピネルと思われる不純物相が広範囲に確認できた。WDX による組成分析の結果、W 相の組成は位置に依存しているが、化学量論組成よりも Fe が多く、Co が少ない傾向が見られた ($\text{SrCo}_{2-\delta}\text{Fe}_{16+\delta}\text{O}_{27}$, $\delta \sim 0.4$)。Co 置換 W 型フェライトが合致融解する温度では高酸素圧環境においても Fe^{2+} の発生を完全に抑制できないことが分かった。

参考文献

- [1] Y. Goto et al., J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy **17** (1971) 193-197
- [2] R. C. Pullar, Prog. Mater. Sci. **57** (2012) 1191-1334
- [3] M. I. Mørch et al., IUCrJ **6** (2019) 492-499
- [4] S. Nakai et al., J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy **69** (2022) (accept)



Fig. 1 SrCo_2W crystals obtained by FZ method in high oxygen pressure

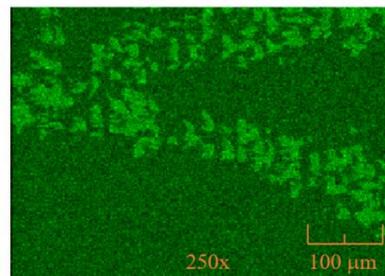


Fig. 2 Element mapping of Co. The bright area is Co spinel ferrite, and the rest area is W-type ferrite

Sm(Fe-Co)-B 薄膜の Al 層拡散による保磁力向上

森 裕一、神林 守人、畑中 辰汰朗、中塚 奏賀、平山 和樹、土井 正晶、嶋 敏之
(東北学院大工)

Improvement of coercivity for Sm(Fe-Co)₁₂-B thin films by Al layer diffusion

Y. Mori, M. Kambayshi, S. Hatanaka, S. Nakatsuka, K. Hirayama, M. Doi and T. Shima
(Tohoku Gakuin Univ.)

はじめに

ThMn₁₂型構造を有する RFe₁₂化合物は高い飽和磁化を示すことから新規高性能永久磁石として期待されている。中でも Sm(Fe_{0.8}Co_{0.2})₁₂ 薄膜は室温において優れた飽和磁化 $\mu_0 M_s = 1.77$ T、異方性磁場 $\mu_0 H_A = 12$ T、キュリー温度 $T_C = 586$ °C を示すことが報告されている¹⁾。我々は Sm(Fe_{0.8}Co_{0.2})₁₂ 薄膜へ B 添加することにより、SmFe₁₂ 柱状粒子が B を含有するアモルファス粒相により明瞭に分断された構造を示し、高い保磁力 $\mu_0 H_C = 1.2$ T が得られることを報告した²⁾。また、形成された粒相は主に Fe, Co 及び B で構成されることから強磁性を示すことが考えられ、粒相の磁気特性の調整により更なる保磁力の向上が期待される。その 1 つの手法として Si を粒相拡散させた Sm(Fe-Co)₁₂-B 薄膜を作製し、その磁気特性と微細組織を詳細に調べ、磁化反転プロセスをマイクロマグネティックシミュレーションを用いて評価した。その結果、磁性層へ拡散した Si は粒相中に集中して分布し保磁力は 1.11 T から 1.31 T に向上することが確認された³⁾。しかしながら、キャップ層から拡散した Si は磁性層の上部 25 %程度に留まることが観察され、それらの結果を元にしたシミュレーションから Si が完全に粒相拡散されれば、保磁力は 1.9 T まで大きく増加することが予測された。このように、粒相への非磁性元素の拡散は保磁力向上に有効であり、粒相へ完全に拡散させることで大きな保磁力が期待される。本研究では拡散元素として Al を選択し、Al 層成膜後に熱処理を行うことにより保磁力向上を目指した。

実験方法

試料作製は超高真空多元スパッタ装置を用いて作製した。4.0 × 10⁻⁸ Pa 以下の真空雰囲気中において、700 °C で基板クリーニングした MgO(100)単結晶基板の基板温度を 400 °C に設定し、ガス圧 1.30 mTorr の Ar 雰囲気中において V 下地層を 20 nm、磁性層として Sm(Fe-Co)₁₂-B を 100 nm 成膜した。続いて基板温度 450 °C において、拡散元素として Al 層を $t_{Al} = 0 \sim 100$ nm 成膜した後、 $T_a = 350 \sim 500$ °C の熱処理温度で $t_a = 0 \sim 300$ min の熱処理を行い、最後に酸化防止層として V 層を 10 nm 成膜した。作製した試料の結晶構造は X 線回折(XRD)により、磁気特性は超伝導量子干渉磁束計(SQUID)を用いて評価した。

実験結果

Al 層を付与しない Sm(Fe_{0.8}Co_{0.2})₁₂-B 薄膜において膜面垂直方向に測定した磁化曲線より 1.23 T と高い保磁力が得られた。続いて、磁性層上に Al 層 18 nm 成膜した試料を 450 °C で熱処理することにより保磁力は 1.55 T に増加し、Al 層厚及び熱処理条件を変化させることにより最大 1.78 T の高い保磁力が得られた。講演では、Al 層厚及び熱処理条件による構造と磁気特性の変化について詳細に報告する。

参考文献

- 1) Y. Hirayama, Y. K. Takahashi, S. Hirose, K. Hono, *Scr. Mater.*, **138** (2017) 62-65.
- 2) H. Sepehri-Amin, Y. Tamazawa, M. Kambayashi, G. Saito, Y. K. Takahashi, D. Ogawa, T. Ohkubo, S. Hirose, M. Doi, T. Shima, K. Hono, *Scr. Mater.*, **194** (2020) 337-342.
- 3) A. Boyachkin, H. Sepehri-Amin, M. Kambayashi, Y. Mori, T. Ohkubo, Y. K. Takahashi, T. Shima, K. Hono, *Acta Mater.*, **227** (2022) 117716.

Sm(Fe₈₀Co₂₀)₁₂ エピタキシャル微粒子薄膜の作製

鍋田滉希¹、芳賀僚太¹、菊池伸明¹、高橋有紀子^{1,2}、岡本聡^{1,2,3}
(東北大多元研¹、NIMS²、東北大 CSIS³)

Fabrication of epitaxially grown Sm(Fe₈₀Co₂₀)₁₂ particulate films
K. Nabeta¹, R. Haga¹, N. Kikuchi¹, Y. K. Takahashi^{1,2}, and S. Okamoto^{1,2,3}
(¹IMRAM, Tohoku Univ., ²NIMS, ³CSIS, Tohoku Univ.)

はじめに

ThMn₁₂型構造をもつ SmFe₁₂系磁石は現在最高性能の Nd₂Fe₁₄B 磁石を超える飽和磁化、高いキュリー温度から新規永久磁石として期待されているが¹、10 T を超える異方性磁場を有しかつこれまでの多くの研究にも関わらず保磁力はその 1 割程度の値に留まっている。我々は理想的な孤立微粒子組織を目指して、Sm(Fe₈₀Co₂₀)₁₂ エピタキシャル薄膜を利用して微粒子薄膜を作製し、保磁力発現について検討した。これまでの SmFe₁₂系エピタキシャル薄膜は V 下地層が多用されているが²、下地層界面での α-Fe 析出などが報告されており、V 下地膜は極薄領域における微粒子作製には不適である。本研究では W 下地膜の利用と、保護層ならびに微粒子成長の制御について調べた結果を報告する。

実験方法

薄膜作製はマグネトロンスパッタリング法により行った。Sm(Fe₈₀Co₂₀)₁₂ エピタキシャル成長は MgO(100)基板を用い、基板温度は 530 °C とし、Sm と Fe₈₀Co₂₀ の同時スパッタにより行った。原子間力顕微鏡 (AFM) による表面観察、透過型電子顕微鏡 (TEM) による微細組織観察、X 線回折 (XRD) による構造解析、エネルギー分散型分光法 (EDS) による組成分析、振動試料型磁力計 (VSM)、異常ホール効果 (AHE) による磁気特性の測定を行った。

実験結果

Fig.1(a)に W 下地層の上に成長させた Sm(Fe₈₀Co₂₀)₁₂ エピタキシャル微粒子の断面 TEM 像を示す。下地界面から良好なエピタキシャル成長が実現されており V 下地膜で問題であった α-Fe 析出の抑制に成功したことが分かる。一方、W 保護層界面においてアモルファス状の拡散層の形成が確認された。これは W スパッタの際の反跳アルゴンなどの高エネルギー粒子の照射によるものと推察し、より軽元素の保護層材料を検討した。いくつかの材料を検討した結果、Fig.1(b)に示すように V を用いることで保護層界面での拡散層形成を抑制できることが分かった。Sm(Fe₈₀Co₂₀)₁₂ 堆積膜厚を減少させることによる粒径微細化、及びそれに対応した保磁力増大も確認した。しかし、保磁力は最大で 0.73 T に留まっており、W 下地膜の平滑性が非常に良いため粒子孤立性が不十分であったためと推察した。これを改善するため、初期核層として MgO(100)基板上に基板温度 600°C で V を島状成長させ、その上に W 下地膜及び Sm(Fe₈₀Co₂₀)₁₂ エピタキシャル微粒子膜を成長させた。その結果、Sm(Fe₈₀Co₂₀)₁₂ 堆積膜厚が 2 nm において粒径 60 nm の孤立微粒子成長を確認できた。しかしこの場合でも保磁力は 0.72 T に留まっている。今後詳細な微細構造の解析により保磁力向上が不十分である原因を調査する予定である。

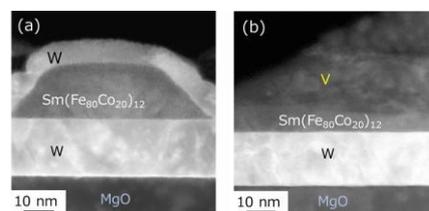


Fig. 1 Fig. 1 Cross-sectional TEM images of Sm(Fe₈₀Co₂₀)₁₂ particulate thin films grown on W underlayers with (a) W and (b) V cap layers.

謝辞 本研究は元素戦略磁性材料研究拠点(JPMXP0112101004)の支援で行われました。

参考文献

1) Y. Hirayama et al., Scr. Mater., **138**, 62-65 (2017).

Fe-Co-V-N 薄膜の室温での相図と一軸磁気異方性

長谷川崇, 白井千尋(院生), 西川大登(院生)
(秋田大理工)

Phase diagrams and uniaxial magnetocrystalline anisotropy of Fe-Co-V-N films

T. Hasegawa, C. Shirai, T. Nishikawa
(Akita Univ.)

はじめに

永久磁石や磁気記録媒体の機能向上のためには、高い結晶磁気異方性定数 (K_u) と高い飽和磁化 (M_s) を兼ね備えた材料の開発が必須である。筆者らの研究室ではこれまでに、FeCo に対して VN を同時添加することで、FeCo 格子に対して正方晶歪みを導入し、 10^6 J/m^3 オーダーの高 K_u が得られることを報告している[1]。本研究では、Fe-Co-V-N の組成比を変えて室温での結晶構造と磁気特性を詳細に調べた。

実験方法

成膜には超高真空多元同時マグネトロンスパッタリング装置 (到達真空度 $\sim 10^{-7}$ Pa) を用いた。膜構成は次の通りである: MgO (100) substrate/ Rh ($t = 20 \text{ nm}$) / $\{(\text{Fe}_{1-y}\text{Co}_y)_{0.9}\text{V}_{0.1}\}_{100-x}\text{N}_x$ ($t = 20 \text{ nm}$) / SiO_2 ($t = 5 \text{ nm}$)。Rh と Fe-Co-V-N は基板加熱温度が各々 300°C 、 200°C で成膜した。V 組成は、先の報告で K_u が最大値を示した 10 at.% に固定した[2]。N 添加量は、スパッタガスである Ar と N_2 の混合比で制御した。本実験での N_2 の分圧 ($\text{N}_2/(\text{Ar} + \text{N}_2)$) は 0~50% で変化させた。Fe-Co-V の組成分析には EPMA、N 組成の分析には XPS を用いた。格子定数 a 及び c の算出には各々 In-plane XRD、out-of-plane XRD を用いた。 K_u の算出には VSM を用いた。

実験結果

Figure 1 は、Fe-Co-V-N 薄膜の室温での (a) c/a と (b) K_u の組成依存性である。Fig.1(a)において、赤丸で示される領域は $c/a = 1.0$ の bcc、青丸で示される領域は $c/a = 1.4$ の fcc、それ以外の色 (橙や緑) で示される領域では $1.0 < c/a < 1.4$ の bct 構造を有している。N を含まない FeCo の第一原理計算の結果では、最大 K_u をとる軸比は $c/a = 1.25$ であった。実験的に $c/a = 1.25$ をとる領域は Fig.1(a) で緑丸で示される組成 $(x, y) = (4.0, 0.5)$ 付近に存在し、Fig.1(b) をみるとその領域で K_u は最大値をとっている。加えて Fe リッチな $(x, y) = (3.0, 0.4)$ 付近においても K_u は最大値をとっているが、この領域の軸比は $c/a = 1.1$ である。すなわち N 添加された FeCo における理想的な軸比は必ずしも $c/a = 1.25$ ではなく $c/a = 1.1$ 付近でもよい可能性が示唆され、この結果は、ここには示していないが第一原理計算の結果と定性的に一致する。また K_u 値は最大で 10^6 J/m^3 オーダーと非常に高い値をとっており、本材料は高 K_u と高 M_s を兼ね備えた硬磁性材料として有用であると考えられる。

参考文献

[1] T. Hasegawa et al., Sci. Rep. 9 (2019) 5248. [2] T. Hasegawa et al., Thin Solid Films 739 (2021) 138990.

この研究は NEDO 未踏チャレンジ 2050、科研費基盤 B (JP20H02832)、ASRC、東北大学金属材料研究所との共同研究(202112-RDKGE-0018)の支援を受けた。

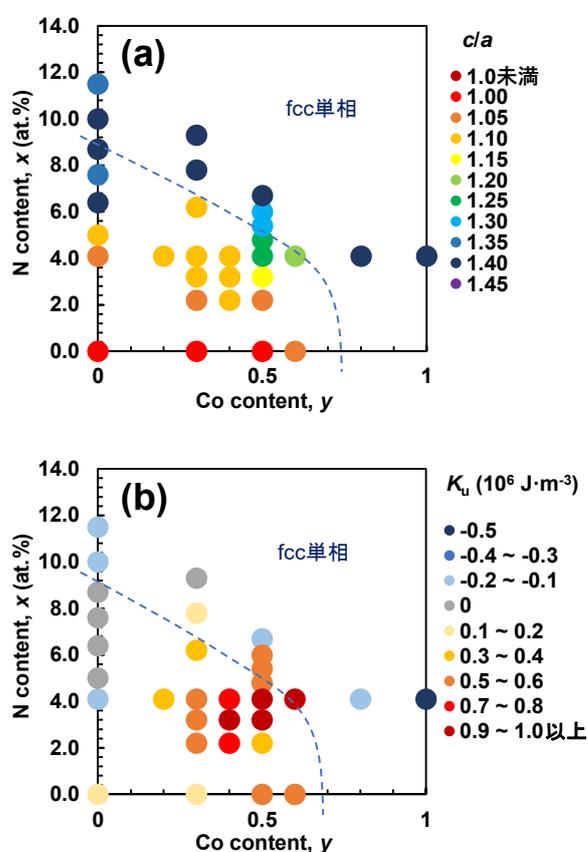


Figure 1. (a) c/a ratio and (b) K_u of the MgO (100) substrate/ Rh ($t = 20 \text{ nm}$) / $\{(\text{Fe}_{1-y}\text{Co}_y)_{0.9}\text{V}_{0.1}\}_{100-x}\text{N}_x$ ($t = 20 \text{ nm}$) / SiO_2 ($t = 5 \text{ nm}$) continuous films at room temperature.

Fe-Co 薄膜の bct 構造と一軸磁気異方性の V-N 添加量依存性

村上知優(学部生), 長谷川崇
(秋田大理工)

bct structure and uniaxial magnetic anisotropy of V-N added Fe-Co films.

C. Murakami, T. Hasegawa
(Akita Univ.)

はじめに

現在実用化されているほとんどの高性能磁石は希土類元素を含むが、正方晶 (bct) の FeCo はそれを含まない。また、FeCo 薄膜に対して置換型元素 V (10 at.%) と侵入型元素 N を同時添加すると bct 構造となり、 10^6 J/m^3 オーダーの高い結晶磁気異方性 (K_u) が得られることがわかっている[1]。しかし、置換型元素 V と侵入型元素 N を添加して形成された bct 構造において、軸比 (c/a) が 1.25 付近のときの磁気特性は未だ明らかになっていない。そこで本研究では、FeCo への V 添加量に注目し、結晶構造と磁気特性の変化を調べた。

実験方法

試料作製には超高真空多元同時マグネトロンスパッタリング装置(到達真空度 $\sim 10^{-7}$ Pa)を用い、STO (100) 基板上に基板加熱温度 200°C で Fe-Co-V-N ($t = 20 \text{ nm}$)、次に室温でキャップ層 SiO_2 ($t = 5 \text{ nm}$) を成膜した。V 組成は FeCo に対して 10 at.% および 20 at.% とし、その上で N 添加量を変化させた。ここでは Ar と N_2 の混合ガス圧を 0.3 Pa とし、 N_2 のガス圧を 0 - 0.045 Pa で変化させた。Fe-Co-V の組成分析には EPMA、磁気特性評価には VSM、結晶構造解析には In-plane XRD および Out-of-plane XRD を用いた。

実験結果

Fig.1(a)は、FeCo に対して V を 10 at.% (白丸) および 20 at.% (黒丸) 添加した試料の c/a の N 添加量依存性である。V = 20 at.% では、N 添加量に対して c/a が連続的に変化し、V = 10 at.% では得られなかった $c/a = 1.2$ が得られている。Fig.1.(b)は、 K_u と c/a の相関図である。 K_u の最大値は V = 20 at.% において得られている。ここには示していないが、磁化曲線を見ると N = 0.015 Pa で固定した場合、V = 10 at.% よりも V = 20 at.% の方が磁化が 20 % 減少するが、垂直磁化膜になっていた。次いで Fig.1.(b)をみると、 K_u の最大値は、V = 10 % でも 20 % でも同様に $c/a = 1.1$ 付近で得られている。この傾向は理論計算結果と矛盾しない。以上の結果より、FeCo への置換型元素 V の添加量は、10 at.% よりも 20 at.% のほうが好適であることがわかる。

参考文献

[1] T. Hasegawa et al., Sci. Rep. 9 (2019) 5248.

この研究は NEDO 未踏チャレンジ 2050、科研費基盤 B (JP20H02832) の支援を受けた。

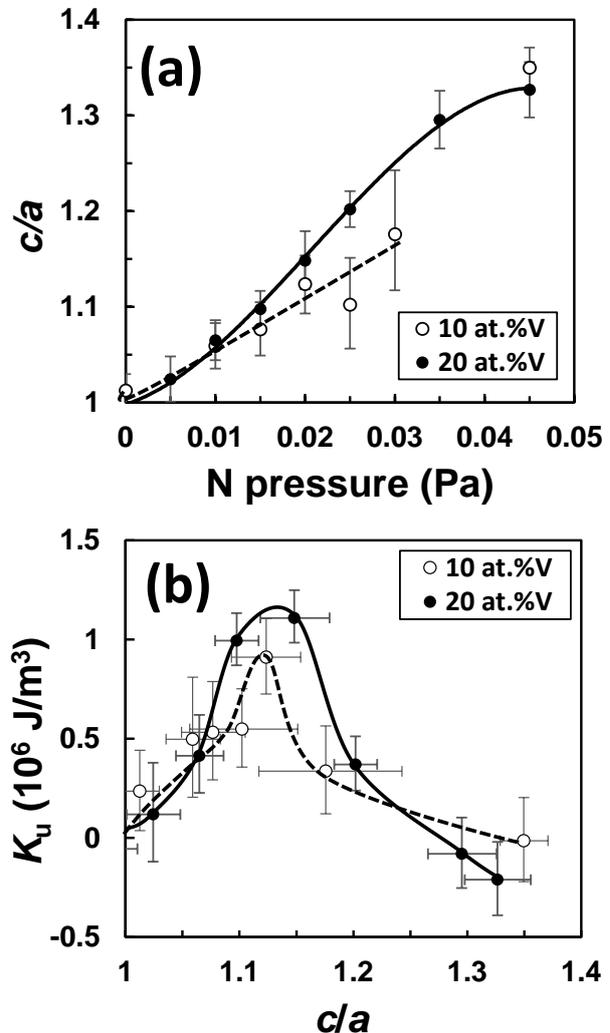


Figure 1. (a) N pressure-dependence of c/a , and (b) K_u as a function of c/a of the STO (100) sub./ $(\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_{0.9}\text{V}_{0.1})_{100-x}\text{N}_x$ ($t = 20 \text{ nm}$) (○) and STO (100) sub./ $(\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_{0.8}\text{V}_{0.2})_{100-x}\text{N}_x$ (●) continuous films.

Massive transformation in FeNi nanopowders with nanotwin-assisted nitridation

Jian Wang¹, Yusuke Hirayama¹, Zheng Liu¹, Kazuyuki Suzuki¹, Wataru Yamaguchi¹, Kwangjae Park¹, Kenta Takagi¹, Hiroaki Kura², Eiji Watanabe² and Kimihiro Ozaki¹
¹ AIST. ² DENSO CORP.

L1₀-ordered FeNi alloy (tetrataenite), a promising candidate for rare-earth-free and low-cost permanent magnet applications, is attracting increasing attention from academic and industrial communities. Highly ordered single-phase L1₀-FeNi is difficult to synthesis efficiently because of its low chemical order-disorder transition temperature (200~320 °C). A non-equilibrium synthetic route utilizing a nitrogen topotactic reaction has been considered a valid approach, [1] although the phase transformation mechanism is currently unknown. Recently, we investigated the basis of this reaction, namely the formation mechanism of the tetragonal FeNiN precursor phase during the nitridation of FeNi nanopowders.[2]

The FeNi nanopowders (NPs) were firstly prepared by a low oxygen induction thermal plasma system. Then the as ITP processed FeNi NPs were first reduced in an electric furnace at 400 °C under a hydrogen gas flow at 1 L/min for 2 h. Then, the processed NPs were nitrided at 350 °C under a large amount of ammonia gas flowing at a rate of 2 L/min for 16 h. To prevent oxidation, most of the experiments and evaluations in this work were carried out under a low oxygen atmosphere (glovebox) without exposure to the atmosphere, except when briefly removing the samples for characterisation by SEM and TEM.

Detailed microstructure indicates intensive nanotwins in the nitrided FeNi NPs which results in a distorted lattice and Fe segregates at the TBs, which may provide preferential nucleation sites for the FeNiN product phase in the Fe₂Ni₂N parent matrix. Furthermore, detailed microstructure analysis revealed that the growth of the FeNiN product phase followed a massive transformation with high-index irrational orientation relationships and ledgewise growth motion characteristics detected at the FeNiN/Fe₂Ni₂N migrating interface. Based on the results, we delineated a potential formation route of the FeNiN precursor phase in the FeNi NPs during nitridation, which could contribute to the basic understanding of this mechanism and promote further optimisation of the synthesis of bulk ordered FeNi alloys for various magnetic applications. This work was partially supported by the project “Development of Magnetic Material Technology for High-Efficiency Motors” commissioned by Japan’s New Energy and Industrial Technology Development Organization (NEDO).

Reference

- 1) Goto, S. *et al.* Synthesis of single-phase L1₀-FeNi magnet powder by nitrogen insertion and topotactic extraction. *Sci Rep* 7, 13216, doi:10.1038/s41598-017-13562-2 (2017).
- 2) Wang, J., Hirayama, Y., Liu, Z. *et al.* Massive transformation in FeNi nanopowders with nanotwin-assisted nitridation. *Sci Rep* 12, 3679, <https://doi.org/10.1038/s41598-022-07479-8> (2022).

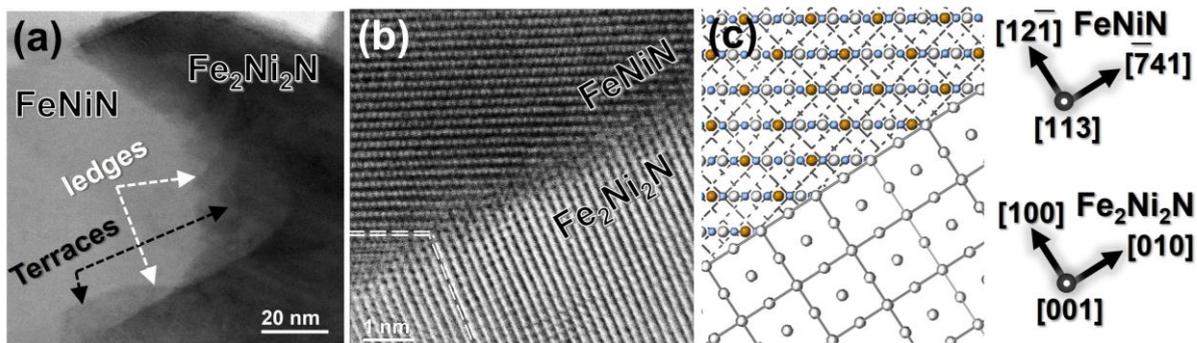


Fig. 1. ABF-STEM images of nitrided FeNi NPs with terraces/ledges demonstrating the ledgewise growth motion of the FeNiN/Fe₂Ni₂N interface (a & b). (c) schematizes the representative high-index orientation relationship present in (b).[2]

複合配向化した微粒子コンポジット材の磁気特性に関する研究

若林 和志、村田 啓太、宮崎 孝道、増本 博、遠藤 恭 (東北大学)

Study on magnetic properties of mixed and oriented soft magnetic particles composites

Kazushi Wakabayashi, Keita Murata, Takamichi Miyazaki, Hiroshi Masumoto, Yasushi Endo
(Tohoku Univ.)

はじめに

次世代パワーエレクトロニクス技術の一つであるトランスやインダクタといった受動素子では、既存の軟磁性材料に替わる新たな材料が必要とされている。軟磁性微粒子コンポジット材は、高飽和磁束密度かつ低損失といった特長を有することから、これらの素子を構成する軟磁性材料の有力な候補である。その一方で、充填率に限界があり、透磁率が低いことが課題である。この課題を解決するためには、ミクロンおよびサブミクロン径の異なる二種類以上の磁性微粒子を複合配向化させて反磁界の低減による透磁率の向上が重要である。我々はこれまでに、1 μm 径の Fe 微粒子と 10 nm 径の Fe_3O_4 微粒子を複合配向させて透磁率を向上させることに成功した^[1]。また、二種類の微粒子における飽和磁束密度の差が大きく、初透磁率領域のみしか適応できないことを明確にした。本研究では、サブミクロン径のアモルファス Fe-B 微粒子と、さまざまな飽和磁化 σ_s を有するミクロン径の軟磁性微粒子を複合して磁界配向させたコンポジット材を合成し、それらの磁気特性について検討した。

実験方法

合成した試料は、水溶液還元法で合成したサブミクロン径のアモルファス Fe-B 微粒子^[2](実測値 σ_s : 140 emu/g)とミクロン径微粒子(Fe, FeNi, Fe-Si-Cr-B, Fe-Al-Si, 実測値 σ_s : 220, 149, 145, 115 emu/g)の重量比を変えた状態で 30 vol.%として樹脂中に分散させ、最大磁界 3 kOe の電磁石を用いて配向処理をしたコンポジット材である。

合成した試料の形状評価には SEM を、また、それらの磁気特性評価には VSM, フェライトヨークを利用した透磁率測定法を用いた。

実験結果

図 1 は重量比 4 : 1 で複合配向化させた Fe-Al-Si/Fe-B 複合微粒子コンポジット材の表面形状像である。Fe-Al-Si 微粒子の隙間に Fe-B 微粒子が詰められている様子が観察された。この傾向は他のコンポジット材でも確認された。これらの結果は、ミクロン径微粒子の σ_s によらず、Fe-B 微粒子がミクロン径微粒子からの漏れ磁束によって配向したものと考えられる。

図 2 は Fe-Al-Si/Fe-B 複合微粒子コンポジット材における比透磁率 μ_r の重量比による変化である。 μ_r は、Fe-B 微粒子の割合が増加するとともに減少した。これは Fe-Al-Si 微粒子に比べて Fe-B 微粒子の透磁率が低いことによるものと考えられる。また、各重量比での磁界配向処理の有無による差に着目すると、いずれも磁界配向処理を行うと μ_r の増加した。なかでも、Fe-Si-Al と Fe-B の重量比が 4 : 1 のとき、 μ_r は 1.5 倍程度に増大した。これらの結果は Fe-B と他の微粒子からなるコンポジット材でも同様の傾向となった。

以上の結果から、ミクロン径微粒子に最適な比率で Fe-B 微粒子との複合化を試みると、ミクロン径微粒子の反磁界を効率的に低減し、高透磁率化させることが可能であることを示唆している。

謝辞

本研究の一部は、文部科学省革新的パワーエレクトロニクス創出基盤技術研究開発事業 JP00977 のもとで行われました。また、東北大学国際集積エレクトロニクス開発センター(CIES)および東北大学先端スピントロニクス研究開発センター(CSIS)の支援のもとで行われました。

参考文献

- [1] Y. Shimada et al., J. Appl. Phys. 101, 09M505(2007).
[2] K. Murata et al., T. Magn. Soc. Jpn. (Special Issues), 5, 1-5 (2021)

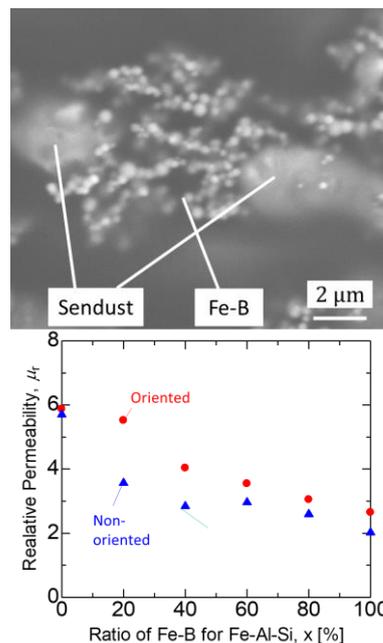


図 2. Fe-Al-Si/Fe-B 複合微粒子コンポジット材における μ_r の重量比による変化

新幹線電装品コンバータ・インバータシステム用

圧粉磁心リアクトルの開発

金谷 孝紀, 佐藤 敏郎, 曾根原誠 (信州大学)

Development of pressed magnetic core reactor
for converter/inverter system for shinkansen electric equipment
Takanori Kanaya, Toshiro Sato, Makoto Sonehara (Shinshu University)

はじめに

新幹線電装品用直流 100 V 入力-200 V 出力昇圧コンバータ/60 Hz・1.5 kW 出力インバータシステムへの適用を目的に、鉄系アモルファス合金球形粉末を用いた圧粉磁心、ならびに鉄系ナノ結晶合金球形粉末を用いた圧粉磁心を試作し、これらを用いたプレーナリアクトルのコンバータ/インバータシステムへの実装評価を進めている。Table.1 および Table.2 は昇圧コンバータ/インバータシステムの開発仕様を示したものであり、1 MHz スイッチング昇圧コンバータ用リアクトルおよび 700 kHz-PWM インバータ用出力 LC フィルタ用リアクトルの試作とコンバータ/インバータシステムへの実装評価の結果を報告する。

圧粉磁心

Fig.1 は鉄系アモルファス合金球形粉末を用いた圧粉磁心の比透磁率と鉄損の周波数特性の一例を示したものであり、比透磁率は約 36 で 5MHz までほぼ一定であった。鉄系ナノ結晶合金球形粉末を用いた圧粉磁心の磁気特性については学術講演会で報告する。

コンバータリアクトルの磁束密度分布の一例

Fig.2 に昇圧コンバータ用プレーナリアクトルの磁束密度分布の一例を示す。コンバータの定格直流電流と三角波リップル電流が重畳した最大ピーク時の磁束密度は、圧粉磁心の飽和磁束密度 (0.93 T) に対し約 10% のおよそ 100 mT 程度であり、コンバータの定格動作時でも磁心の磁気飽和の影響はほとんどない。学術講演会では、鉄系アモルファスと鉄系ナノ結晶の 2 種類の合金球形粉末を用いた圧粉磁心のリアクトルの試作・評価を行った結果の比較と、コンバータ・インバータシステムに適用した結果を報告する。

Table.1 Specifications of GaN-FET boost converter

Input voltage	DC100 V
Output voltage・current	DC200 V・7.5 A
Switching frequency	1 MHz
DC choke reactor	10.9 μ H

Table.2 Specifications of GaN-FET PWM inverter

Input voltage	DC200 V
Output voltage	AC100 V (60 Hz)・15 A
Carrier frequency	700 kHz
Reactor for LC filter	27 μ H

[1] 藤倉律也, 他, 電学マグネティックス研資, MAG19-068, 2019 年 8 月.

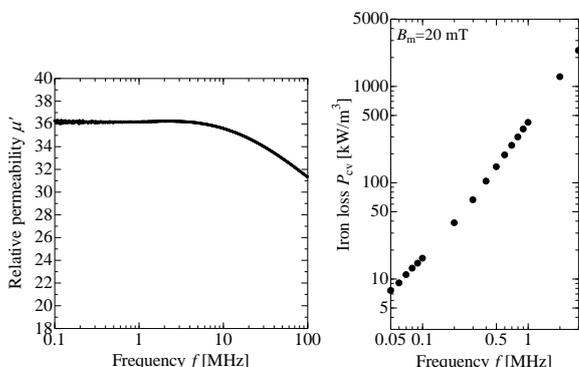


Fig.1 Frequency versus relative permeability and iron loss of pressed magnetic powder core using two kinds of Fe-based amorphous sphere powder with D_{50} of 3.5 μ m and 10 μ m.

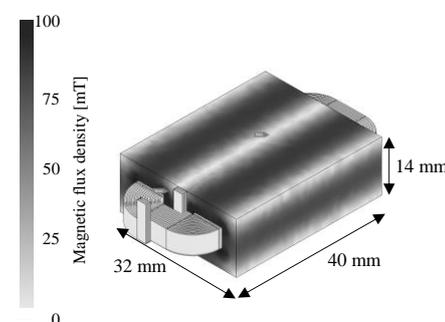


Fig.2 Magnetic flux density distribution of planer reactor for 100 V input/200 V-1.5 kW output, 1 MHz switching boost converter.

2 コイル法と共振法の併用によるセンダスト圧粉コアのブロードバンド鉄損測定

小野 暢久¹、上原 裕二²、遠藤 恭^{3,4}、吉田 栄吉¹、及川 英彦⁵、菊池 伸明¹、岡本 聡^{1,4,6}

(¹東北大多元研、²磁気デバイス研究所、³東北大院工、⁴東北大 CSIS、⁵トーキン、⁶NIMS)

Broadband iron loss measurements in a Sendust dust core using 2-coil and capacitance cancellation methods

N. Ono¹, Y. Uehara², Y. Endo^{3,4}, S. Yoshida¹, H. Oikawa⁵, N. Kikuchi¹, S. Okamoto^{1,4,6}

(¹IMRAM, Tohoku Univ., ²Magnetic Device Laboratory, ³Graduate School of Eng. Tohoku Univ.,

⁴CSIS, Tohoku Univ., ⁵TOKIN, ⁶NIMS)

はじめに

高効率パワーエレクトロニクスの実現に向けて、磁性素子の低損失化への要求が高まっている。そのためには鉄損起源を明らかにすることが重要であるが、広く用いられている Steinmetz 式による解析は現象論的な解釈に留まっている。この課題に対して、Fiorillo らはフェライトコアに対して磁化過程に基づく鉄損要因解析手法を提案しており[1]、我々は本手法を圧粉コア等の金属系材料への拡張を検討している。本手法の特徴はブロードバンド鉄損測定を行う点にあるが、標準的な鉄損測定である 2 コイル法では数 MHz が上限である[2]。本研究では、2 コイル法と共振法[3]を組み合わせることで圧粉コアのブロードバンド鉄損測定を行った。さらにコア厚みの薄い試料も併用し、100 Hz ~ 55 MHz の広い帯域で高精度な鉄損測定を実施した結果を報告する。

実験方法

試料はトロイダル形状のセンダスト圧粉磁性コア(外径 13 mm、内径 8 mm、粉末粒径 11.2 μm) であり、厚みは 5 mm ならびに 1 mm の 2 種類を用いた。2 コイル法の測定は BH アナライザ(IWATSU SY-8218)を使用した。共振法の測定系については文献[4]を参考されたい。

実験結果

2 種類の異なる測定手法での鉄損測定データの整合性を得るため、コイルの結合係数は 0.85 以上であることを確認し、さらにインピーダンスや透磁率なども一致を確認しながらデータ取得を行った。そのようにして測定した 2 コイル法ならびに共振法のセンダスト圧粉コアの各励磁振幅における鉄損の周波数依存性を Fig.1 に示す。塗りつぶしならびに白抜きマークは 2 コイル法、共振法の結果であり、さらに黒マークならびに赤マークが 5 mm、1 mm 厚試料の結果である。2 コイル法と共振法それぞれの測定結果が良好に接続しており、ブロードバンドでの鉄損測定が実現できたことが分かる。さらに 1 mm 厚試料では自己共振周波数が高周波側にシフトするため、測定周波数上限が 55 MHz にまで高められる。本測定結果より、今回用いたセンダスト圧粉コアでは 1 MHz 付近から鉄損が顕著に増加しており、鉄損要因が変化していると予想される。今後、本ブロードバンド鉄損計測を各種コア材料に適用し、鉄損要因解析を進める予定である。

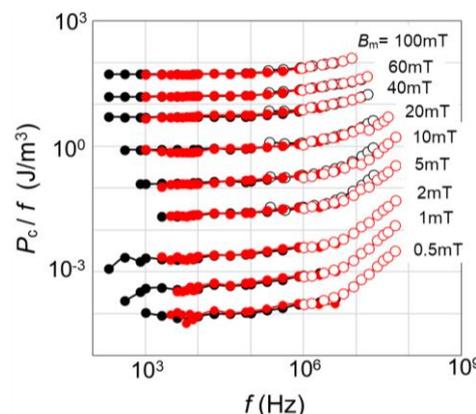


Fig.1 Broad band iron loss measurements of a Sendust dust core by means of two-coil (solid marks) and capacitive cancellation methods (open marks). Black and red marks are the 5 mm and 1 mm-thick cores, respectively.

謝辞

本研究は文科省革新的パワーエレクトロニクス創出基盤技術研究開発事業 JPJ009777 の支援の下で行われた。

参考文献

- 1) C. Beatrice et al., J. Magn. Magn. Mater. **429**, 129 (2017)
- 2) F. Dong Tan et al., IEEE Trans. Power Electro. **10**, 124 (1995)
- 3) M. Mu et al., IEEE Trans. Power Electro. **29**, 4374 (2014)
- 4) 上原 裕二 ほか：, 電気学会静止器・回転機合同研究会資料, SA-22-012/RM-22-012(2022)

熱処理を施した高純度 Fe 薄帯における構造と磁気特性

馬小童¹, 梅津理恵¹, 宮崎孝道¹, 三上慎太郎², 平城智博², 遠藤恭¹ (¹東北大, ²東邦亜鉛(株))

Study on Structure and Magnetic Properties of Pure Fe Ribbons with Annealing Treatment

X. Ma¹, R. Umetsu¹, T. Miyazaki¹, S. Mikami², T. Hiraki², Y. Endo¹ (¹Tohoku Univ., ²TOHO ZINC Co., Ltd.)

はじめに

近年、エネルギー高効率パワーエレクトロニクスデバイスへの展開を目指し、デバイスの一部を担う軟磁性材料の開発が盛んに行われている。なかでも、軟磁性アモルファス薄帯は、高飽和磁束密度かつ低損失といった優れた特性を有することから、有力な材料候補の一つとされている。その一方で、今後の更なる省エネ化・高周波化を目指す上では、従来の薄帯では特性を満足できず、新規軟磁性薄帯の開発が必要不可欠である。我々のグループでは、これまでに高飽和磁束密度を有する高純度 Fe 薄帯に着目し、1273 K 以上の高い熱処理温度で結晶配向が変化し軟磁気特性が改善することを報告した[1]。本研究では、より低い熱処理温度範囲での高純度 Fe 薄帯における磁気特性の熱処理による効果を明確にするため、それらの熱処理前後での構造と磁気特性について検討した。

実験方法

作製した試料は熱処理を施した高純度 Fe 薄帯である。薄帯厚は 5, 10, 20, 30, 40, 50 μm である。また、熱処理条件は真空中で 873, 973, 1073, 1173 K の一定温度とし、保持時間は 3 時間とした。

作製した試料の結晶構造評価には XRD 及び EBSD。また、それらの磁気特性の評価には VSM, フェライトヨークによる複素透磁率法、BH アナライザ、自作の磁歪測定装置を用いた。

結果および考察

逆極点図マップ(図 1)に示すように、圧延組織の優先配向は熱処理を施すと(100)–(111)配向から(111)優先配向へと変化した。また、結晶粒径は熱処理により粗大化した。

図 2 は熱処理温度の異なる 20 μm 厚の高純度 Fe 薄帯における複素透磁率の周波数特性である。透磁率は熱処理温度により変化した。すなわち、熱処理温度増加にともない透磁率が増加し、より低周波帯から減少した。この挙動は熱処理温度の増加にともない結晶粒が粗大化し、渦損が増加したことによる。

コアロス(図 3)は熱処理の有無に関係なく周波数の増加にともない増加した。また、コアロス値は熱処理を施すと減少した。この原因は圧延による歪みの緩和によるものと考えられる。これらの結果から、低い温度での熱処理においても高純度 Fe 薄帯の軟磁気特性が向上することがわかった。

謝辞

本研究の一部は、文科省革新的パワーエレクトロニクス創出基盤技術研究開発事業 JPJ009777, 東北大学 CSIS および CIES の支援のもとで行われた。

参考文献

[1] Y.Endo, et al., DIGESTS of 45th Conf. Magn. 177(2021)

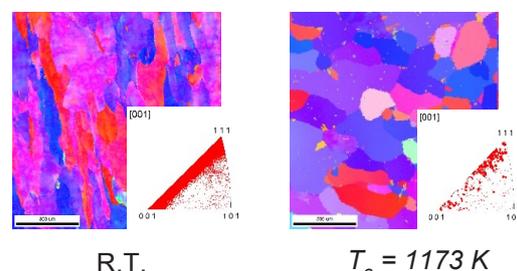


FIG. 1. Inverse pole figure map of 20- μm thick mairon UHP ribbons before and after annealing.

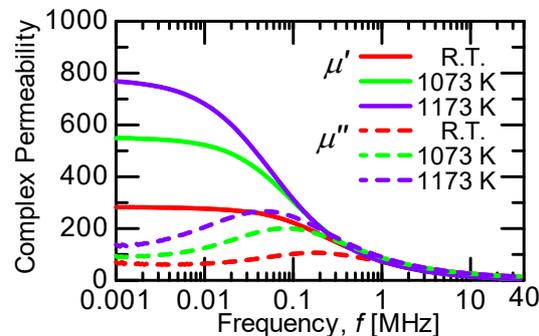


FIG. 2. Frequency dependence of complex permeability for 20- μm thick Fe ribbons with various annealing temp..

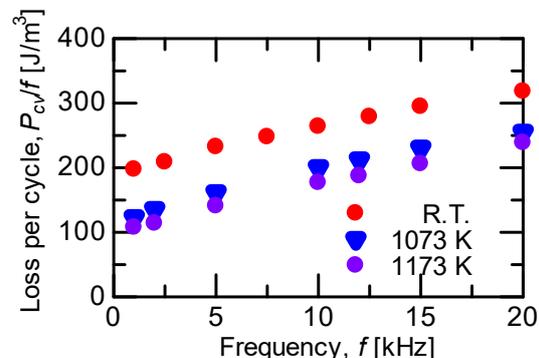


FIG. 3. Frequency dependence of core loss per cycle at $B_m = 0.5$ T for 20- μm thick Fe ribbons with or without annealing.

反応性対向ターゲット式スパッタ法で作製した CoZrO 薄膜における酸素導入量が磁気特性に与える影響

金子忠幸, 仁田帆南, 高村陽太, 中川茂樹
(東京工業大学)

Effects of oxygen gas flow on magnetic property of CoZrO films formed by reactive facing target sputtering

T. Kaneko, H. Nitta, Y. Takamura, S. Nakagawa
(Tokyo Institute of Technology)

はじめに

強磁性微粒子が酸化物マトリクス内に析出したナノグラニューラー構造を作る薄膜は、比較的高い飽和磁化と、高い電気抵抗率が得られ、パワーエレクトロニクス回路用の高周波磁性材料として有望である。CoZrO 薄膜は低磁歪特性に基づく軟磁気特性が得られることが知られており^{1,2)}、これに高い一軸磁気異方性を付与することができれば、さらなる低損失な高周波動作インダクタ用のコア材が実現できる。対向ターゲット式スパッタリング法(FTS)は、スパッタ粒子の斜方入射により CoZrO 薄膜に面内一軸磁気異方性を付与できる³⁾。本研究では、成膜時の酸素流量が膜構造や磁気異方性に与える影響について考察した。

実験方法

Co ターゲットと Zr チップによる複合ターゲットを用いて、FTS により、ガラス基板上に CoZrO 薄膜を室温で成膜した。Zr チップ数により Co/Zr 組成比が 85/15 および 82/18 となるように調整した。成膜ガスには Ar と O₂ の混合ガスを用い、全ガス圧は 0.5 Pa、酸素流量は 0 - 0.9 sccm の範囲で変化させた。

実験結果

今回の酸素流量の範囲でアモルファス構造であることを X 線回折により確認した。

Fig. 1 に CoZrO 薄膜(膜厚 90 nm)の電気抵抗率 ρ と飽和磁化 I_s の酸素流量依存性を示す。どちらの組成でも酸素導入により I_s は上昇し始める。これは Co に固溶していた Zr が選択的に酸化され、Co-Zr 合金粒の組成が Co リッチに変化する事によるものと考えられる。Co/Zr 比が 85/15 の膜で酸素導入量が 0.7 sccm 以上で減少するのは、Co 自身の酸化が顕著となることによる I_s の減少と考えられる。 ρ はどちらの組成でも酸素導入による Zr 酸化物の形成により増加する。Co/Zr 比が 85/15 の膜では酸素流量が 0.4 sccm 程度で酸素導入量の増加により ρ が上昇し、飽和磁化が極大を示す酸素範囲と一致する。Co の酸化が顕著になると考えられる 0.9 sccm 以上では急激に ρ が上昇する。Zr 組成が高い 82/18 の場合ではその変化が緩やかに表れているといえる。

Fig.2 は、Co/Zr 比が 82/18 の CoZrO 薄膜の異方性磁界 H_k の酸素流量依存性である。酸素流量 0.5 sccm 程度で極大を取る傾向が見え、その磁化特性を図中に示す。酸素導入によって ρ の高い状態で H_k の制御ができる可能性があると考えられる。

謝辞

4 探針法による電気抵抗率は東京工業大学の山田・宮島研究室のご協力で測定した。本研究の一部は、パワーアカデミーの支援を受けて実施した。

参考文献

- 1) S. Ohnuma et al., J. Magn. Magn. Mater., **310**, 2503 (2007).
- 2) Y. Sun et al., IEEE, Trans. Magn., **43**, 4060 (2007).
- 3) K. Kawahara et al., 日本磁気学会学術講演会, o2pC-4 (2021).

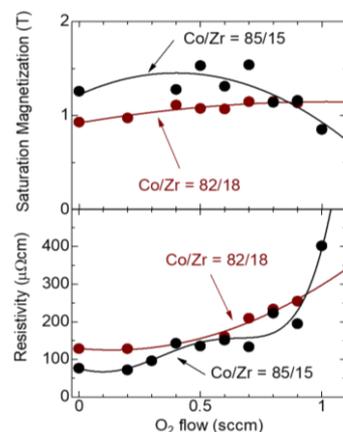


Fig. 1 I_s and ρ for CoZrO thin films as a function of oxygen flow.

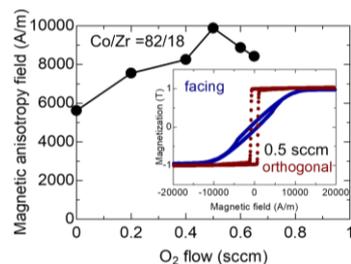


Fig. 2 O₂ flow dependence on H_k of CoZrO thin films.

Development of Fe₂B powders as noise suppression materials for 5G communications

H. Sepehri-Amin¹, P. Tozman¹, Xin Tang¹, S. Tamaru², T. Igarashi³, S. Okamoto⁴, T. Ohkubo¹ and K. Hono¹

¹ Research Center for Magnetic and Spintronic Materials, National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan

² Research Center for Emerging Computing Technologies (RCECT), National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), Tsukuba, Japan

³ TOKIN Corporation, 7-1, Koriyama 6-chome, Taihaku-ku, Sendai, Miyagi 982-8510, Japan

⁴ Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials (IMRAM), Tohoku University, 2-1-1 Katahira, Aoba-Ku, Sendai 980-8577, Japan

The role of high frequency electronic devices in the world is increasing due to the emergence of information societies and the prospects toward further implementation of artificial intelligence and use of big data. However, evolution of high frequency electronic devices accompanies with a rise of electromagnetic (EM) noises which should be suppressed. One way to overcome this problem is the development of noise suppression materials which can absorb the EM noises above 20 GHz range. Although various ferromagnetic materials have been used as noise suppression materials for different frequency regions [1-4], there is no practical materials to suppress the noises at the frequency range of above 20 GHz required for 5G communications. In this work, we developed Fe₂B ferromagnetic powders that can suppress EM noise at the frequency range of 10-35 GHz.

Fe₂B alloy ingot was prepared by induction melting. Spherical shaped powders were prepared by the jet-milling process. The size of the particles varies depending on grinding gasses such as N₂ and He with different inlet pressure during jet-milling. Based on XRD analysis, the main phase in the as-cast and after jet-milling process was found to have the CuAl₂ type crystal structure. Figure 1 (a) shows secondary electron (SE)-SEM image of the jet-milled powders. The average particle size of the powder is ~3 μm. Figure 1(b) shows bright-field (BF)-TEM image obtained from a single jet-milled Fe₂B particle indicating that the powders are single crystalline. Based on XRD on magnetically aligned particles and M-H curve

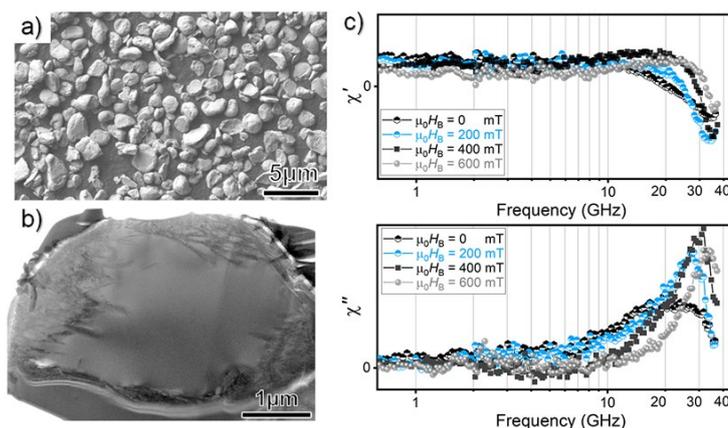


Figure 1: (a) SE- SEM showing morphology of the developed jet-milled Fe₂B powders. (b) BF-TEM image obtained from inside of a single Fe₂B particle showing single crystalline nature of the particle. (c) Real (χ') and imaginary (χ'') part of the magnetic susceptibility under 0, 200, 400, and 600 mT bias magnetic field.

measurements, we have found the developed Fe₂B powders show basal anisotropy. The single crystalline powders were magnetically aligned and fixed in an epoxy resin. The magnetic susceptibility of the aligned powders was measured using transformer coupled permeameter (TC-Perm) [5]. Figure 1(c) shows real (χ') and imaginary (χ'') part of the magnetic susceptibility as a function of frequency under bias magnetic field ($\mu_0 H_B$) of 0-600 mT. The developed Fe₂B powder give a broad ferromagnetic resonance peak covering the frequency range of 12-35 GHz under $\mu_0 H_B = 0$ T. Upon increasing $\mu_0 H_B$, FMR peak shifts to a larger frequency range. We will discuss how selection of appropriate particle size and their single crystallinity are important factors to realize FMR peaks above 20 GHz desired for EM noise suppression for 5G communications.

Acknowledgement: This work was in-part supported by MIC/SCOPE grant number 195003002.

References: [1] H. Y. Yang *et al.* J. Alloys Compd. 493 (2010) 549-552. [2] C. Yu *et al.* Dalton Trans. 41 (2012) 723-726. [3] X. Liu *et al.* J. All. Comp. 765 (2018) 943-650. [4] M. Green, *et al.* Mater. Chem. Front. 2 (2018) 1119. [5] S. Tamaru *et al.* J. Magn. Magn. Mater. 501 (2020) 166434.

反応性 DC および RF スパッタリング法により単結晶基板上に形成した Fe-N 薄膜における γ' 相の形成

前田悠良¹・今村光佑¹・大竹充¹・磯上慎二²・二本正昭¹・川井哲郎¹・桐野文良³・稲葉信幸⁴
(¹横浜国大, ²物材機構, ³東京藝大, ⁴山形大)

γ' Phase Formation in Fe-N Thin Films Prepared on Single-Crystal Substrates
by Reactive DC and RF Sputtering

Yura Maeda¹, Kosuke Imamura¹, Mitsuru Ohtake¹, Shinji Isogami²,
Masaaki Futamoto¹, Tetsuroh Kawai¹, Fumiyoshi Kirino³, Nobuyuki Inaba⁴
(¹Yokohama Nat. Univ., ²NIMS, ³Tokyo Univ. Arts, ⁴Yamagata Univ.)

はじめに γ' -Fe₄N 相は、スピン偏極率が大きいことからスピントロニクス応用を目的に注目されている。これまで、Fe₄N 薄膜の形成には、MBE 法に加えて、反応性スパッタリング法も活用されている。反応性スパッタリング法による窒化物薄膜の作製では、DC と RF の放電方式の違いにより結晶性が変化することが報告されており¹⁻³、窒化鉄の場合においても相形成に影響を及ぼすことが考えられる。これまで、DC および RF の両方式により Fe₄N スパッタ膜が形成されているが、同様な実験条件下で放電方式を比較した報告は殆ど無い。本研究では、DC と RF の 2 つのスパッタリング法で、製膜速度が同じになるように投入電力を調整した上で、MgO および SrTiO₃(001) 単結晶基板上に Fe-N 膜の形成を行い、放電方式の違いが相形成、構造、磁気特性に及ぼす影響を詳細に調べた。

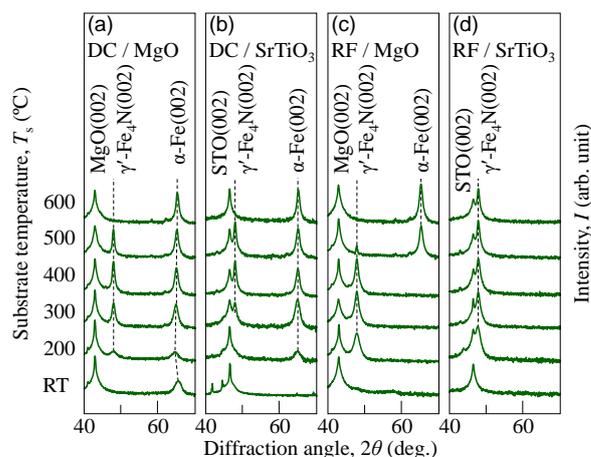


Fig. 1 XRD patterns measured for Fe-N films prepared on (a, c) MgO(001) and (b, d) SrTiO₃(001) substrates by (a, b) DC and (c, d) RF sputtering.

実験方法 膜形成には DC と RF 電源の切り替えが可能な超高真空マグネトロン・スパッタリング装置を用いた。室温から 600 °C の間の一定温度で MgO および SrTiO₃(001) 基板上に 40 nm 厚の Fe-N 膜を形成した。Ar と N₂ の混合ガスの全圧に対する N₂ 分圧比は 5% とした。構造評価には RHEED および XRD, 組成評価には XPS, 磁化曲線測定には VSM を用いた。

実験結果 基板温度 200 °C 以上において、エピタキシャル膜が得られた。Fig. 1 に XRD パターンを示す。2 θ = 48° 付近に γ' 相の形成に対応する Fe₄N(002) 反射, 2 θ = 65° 付近に α 相の形成に対応する Fe(002) 反射が現れている。これらのデータから、 γ' と α 相の体積比を算出した。Fig. 2 に体積比の基板温度依存性を示す。MgO および SrTiO₃ のいずれの基板上に形成した場合においても、DC よりも、プラズマ密度が高い RF を用いることにより、 γ' 相の形成が促進されていることが分かる。更に、MgO 基板よりも格子ミスマッチが小さい SrTiO₃ 基板を用いることで、 γ' 相は更に安定化させられることが分かる。当日は詳細構造と磁気特性の関係についても議論する。

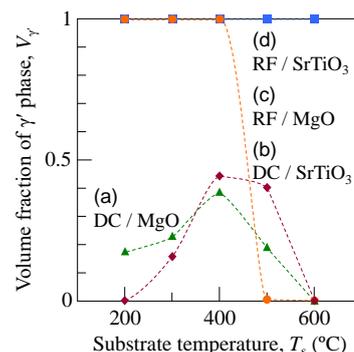


Fig. 2 Volume fractions of γ' phase in Fe-N films prepared on (a, c) MgO and (b, d) SrTiO₃ substrates by (a, b) DC and (c, d) RF sputtering.

- 1) S. Tan, X. Zhang, X. Wu, F. Fang, and J. Jiang: *Thin Solid Films*, **519**, 2116 (2011).
- 2) J. Hahn, M. Friedrich, R. Pintaske, M. Schaller, N. Kahl, D. D. T. Zahn, and F. Richter: *Diamond Relat. Mater.*, **5**, 1103 (1996).
- 3) A. Schütze, K. Bewilogua, H. Lüthje, S. Kouptsidis, and S. Jäger: *Surf. Coat. Technol.*, **74-75**, 717 (1995).

MgO(110)および(111)基板上における γ' -Fe₄N 薄膜のエピタキシャル成長

今村光佑¹・前田悠良¹・大竹充¹・磯上慎二²・二本正昭¹・川井哲郎¹・桐野文良³・稲葉信幸⁴
(¹横浜国大, ²物材機構, ³東京藝大, ⁴山形大)

Epitaxial Growth of γ' -Fe₄N Thin Films on MgO Substrates of (110) and (111) Orientations

Kosuke Imamura¹, Yura Maeda¹, Mitsuru Ohtake¹, Shinji Isogami²

Masaaki Futamoto¹, Tetsuroh Kawai¹, Fumiyoshi Kirino³ and Nobuyuki Inaba⁴

(¹Yokohama Nat. Univ., ²NIMS, ³Tokyo Univ. Arts, ⁴Yamagata Univ.)

はじめに γ' -Fe₄N は, Fe の fcc 格子の体心位置に N が侵入した構造をとる軟質磁性体で, 負に大きなスピン偏極率を持つことから, 近年はスピントロニクス応用の観点で注目される材料である¹⁻⁴). 最近, 我々は Fe-N 膜を, N₂ 分圧比および基板温度を軸とした広範なスパッタリング条件のもとで MgO(001)基板上に形成して構造を詳細に調べ, γ 相がエピタキシャル成長する条件をまとめた⁴). 一方で, 薄膜を用いて磁気異方性を考慮した物性評価を行う際には, 形状に起因する面直方向の反磁界が妨げとなるため, 面方位を変えて単結晶膜を作製することも重要となる. そこで本研究では, Fe-N 膜を MgO(110)および(111)上に形成する際の基板温度が γ 相のエピタキシャル成長と構造に与える影響について系統的に調べた.

実験方法 超高真空 RF マグネトロン・スパッタリング装置を用いて, Ar と N₂ の混合ガス (全圧 0.67 Pa, N₂ 分圧比 5%) 下で Fe ターゲットをスパッタすることにより, 40 nm 厚の Fe-N 膜を MgO(110)および(111)基板上に形成した. このとき, 基板温度を RT~600 °C の間で変化させた. 構造評価には RHEED, XRD, XPS, AFM を, 磁気特性評価には VSM を用いた.

実験結果 MgO(110)および(111)基板上に形成した Fe-N 膜の RHEED パターンを Fig. 1(a)および(b)にそれぞれ示す. いずれの基板上に 200 °C 以下で形成した膜に対してはリング状の回折パターンが認められ, 多結晶膜となっていることが分かる. 低温では Fe あるいは N の基板上における表面拡散が不十分であり, エピタキシャル成長が起きていない. MgO(110)基板上に 300~400 °C, MgO(111)基板上に 300~500 °C で形成した膜の RHEED パターンは Fig. 2(a)および(b)の模式図に示す γ' -Fe₄N 相からの回折パターンとそれぞれ一致しており, γ' 相のエピタキシャル成長はこの温度範囲において起こることが分かる. MgO(110)基板上では膜と基板が同じ方位関係の γ' -Fe₄N(110)[001] \parallel MgO(110)[001], MgO(111)基板上では双晶を伴って γ' -Fe₄N(111)[$\bar{1}$ 10]_A, γ' -Fe₄N(111)[110]_B \parallel MgO(111)[110]の方位関係となっている. そして, MgO(110)基板上では 500 °C 以上で, MgO(111)基板上では 600 °C 以上で形成した膜の回折パターンは Fig. 2(c)および(d)に示す α -Fe 相からのパターンと一致しており, 高温では N の脱離によって α 相がエピタキシャル成長したと考えられる. また, 基板面方位によって, N 脱離の臨界温度が異なっている. 結晶表面の格子間隔や表面自由エネルギーの違いが N の脱離反応に影響を及ぼしていることが考えられ, (110)に比べて(111)結晶の方が N が脱離しにくいことが示唆される. 当日は, XRD による詳細な膜構造の解析に加え, 表面形態および磁気特性についても報告する.

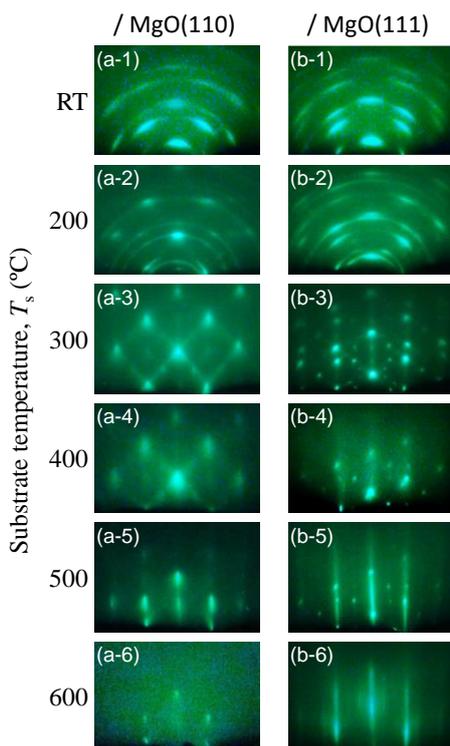


Fig. 1 RHEED patterns observed for Fe-N films formed on (a) MgO(110) and (b) MgO(111) substrates at (a-1,b-1) RT, (a-2,b-2) 200, (a-3,b-3) 300, (a-4,b-4) 400, (a-5,b-5) 500, (a-6,b-6) 600 °C.

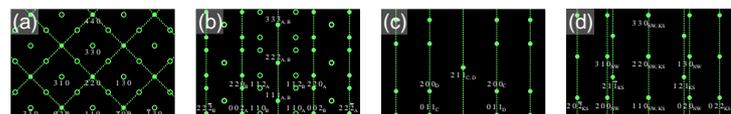


Fig. 2 Schematic diagrams of RHEED patterns simulated for epitaxial films with orientation relationships of (a) γ' -Fe₄N(110)[001] \parallel MgO(110)[001], (b) γ' -Fe₄N(111)[$\bar{1}$ 10]_A, γ' -Fe₄N(111)[110]_B \parallel MgO(111)[110], (c) α -Fe(211)[011]_C, α -Fe(211)[011]_D \parallel MgO(110)[001], and (d) α -Fe(110)[111] \parallel MgO(111)[110] (NW) and α -Fe(110)[001] \parallel MgO(111)[110] (KS).

- 1) M. Tsunoda, Y. Komazaki, S. Kokado, S. Isogami, C. C. Chen, and M. Takahashi: *Appl. Phys. Express*, **2**, 083001 (2009).
- 2) A. Narahara, K. Ito, T. Suemasu, Y. K. Takahashi, A. Ranajikanth, and K. Hono: *Appl. Phys. Lett.*, **94**, 202502 (2009).
- 3) S. Isogami, M. Tsunoda, M. Oogane, A. Sakuma, and M. Takahashi: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **38**, 162 (2014).
- 4) K. Ito, S. Higashikozono, F. Takata, T. Gushi, K. Toko, and T. Suemasu: *J. Cryst. Growth*, **455**, 66 (2016).
- 5) 今村光佑, 前田悠良, 大竹充, 磯上慎二, 二本正昭, 川井哲郎, 桐野文良, 稲葉信幸: to be published in *T. Magn. Soc. Jpn.*, **6** (2022).

組成および原子規則度制御による軟磁性 FeAlSi 薄膜実現のための指針

赤松昇馬、中野貴文、角田匡清、安藤康夫、大兼幹彦
(東北大学大学院 工学研究科)

Guidelines for realization of FeAlSi films with soft magnetic properties
by control of composition and atomic ordering

S. Akamatsu, T. Nakano, M. Tsunoda, Y. Ando, and M. Oogane
(Graduate School of Engineering, Tohoku University)

はじめに

センダスト合金 ($\text{Fe}_{73.7}\text{Al}_{9.7}\text{Si}_{16.6}$) [1]は、 Δ_1 バンドのスピントラッキング率が高く結晶磁気異方性が小さいため、トンネル磁気抵抗 (TMR) センサーのフリー層への応用が期待できる[2]。しかし、従来は FeAlSi 薄膜のスピントロニクス応用に関する検討は十分でなく、軟磁気特性の発現機構も明確に理解されていなかった。本研究の目的は、FeAlSi 薄膜の組成および原子規則度を制御することで、優れた軟磁気特性を実現することである。

実験方法

薄膜試料は MgO(001) 基板上に DC/RF マグネトロンスパッタリングを用いて成膜した。膜構成は MgO-subst./MgO (20nm)/FeAlSi(30)/Ta(5)である。様々な組成の FeAlSi 膜を成膜し、成膜後 $T_a=300\text{-}600^\circ\text{C}$ で熱処理をおこない、原子規則度を変化させた。試料の結晶構造と磁気特性は X 線回折 (XRD) と振動試料型磁力計により評価した。

実験結果

種々の組成の磁化曲線から異方性磁界 H_k を評価した結果、 T_a の上昇によって結晶磁気異方性 (K_1) の符号反転が確認され、最小の H_k は 0.43 Oe であった。 K_1 の符号反転は、 $\text{D}_{03}\text{-Fe}_3\text{Si}$, $\text{D}_{03}\text{-Fe}_3\text{Al}$, $\text{B}_2\text{-Fe}_3\text{Si}$, $\text{B}_2\text{-Fe}_3\text{Al}$, $\text{A}_2\text{-FeAlSi}$ の様々な規則相の体積比率の変化によるものと推測される。XRD で実験的に評価した D_{03} 相, B_2 相の原子規則度と、各規則相の K_1 のバルク値[3, 4]を用いて、 K_1 の Al 濃度依存性のシミュレーションをおこなった。Fig.1 は、 $K_1 \sim 0$ が得られた膜組成での K_1 の実験結果とシミュレーション結果を示している。バルクのそれも合わせて示した。シミュレーション結果は実験結果と同じ傾向を示しており、 $K_1 \sim 0$ の点は原子規則度が低下するにつれて、Al リッチ組成にシフトすることがわかった。このことから、膜組成と原子規則度を制御し、FeAlSi 薄膜中の規則相のうち、唯一負の K_1 を有する $\text{D}_{03}\text{-Fe}_3\text{Al}$ の体積比率を調整することで、優れた軟磁気特性を有する FeAlSi 薄膜を得られることを見出した。当日の発表では、 $K_1 \sim 0$ が得られた試料の磁気光学 Kerr 効果測定の結果と合わせて、軟磁気特性の発現機構に関する詳細な議論をおこなう。本研究は、FeAlSi 薄膜が TMR センサー素子のフリー層材料として有望であることを初めて示し、TMR センサーの飛躍的な性能向上に貢献すると期待できる。本研究は、JSPS 科研費、東北大学 GP-Spin プログラム、NEDO 先導研究プロジェクト、東北大学 CSIS および東北大学 CIES の支援を受けた。

膜組成と原子規則度を制御し、FeAlSi 薄膜中の規則相のうち、唯一負の K_1 を有する $\text{D}_{03}\text{-Fe}_3\text{Al}$ の体積比率を調整することで、優れた軟磁気特性を有する FeAlSi 薄膜を得られることを見出した。当日の発表では、 $K_1 \sim 0$ が得られた試料の磁気光学 Kerr 効果測定の結果と合わせて、軟磁気特性の発現機構に関する詳細な議論をおこなう。本研究は、FeAlSi 薄膜が TMR センサー素子のフリー層材料として有望であることを初めて示し、TMR センサーの飛躍的な性能向上に貢献すると期待できる。本研究は、JSPS 科研費、東北大学 GP-Spin プログラム、NEDO 先導研究プロジェクト、東北大学 CSIS および東北大学 CIES の支援を受けた。

参考文献

- [1] H. Masumoto, T. Yamamoto, J. Jpn. Inst. Met. **1**, 127 (1937).
- [2] S. Akamatsu, M. Oogane *et al.*, AIP Adv. **11**, 045027 (2021).
- [3] M. Takahashi *et al.*, J. Jpn. Inst. Met. **10**, 221 (1986).
- [4] T. Kamimori, M. Shida, M. Goto, and H. Fujiwara, J. Magn. Magn. Mater. **54**, 927 (1986).

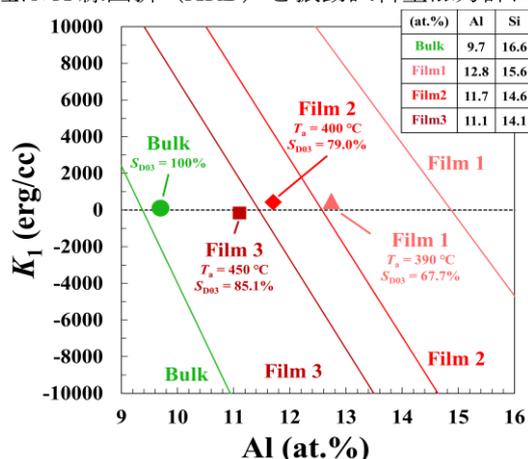


Fig.1: Experimental (plotted points) and simulation (solid lines) results of K_1 dependence on Al concentration.

タンデム法で成膜した強磁性 CoFe-フッ化物ナノグラニューラー膜の一軸異方性

直江正幸、曾根原誠*、遠藤恭**、小林伸聖、荒井賢一
(電磁研、*信州大、**東北大)

Uniaxial anisotropy of ferromagnetic nanogranular films consisting of binary CoFe alloys and fluorides

M. Naoe, M. Sonehara*, Y. Endo**, N. Kobayashi, and K.I. Arai

(DENJIKEN-Res. Inst. Electromagnetic Mater., *Shinshu Univ., **Tohoku Univ.)

はじめに 強磁性のナノグラニューラー膜は一軸磁気異方性を付与すると強い異方性磁界を呈し、かつフッ化物をマトリックス材料とすると高比抵抗となることから、高周波用途に適している^{1,2)}。また、用いる磁性金属の組成を選択することで、高周波特性を調整可能である³⁾。他方、同時スパッタの一種であるタンデム法で成膜すると、本法の基板公転に由来した自己組織化により磁性ナノグラニューラーの結晶配向が起り、成膜中に磁界印加しなくとも強い面内一軸異方性を誘導できる⁴⁾。このような背景において、磁化が高い一方で結晶磁気異方性定数が低い二元 CoFe 合金を用いてナノグラニューラー膜の高透磁率化を試みている。その研究過程で、上記の結晶配向で誘導される異方性の方向に CoFe 組成依存性があることがわかった。強磁性ナノグラニューラー膜の異方性要因について、解明の一助になるのと考えられる。

実験方法 Fig. 1 に模式図を示すタンデム法において、磁性金属陰極は CoFe 合金とし、合金組成 $\text{Co}_x\text{Fe}_{100-x}$ において化学組成 x を 0~94 (at. %)とした。フッ化物陰極には CaF_2 もしくは MgF_2 の緻密焼結体を用いた。陽極に設置のガラス基板を水冷しながら周速 0.33 m/s で公転させた。この基板公転軌道下に配置され、かつ同時にプラズマが立てられた上記両陰極上を基板が通過することで、ナノスケールの相分離構造(ナノグラニューラー構造)を形成しながら膜が堆積する。 1×10^{-5} Pa 以下の真空到達の後、Ar 成膜ガス圧は 1.07 Pa とした。膜中の CoFe とフッ化物との比率は、両ターゲットの投入電力比で制御し揃えた。試料は、静磁化測定、高周波複素透磁率測定、比抵抗測定、XRD などにより評価した。

結果と考察 $x=35 \sim 80$ の範囲で面内一軸異方性が得られ、 $x=0$ および 15 では面内等方性、 $x=94$ では垂直磁化となった。Fig. 2 は、基板公転方向を 0 deg. と定義し、ここから公転の遠心方向を正の角度とした時の磁化容易軸の方向について、 x 依存性を纏めたものである。Co リッチ組成側では容易軸が +90 deg. に近くなった。+90 deg. は、上記の結晶配向で誘導される容易軸の従来方向である。一方、Fe リッチになると 0 deg. に近づき、やがて負の角度となった。これらは、Fig. 2 に併記した CoFe の結晶磁気異方性定数 K_1 の組成依存性⁴⁾ に対応しているように見える。タンデム法の膜厚分布に由来した磁気ひずみによる正磁歪材料の異方性成分は、0 deg. 付近に弱く誘導されると推測される。例えば、 $\text{Co}_{70}\text{Fe}_{30}$ は CoFe で最も正の磁歪定数 λ が高いが、 K_1 も負に高い。この場合は結晶配向による異方性が優勢で、+90 deg. 方向へ容易軸が向く。他方、 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ や $\text{Co}_{35}\text{Fe}_{65}$ は λ が高い一方で K_1 は低いので、結晶配向による異方性が弱くなり、容易軸が 0 deg. 付近に向くものと考えられる。

参考文献

- 1) Naoe, et al.: *IEEE Magn. Lett.*, **5** (2014).
- 2) Naoe, et al.: *J. Magn. Magn. Mater.*, **391** (2015).
- 3) 直江 他: *電気学会研究会資料*, MAG-13-133 (2013).
- 4) Shih: *Phys. Rev.*, **46** (1934).

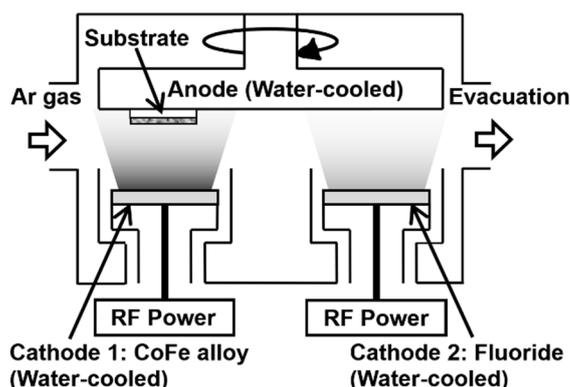


Fig. 1 Schematic view of a tandem sputtering equipment.

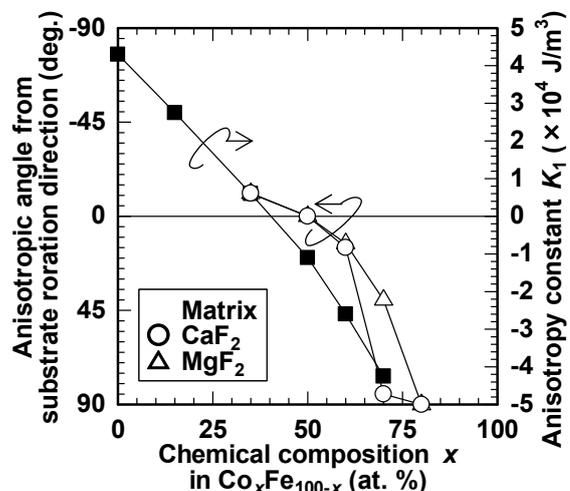


Fig. 2 Anisotropic angle from substrate rotation direction and anisotropy constant as a function of chemical composition x in $\text{Co}_x\text{Fe}_{100-x}$.

非磁性 Cu 中間層を用いた NiFeMo 薄膜の軟磁性化

平山慶明, 芦澤好人, 中川活二
(日本大学)

Soft Magnetization of NiFeMo Thin Films using Non-magnetic Cu Intermediate Layer
Yoshiaki Hirayama, Yoshito Ashizawa, and Katsuji Nakagawa
(Nihon Univ.)

はじめに

高周波電流を通電した磁性体に外部磁界を印加することによる透磁率変化を介し、インピーダンスが変化する現象を利用した GMI センサは高感度化や産業応用が議論されている^[1]。我々は、飽和磁化が大きく、優れた軟磁気特性を有する NiFeMo 薄膜において、多層薄膜構造を利用したさらなる軟磁性化に着目した。一般に、強磁性体内に形成される磁壁は材料の磁気異方性や膜厚によって変化し、膜厚が厚いところでは磁壁のスピンの膜面内方向で回転する Bloch 磁壁となり、薄くなると磁壁の部分の反磁場が大きくなり磁壁上下に現れる磁極による静磁エネルギーが増すためスピンは膜面内で回転する Néel 磁壁となる。ここで、非磁性層を強磁性層で挟んだ構造においては、強磁性層間結合により、Néel 磁壁対が形成されることで、軟磁気特性の向上が報告されている^[2]。そこで本研究では、NiFeMo 薄膜の磁壁構造の制御による軟磁性化を目指し、磁気特性の非磁性 Cu 膜厚依存性について検討した。

実験方法

NiFeMo / Cu / NiFeMo 薄膜を RF マグネトロンスパッタリング法を用いて SiO₂ 基板に成膜した。NiFeMo 薄膜の作製には Ni₇₉Fe₁₆Mo₅ (at.%) の合金ターゲットを用いた。また、非磁性中間層 Cu の膜厚 d_{Cu} は 1 nm, 1.5 nm, 3 nm とし、NiFeMo 薄膜の膜厚は 50 nm 一定とした。作製した磁性薄膜には振動試料型磁力計 VSM を用いて薄膜の面に平行な方向の静的磁気特性を測定した。

実験結果

NiFeMo / Cu / NiFeMo 薄膜の保磁力 H_c を d_{Cu} に対して Figure 1 に示す。いずれの d_{Cu} においても数 A/m の H_c を示した。一方、比較として示した NiFeMo 単層 100 nm の $H_c = 1.7$ kA/m を点線で示した。単層 100 nm を中間層で 50 nm に区切ることで、 H_c が 3 桁低減した。したがって、NiFeMo と Cu の 3 層構造により、単層で Bloch 磁壁の膜厚を用いても、磁壁結合によって軟磁性化したことが示唆される。

謝辞 本研究は、平成 31 年度理工学部プロジェクト研究助成金の支援を受けた。

参考文献

- 1) H. Kikuchi, S. Yabukami, M. Yamaguchi, K. I. Arai, and T. Suzuki: *J. Magu. Soc. Jpn.*, **26**, 562, (2002).
- 2) H. Clow : *Nature*, **194**, 1035, (1962).

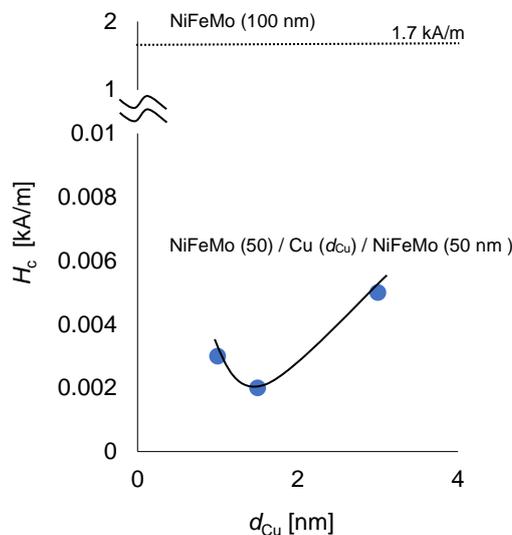


Figure 1. H_c of NiFeMo / Cu / NiFeMo trilayer films as a function of d_{Cu} .

亜鉛フェライト薄膜のコバルト置換による磁気特性の制御

安達信泰・難波研一・中田勇輔・新海圭亮 (名古屋工業大学)

Control of Magnetic Properties due to Co substitutions for Zinc Iron Ferrite Film

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

1. 緒言

我々は、反強磁性体として知られていた ZnFe_2O_4 に関して、有機金属分解(MOD)法で部分的に逆スピネル構造を作ることによってフェリ磁性化し、最大の磁化を得る条件を探索してきた¹⁾。本研究では、コバルト置換による $\text{ZnFe}_{2-x}\text{Co}_x\text{O}_4$ に関して磁化や保磁力を制御する試みについて報告する。

2. 実験方法

薄膜は、MOD 法を用いて、シリカガラス基板上にスピナーコート法で作製した。溶液滴下後は、 100°C で乾燥し、 300°C で仮熱処理を行った。必要な膜厚までこの工程を繰り返した後、熱処理結晶化させた。焼成温度は焼成温度を 500°C から 800°C の範囲で行った。作製した試料に対し、XRD(RIGAKU: RINT1000)による結晶の評価、FE-SEM(JEOL:JES600F)による微構造観察、SQUID(Quantum Design: MPMS-7)による磁化測定、ESR(Bruker EMS/E500)測定を行った。

3. 結果と考察

膜厚は FE-SEM の断面観察により 300nm 程度と見積もった。XRD 回折パターンでは、スピネル構造由来する回折ピークのみが得られた。 ZnFe_2O_4 薄膜の場合は、フェリ磁性相の保磁力 H_c は 700 Oe と一定で、作製条件により、飽和磁化 M_s が変化した。現時点で、 500°C _2h 付近、 480°C _12h の範囲で $40\sim 50\text{emu/g}$ を示し、予想最大飽和磁化 77emu/g には届かないまでも、低温で大きな磁化が得られている。コバルト置換では、置換率と焼成条件により、飽和磁化と保磁力が大きく変化した。8時間の焼成温度の条件下では、飽和磁化は置換率 x とともにいったん増大したのち、減少する。Fig.1 には、 $x=0.75$ の焼成条件に依存した磁化曲線 ($T=4\text{ K}$) を示す。高温長時間焼成で大きな磁化 ($M_s=60\text{ emu/g}$) を示し、高温短時間焼成で大きな保磁力 ($H_c=5\text{ kOe}$) を示す傾向が見られた。 ZnFe_2O_4 薄膜の場合は、メスbauer分光評価で Fe^{3+} のみの存在を確認できたのに対して、Co 置換の場合の価数は未同定で、2価や3価の存在する可能性がある。また、4面体か8面体サイトに Co イオンが存在する比率によっても M_s は異なる値を持つため、 M_s と H_c の増大あるいは減少理由は、いろいろなモデルが考えられる。キュリー温度 T_c に関しては、どの組成も Arrott plot から約 200 K を示した(Fig.2)。低温領域で極小ピークのみが観測されたのは、異方性磁界の増大により、ゼロ磁場ですでに共鳴が起きていることが示唆される。磁気共鳴の観測では、低温で異方性磁界の増大による共鳴磁界の低磁界側へのシフトを半値幅の増大が観測されたことから Co 置換は、保磁力を顕著に増大させることが期待できる。

謝辞: 本研究の一部は文部科学省ナノテクノロジーブタットホーム事業<分子・物質合成>[課題番号] S-21-MS-1043 の支援により自然科学研究機構 分子化学研究所で実施された。

参考文献

1) N.Adachi et.al. 02PC1 日本磁気学会第 45 回学術講演会予稿集

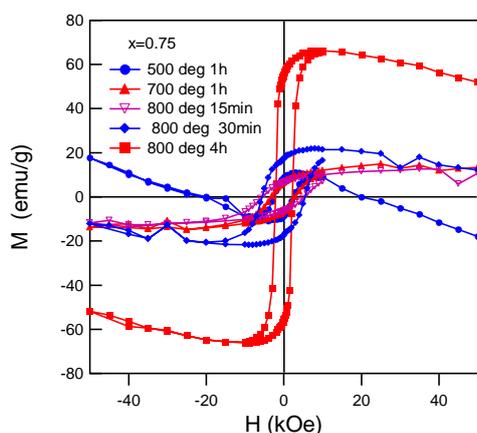


Fig.1 Magnetic hysteresis curves $\text{Zn}(\text{Fe}_{2-x}\text{Co}_x)\text{O}_4$ ($x=0.75$) annealed various conditions.

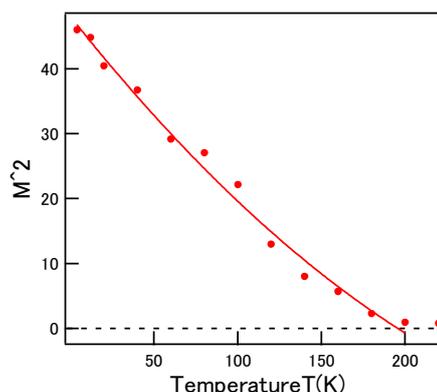


Fig. 2 Arrott plot of $\text{Zn}(\text{Fe}_{2-x}\text{Co}_x)\text{O}_4$ ($x=1.0$) annealed at 500°C _1H

Fe²⁺, Ti⁴⁺置換六方晶フェライトの作製

中原 想来、柿崎 浩一、神島 謙二
(埼玉大学)

Synthesis of Fe²⁺, Ti⁴⁺ substituted hexaferrites

S. Nakahara, K. Kakizaki, K. Kamishima
(Saitama Univ.)

緒言

BaFe₁₂O₁₉ (M型) の Fe³⁺サイトを他の3価のイオンで置換する研究は1950年代以降あり¹⁾、異なる価数のイオンを用いて平均価数が3価になるように置換することも可能である。Ba₅Ti₃Me₂₊₂Fe₁₂O₃₁ (18H型) に関して、副生成物への Fe²⁺の混入は示唆されているものの、Me²⁺ = Fe²⁺の18H型は作製されていない²⁾。本研究では六方晶フェライトの Fe³⁺を Fe²⁺と Ti⁴⁺で置換し、Fe²⁺イオンを含むフェライト作製プロセスを吟味するとともに、未だ報告例のないM型での Fe²⁺置換および Fe²⁺を含む18H型の作製を目的とした。

実験方法

Fe²⁺以外の原料粉 (BaCO₃, α-Fe₂O₃, TiO₂) を目的組成から Fe²⁺を差し引いた分だけ秤量、混合した。混合後、1 mm^φ のジルコニアボールを用いた遊星ボールミル (1100 rpm, 600 sec.) で粉砕し、乾燥させた。700°C で脱気処理を行った後、目的組成となるように Fe₃O₄ を混合、これを内径 3 mm^φ、外径 10 mm^φ のトロイダル形状に 0.5 t/cm² で加圧成型した。成型後、試料を石英管に入れて内圧 1.0 Pa 以下で真空封入を行い、この石英管を 1000~1200°C で 5 h. 加熱した。試料の結晶構造は粉末 X 線回折法で同定し、磁気特性は振動試料型磁力計 (VSM) を用いて測定した。

結果と考察

Fig. 1 に 1200°C で本焼成を行った BaFe³⁺_{12-2x}(Fe²⁺Ti⁴⁺)_xO₁₉ の X 線回折図を示す。置換量 x = 1.0, 2.0, 2.2 において M 型の単相が得られた。

Fig. 2 に 1200°C で焼成した試料の室温における磁化曲線を示す。置換量が増えるにしたがって、強磁性から常磁性へと変化した。この変化は Fe³⁺が Ti⁴⁺が置換されたことで、超交換相互作用が部分的に弱まったためであると考えられる。よって Fe³⁺が Fe²⁺、Ti⁴⁺で置換されたと言える。

Fig. 3 に 1000~1200°C で焼成した Ba₅Ti⁴⁺₃(Fe²⁺Ti⁴⁺)_{2+x}Fe³⁺_{12-2x}O₃₁ (x = -1.0) の X 線回折図を示す。18H型は Y型に BaTiO₃層を3つ加えた構造であり、その18H型が主相として得られた。副生成物としては Y型フェライト相と BaTiO₃相が生成したが、1200°C の焼成ではほぼ単相の試料が得られた。このことから、Fe²⁺が固溶した18H型を作製できたと言える。

参考文献

- 1) A. H. Mones, E. Banks; *J. Phys. Chem. Solids*, **4**, 217 (1958).
- 2) Q. Li *et al.*; *Acta Mater.*, **231**, 117854 (2022).

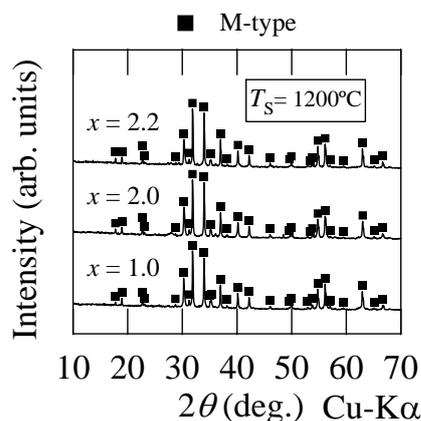


Fig. 1 BaFe³⁺_{12-2x}(Fe²⁺Ti⁴⁺)_xO₁₉ の X 線回折図

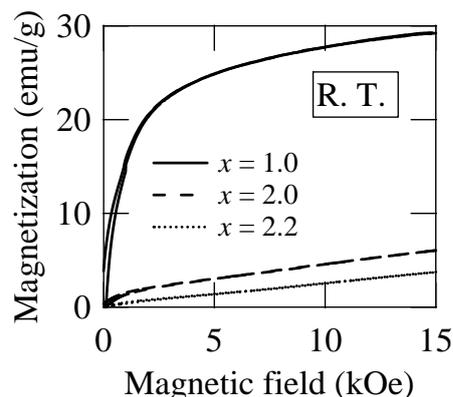


Fig. 2 BaFe³⁺_{12-2x}(Fe²⁺Ti⁴⁺)_xO₁₉ (T_S=1200°C)の磁化曲線

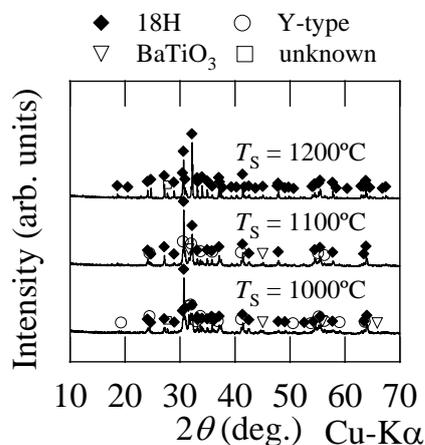


Fig. 3 Ba₅Fe³⁺_{12-2x}Ti⁴⁺₃(Fe²⁺Ti⁴⁺)_{2+x}O₃₁ (x = -1.0)の X 線回折図

マイクロ波アシスト磁化反転における熱活性の影響

水谷聡志^{1,2}、菊池伸明²、畑山正寿^{2,3}、島津武仁³、岡本聡^{2,4}

(¹東北大工、²東北大多元研、³東北大学際研、⁴東北大 CSIS)

The effect of thermal activation on microwave assisted magnetization switching

S. Mizutani^{1,2}, N. Kikuchi², M. Hatayama^{2,3}, T. Shimatsu³, S. Okamoto^{2,4}

(¹Eng. Dept. Tohoku Univ., ²IMRAM Tohoku Univ., ³FRIS Tohoku Univ., ⁴CSIS Tohoku Univ.)

はじめに

マイクロ波アシスト磁化反転 (Microwave assisted magnetization switching : MAS) においては, GHz 帯のマイクロ波磁場により磁化の歳差運動を励起して反転磁場を低減させる. その反転磁場はマイクロ波磁場周波数に比例して低減し, 臨界周波数においてアシスト効果が消失する. MAS における実効的なエネルギー障壁高さは, 直流磁場やマイクロ波磁場の周波数・振幅によって複雑に変化する^{1,2}. 本研究では, Co/Pt 多層膜ナノドットアレイを用いて様々な条件で MAS の際の緩和時間を測定することで MAS への熱活性の影響について調べた.

実験方法

試料は, 熱伝導率の高い Si 基板上にマイクロ波磁場印加用の高周波線路を作製し³, その上に絶縁層を介して異常ホール効果測定用の電極層及び Co/Pt ドットアレイを作製した. ドット直径は $d = 70, 200$ nm とした. MAS 実験は電磁石により膜面垂直方向に直流磁場, 面内方向にマイクロ波磁場を印加し, 異常ホール効果により磁化状態を検出した. マイクロ波磁場は幅 $t_{\text{pulse}} = 20$ ns, 周期 $t_{\text{period}} = 2 \times 10^{-8} - 2 \times 10^{-1}$ s のパルス波として印加した.

実験結果

Fig.1 に直径 $d = 70$ nm の Co/Pt ドットアレイの保磁力のマイクロ波周波数依存性を実効緩和時間 $t_{\text{eff}} = 10^{-6} - 10$ s について示す. マイクロ波磁場振幅は $\mu_0 h_{\text{rf}} = 38$ mT である. 実効緩和時間 t_{eff} は測定時間中にマイクロ波磁場を印加した時間とし, $t_{\text{eff}} = 10 \times (t_{\text{pulse}}/t_{\text{period}})$ と定義した. いずれの t_{eff} においても周波数の増加に伴って保磁力が低減し, 明確なアシスト効果が得られた. 周波数に対する保磁力低下の傾きには t_{eff} に対して大きな変化は見られない. 同じ周波数で比べると t_{eff} の増加に伴い保磁力は低減し, 臨界周波数は高周波側へとシフトした. Fig.2 に異方性磁場 H_k および共鳴周波数 $2\pi/|\gamma|$ で規格化した直流磁場 H_{dc} , マイクロ波磁場周波数 f_{rf} に対して計算した実効的なエネルギー障壁高さ $\Delta E/E_0$ を示す. マイクロ波磁場振幅は $H_{\text{rf}}/H_k = 1.8 \times 10^{-2}$ である. エネルギー障壁高さ $\Delta E/E_0$ と緩和時間 t_{eff} は 1 対 1 に対応する. そのため, Fig.1 中の t_{eff} を一定として測定した結果は $\Delta E/E_0$ の等高線を実験的に求めていることに相当し, t_{eff} の増加に伴う保磁力の低減と臨界周波数の高周波化は熱揺らぎによって説明できることが分かる.

謝辞 本研究の一部は ASRC の支援を受けて行われた.

参考文献

- 1) H. Suto et al., Phys. Rev. B. **91**, 094401 (2015).
- 2) N. Kikuchi et al., Phys. Rev. B **105**, 054430 (2022).
- 3) N. Kikuchi et al., J. Appl. Phys. **126**, 083908 (2019).

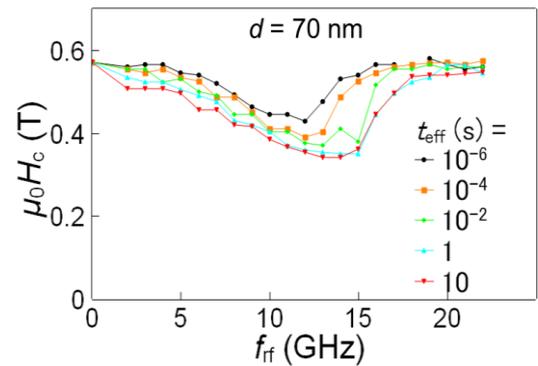


Fig. 1 Microwave field frequency f_{rf} dependence of coercivity of Co/Pt nanodot array with diameter $d = 70$ nm for $t_{\text{eff}} = 10^{-6} - 10$ s.

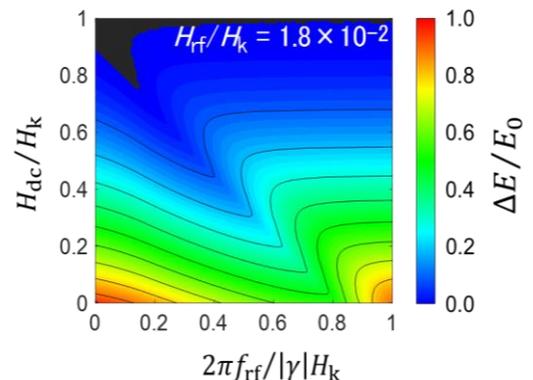


Fig. 2 The calculated effective energy barrier height $\Delta E/E_0$ as functions of microwave field frequency $2\pi f_{\text{rf}}/|\gamma|H_k$ and dc field H_{dc}/H_k for microwave field amplitude $H_{\text{rf}}/H_k = 1.8 \times 10^{-2}$.

磁性膜厚のマイクロ波アシスト磁化反転挙動への影響

菊池伸明¹、佐藤勝成¹、畑山正寿^{1,2}、島津武仁^{2,3}、岡本聡^{1,4}

(¹ 東北大多元研、² 東北大学際研、³ 東北大通研、⁴ 東北大 CSIS)

Effect of film thickness on microwave assisted switching behavior

N. Kikuchi¹, K. Sato¹, M. Hatayama^{1,2}, T. Shimatsu³, S. Okamoto^{1,4}

(¹IMRAM Tohoku Univ., ²FRIS Tohoku Univ., ³RIEC Tohoku Univ., ⁴CSIS Tohoku Univ.)

はじめに

マイクロ波アシスト磁化反転 (Microwave Assisted Switching: MAS) は超高密度磁気記録を実現する技術として期待されている。すでにドライブとしての研究も進められている一方で、特にグラニューラー媒体での実験での報告は少なく膜構造の影響などについて未解明な点も多い。我々のグループではこれまでに、膜厚 15 nm の CoCrPt-SiO₂ グラニューラー薄膜において MAS 実験を行い、そのマイクロ波磁場振幅や周波数依存性は熱揺らぎを考慮することにより説明できることを報告している[1]。今回は、膜厚の異なる試料を用いて MAS 実験を行い、熱揺らぎの影響を調べることにした。

実験方法と結果

ノンドープの Si ウェハ上幅 1 μm のマイクロ波磁場印加用 Au 線路を作製し、厚さ 100 nm の SiO_x 絶縁層を形成した。その上に下地層・保護層とともに CoCrPt-30vol.%SiO₂(*t*) グラニューラー磁性膜を製膜した。*t* は膜厚で 10 および 15 nm である。Au 線路上の磁性膜を、電子線リソグラフィおよび Ar イオンエッチングにより長さ 3 μm、幅 0.6 μm の矩形状に加工した。その後、下地層を磁気特性評価のための異常 Hall 効果 (AHE) 測定用の電極形状に加工した。磁化曲線の測定は膜面に垂直な磁場を印加して行い、マイクロ波磁場は、Au 線路に GHz 帯の高周波電流を流すことにより膜面内に発生させた。

Fig. 1 にマイクロ波磁場を印加しない場合と、マイクロ波磁場振幅 $\mu_0 h_{rf} = 48 \text{ mT}$ 、周波数 $f_{rf} = 25 \text{ GHz}$ において測定した AHE 曲線を示す。膜厚は (a) 10 nm、(b) 15 nm であり、磁場の掃引方向が $- \rightarrow +$ の曲線だけを表示してある。マイクロ波磁場を印加しない場合の保磁力は $t = 10 \text{ nm}$ の試料で低下しているが、磁気異方性定数には大きな差がなく熱揺らぎの影響が主である。いずれの試料においても明瞭なマイクロ波によるアシスト効果が見えているが、この周波数においては、 $t = 10 \text{ nm}$ の試料の方がより大きなアシスト効果が得られ 0.2 T にも達する。Fig. 2 にこれらの試料の保磁力のマイクロ波磁場周波数依存性を示した。マイクロ波磁場振幅は $\mu_0 h_{rf} = 48 \text{ mT}$ で一定である。いずれの試料でも低周波領域ではマイクロ波磁場の周波数に伴いほぼ線形に保磁力が低下したが、その傾きは試料による差異は見られない。いずれの試料でも $f_{rf} = 20 \text{ GHz}$ 以上では周波数に対する反転磁場の低下が緩やかになるが、 $t = 10 \text{ nm}$ の試料の方がより高周波までアシスト効果が持続している。これらの挙動は、マイクロ波磁場下でのエネルギー障壁の計算結果から予測されるもので説明できる[1, 2]。

参考文献

[1] N. Kikuchi et al., Phys. Rev. B 105, 054430 (2022).

[2] H. Suto et al., Phys. Rev. B. 91, 094401 (2015).

謝辞 本研究の一部は ASRC の支援を受けて行われた。

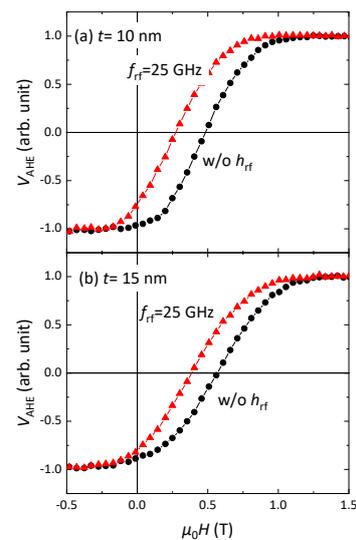


Fig. 1 AHE curves of CoCrPt-SiO₂ media measured without and with microwave field of $f_{rf} = 25 \text{ GHz}$ and $\mu_0 h_{rf} = 48 \text{ mT}$.

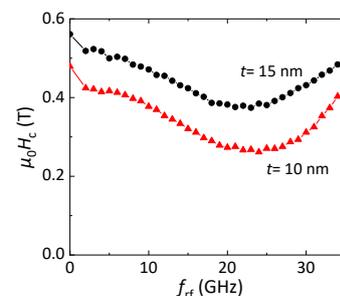


Fig. 2 Coercivity of CoCrPt-SiO₂ media as a function of microwave field frequency. ($\mu_0 h_{rf} = 48 \text{ mT}$.)

近似計算手法を用いたマイクロ波アシスト磁化反転磁界の推定

川上高輝¹, 牙暁瑞², 田中輝光¹

(¹九州大学大学院システム情報科学府, ²九州大学マス・フォア・インダストリ研究所)

Estimation of microwave-assisted magnetization switching field by energy approximation

K. Kawakami¹, X. Ya², and T. Tanaka¹

(¹ISEE Kyushu University, ²IMI Kyushu University)

はじめに

近年、磁気記録の分野において超高密度記録を実現する記録方式の一つとしてマイクロ波アシスト磁気記録(MAMR)が注目されている¹⁾。直流磁界の印加方向が磁化容易軸に反平行の場合、マイクロ波のアシスト効果は理論的に定式化されており^{2,3)}、磁化容易軸方向に大きさ $\omega/\gamma H_k$ の磁界が印加されること等価であることが知られている。一方で、直流磁界の印加方向が磁化容易軸に非平行の場合、マイクロ波アシスト磁化反転(MAS)の解析的な推定は困難であり、磁化反転閾磁界 h_{sw} のような磁化反転条件は定式化されていないためマイクロマグネティックシミュレーションを用いる必要がある。本研究では直流磁界の印加方向が磁化容易軸に非平行な場合の h_{sw} を近似的に推定した。

近似計算手法

本研究における磁化および磁界の近似モデルを Fig. 1 に示す。磁化容易軸は z 軸方向で直流磁界 h_{DC} は z 軸に対して θ の角度で印加され、円偏波交流磁界 h_{AC} は面内方向に角周波数 ω で印加されると仮定する。なお、各磁界は異方性磁界 H_k で規格されている。 φ は磁化の z 軸に対する歳差運動軸の傾き角を示し、 φ_1, φ_2 は磁化の x 成分がそれぞれ最大・最小をとるときの z 軸に対する磁化の傾き角を示す。我々の先行研究から本モデルにおける x 方向、 z 方向の各磁界成分(h_x, h_z)は Eqs. (1)で近似的に表され、 $h_{DC} = h_{sw}$ のとき、アステロイド曲線 Eq. (2)におおよそ一致する。

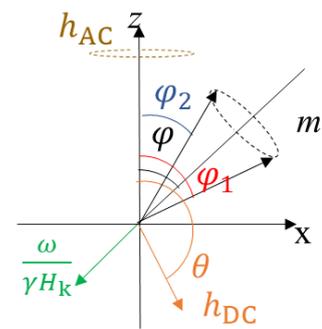


Fig. 1. Schematic of the equivalent field

$$h_x = h_{DC} \sin \theta - \frac{\omega}{H_k \gamma} \sin \varphi + h_{AC}, h_z = h_{DC} \cos \theta - \frac{\omega}{H_k \gamma} \cos \varphi \quad \text{Eqs. (1)}$$

$$h_x^2 + h_z^2 = 1 \quad \text{Eq. (2)}$$

上式を用いて h_{sw} を近似的に求めた。 φ は φ_1 と φ_2 の平均値として近似的に取り扱った。なお、 φ_1 および φ_2 は実効磁界を考慮したエネルギー平衡条件($\partial E/\partial \varphi_{1,2}=0$)から推定される。なお E は $\omega/\gamma H_k$ を考慮したゼーマンエネルギーと異方性エネルギーの和を示す。

近似計算手法

本近似手法とマイクロマグネティックシミュレーションそれぞれから得られる h_{sw} のマイクロ波周波数依存性を Fig. 2 に示す。 h_{AC} は $h_{AC} = 0.05$ とした。このときの近似計算値とマイクロマグネティックシミュレーションの結果との差は最大で約 2%程である。

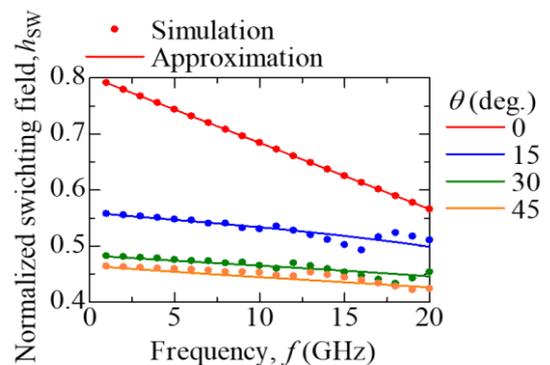


Fig. 2 Comparison between approximation and micromagnetic simulations.

参考文献

- 1) Jian-Gang Zhu, et al., IEEE Trans. Magn., Vol. 44, pp.125-131 (2008).
- 2) G. Bertotti, et al., Phys. Rev. Lett., Vol. 86-4, pp. 724-727 (2001).
- 3) S. Okamoto, et al., J. Appl. Phys., Vol. 107, 123914 (2010).

3次元熱アシスト磁気記録方式における記録層の膜厚と層間のスペーシングの検討

前田航弥、赤城文字

(工学院大学 大学院 工学研究科 電気・電子工学専攻)

Study of thicknesses of recording layers and spacing between them for 3D heat-assisted magnetic recording

K. Maeda, and F. Akagi

(Graduate School of Electrical Engineering and Electronics, Kogakuin Univ.)

はじめに

近年、磁気ディスク装置では、テラビット級の高記録密度化のために、熱アシスト磁気記録 (heat assisted magnetic recording: HAMR)方式の研究・開発が進んでいる。また、HAMR とビットパターン媒体 (bit-patterned media : BPM)を組み合わせた heated-dot magnetic recording : HDMRが 5-10 Tb/in²の記録密度を達成できるとして提案されている。しかし、ドットサイズの超常磁性限界を考慮すると新たな記録方法が必要になる。本研究では、記録層を二層に増やした 3次元熱アシスト磁気記録 (3D HAMR)方式の検討を行っている[1]。本報告では、記録層の膜厚、及び記録層間のスペーシングと記録特性との関係について記録層間に働く静磁界に着目して検討を行った。

計算方法及び計算モデル

3D HAMR の記録過程は、Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG)方程式を解いて求めた。媒体モデルは、ドット径 8 nm の円柱の磁性ドットが、ドット間隔 16 nm で規則的に並んでいると仮定した。上層ドットの膜厚は 4 nm、下層ドットの膜厚は 3 nm とした。上層のキュリー温度を 550 K、下層のキュリー温度を 650 K とした。記録は、DC イレーズ後まず下層に 1,0 の記録を行い、その後上層に 0,1 の記録を行った。記録の評価はビットエラーレート (BER) (記録トラックエラードット数 / 記録トラックの総ドット数) × 100 % を用いた。

計算結果

図 1 は、スペーシング 3 nm において、下層を上昇温度 250 K で記録した後、上層の記録を行った時の BER である。これより、上層の BER は上昇温度 170 から 175 K で 0% となったが、下層は 150 K を超えると温度上昇とともに増大した。図 2 は、下層の熱揺らぎのみを除去して上層の記録を行った結果である。これより、下層の BER は全ての条件で 0% となったことから、下層 BER はキュリー温度より低温でも熱揺らぎの影響を受けることがわかった。上下層間の静磁界との関係については発表当日報告する。

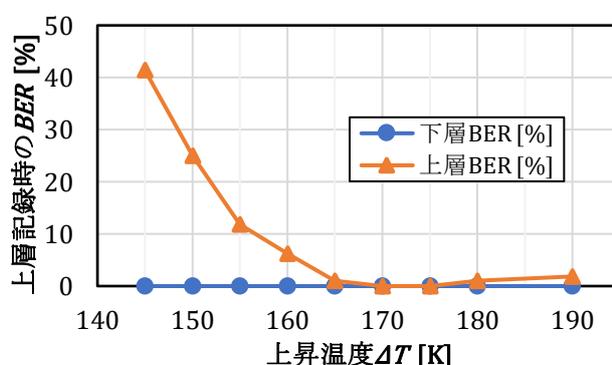
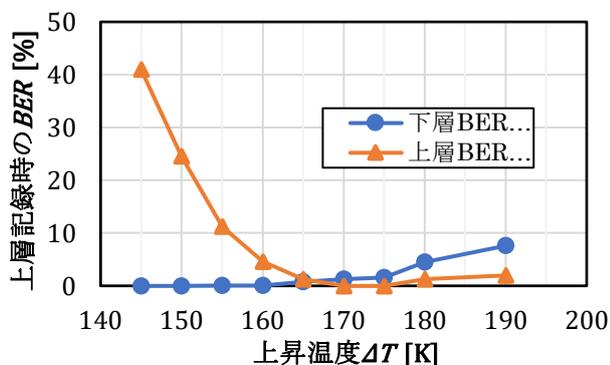


図 1. 上層記録後の BER の上昇温度依存性

図 2. 下層の熱揺らぎを除去した時の BER の上昇温度依存性

謝辞：本研究で用いたプログラムは(株)日立製作所から貸与されております。

参考文献

- 1) F. Akagi, Y. Sakamoto, and N. Matsushima, 2021 IEEE International Magnetic Conference, (2021) pp. 1-5.

U-Net image segmentation for statistical analysis of granular FePt recording media and automated dataset generation

N. Kulesh, A. Bolyachkin, I. Suzuki, Y. K. Takahashi, and H. Sepehri-Amin
National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan

Progress in the development of next-generation heat assisted magnetic recording (HAMR) media strongly depends on the optimization of existing processing technology for further decrease of grain sizes while maintaining a large coercivity in FePt granular media. Thus, current target areal density of 4 Tb/in² requires L1₀-FePt granular media with an average grain size of 4-5 nm with standard deviation (SD) below 15 %^{1,2}. These requirements imply the precise and fast analysis of microstructural data; *e. g.* transmission electron microscopy (TEM) images. In this work, we propose an automated method combining segmentation using convolutional neural network with the U-Net architecture and computer vision algorithms for fast acquisition of all relevant statistical information from TEM images. We demonstrate that the workflow capable of processing an arbitrary number of images in a highly uniform way can be useful for generating a high-quality dataset for further analysis by machine learning algorithms. As proof of concept, we considered a series of FePt-C granular films for which a dataset was generated, combined with sputtering conditions and magnetic properties, and analyzed by machine learning.

Samples of FePt-C granular films were deposited in several stages onto MgO(001) substrates by magnetron sputtering at elevated temperatures. The U-Net model was built using Keras and TensorFlow Python libraries and was trained using 1200 images and corresponding manually segmented masks obtained by cutting 10 TEM images acquired on the area of 300 × 300 nm². The U-Net model was further used for automatic segmentation of 70 large TEM images (sample image with recognized grains marked with colors is shown in Fig. 1 a). The obtained binarized images were used for measuring area of each grain, estimating diameter, distance to the center of the nearest grain, and roundness parameter. As a result, average values of each parameter together with SDs were extracted. In Fig. 1 b, a comparison of the two histograms of grain diameters obtained from manually and automatically segmented images are shown. Using the automatically generated dataset, simple regressor models for predicting coercivity and microstructural parameters were built and used for finding an optimal set of sputtering conditions leading to the desired combination of coercivity and grain size. The proposed approach can be useful for fast and unbiased microstructure analysis of FePt granular media. At the end of the talk, we will discuss how machine learning assisted microstructure analysis can be beneficial for optimization of the processing parameters toward realization of desired microstructure in the L1₀-FePt granular media for HDDs with an areal density of 4 Tb/in².

References

- 1) D. Weller et al. IEEE Trans. Magn. 50 (2014) 3100108
- 2) K. Hono *et al.* MRS Bull. 43 (2018) 93-99

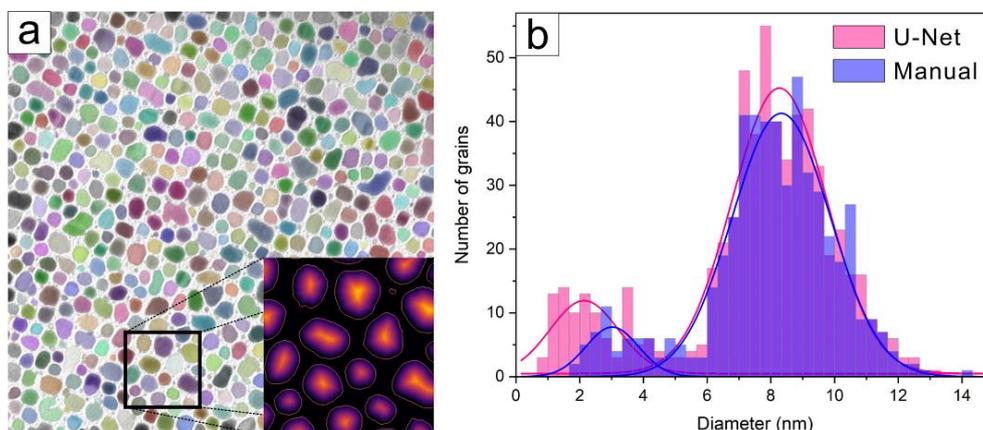


Figure 1 (a) TEM image with recognized grains highlighted with colors. The inset shows Euclidian distance map used for estimating distances between centers of neighboring grains. (b) Distributions of estimated grain's diameters extracted from TEM images segmented manually and by the U-Net model.

単位胞解析による L1₀ 型 FePt 基薄膜中の 磁性結晶粒への軽元素固溶の評価

○岩動 大樹¹, 田中 元人¹, 齊藤 節¹, タム キム コング², 小川 智之¹, 齊藤 伸¹

(1. 東北大学, 2. 田中貴金属工業)

Evaluation of light atomic element dissolved in magnetic grains
with unit cell analysis for L1₀-typed FePt based films

○Daiki Isurugi¹, Gento Tanaka¹, Takashi Saito¹, Kim Kong Tham², Tomoyuki Ogawa¹, and Shin Saito¹

(1. Tohoku Univ., 2. TANAKA KIKINZOKU KOGYO K. K.)

はじめに 熱アシスト磁気記録媒体の記録層では、室温で高い一軸結晶磁気異方性エネルギーを有する L1₀ 型 FePt 相が有力な候補材料であり、C や BN を粒界材 (Grain boundary material: GBM) として用いたグラニューラ薄膜の実用開発が進められている。我々はグラニューラ薄膜の飽和磁化 (M_s) が GBM の融点と相関し、C や BN 等の融点の高い GBM を用いたグラニューラ薄膜では M_s の低下が著しいことを指摘した¹⁾。この原因は成膜時に FePt と GBM との分離が不十分な状態で析出凝固が起きるため、GBM を構成する軽元素 B、C、N が磁性結晶粒内に残存してしまっていることが考えられ、固溶量の評価が求められる。しかしながらシングルナノメートル膜厚のグラニューラ薄膜であって、しかも磁性結晶粒内に存在する軽元素について定量評価することは容易ではなく、これまでほとんど議論されてこなかった。今回我々はグラニューラ薄膜中の L1₀ 型 FePt 相の単位胞体積が、格子中に固溶した軽元素量に敏感な指標となる傍証を得たので報告する。

評価の方法と評価結果 Fig. 1 は、L1₀ 相の単位胞を解析するための格子定数のグラフである。 c を縦軸、 a を横軸にとると、軸比 c/a の等値線は右上がりの直線 (破線)、単位胞体積 (a^2c) は右下がりの曲線 (記載範囲ではほぼ直線: 実線) として描かれる。このグラフ上に様々なプロセス条件で作製される FePt 基薄膜の L1₀ 相の格子定数 (a, c) をプロットすれば、単位胞変化に関する情報が得られる。一例として Fig. 1 には基板温度を 250 - 630 °C まで変化させてスパッタ成膜した FePt 合金薄膜中の FePt 相の格子定数をプロットした。試料の層構成は FePt-30 vol.%BN (5 nm)/MgO (5 nm)/a-Co₆₀W₄₀ (80 nm)/Sub. である。試料中の FePt 結晶粒は c 軸配向していたため、In-plane X 線回折による(200)面ならびに Out-of-plane X 線回折による(002)面からの回折線のブラッグ角から格子定数 (a, c) を算出した。プロットによると合金薄膜の (a, c) のプロットは基板温度を上げて作製するほど右下にシフトし (a : 増加, c : 減少)、 c/a が低下していくことがわかる。これは添え書きした規則度の向上とも対応している。一方これらの試料の単位胞体積は、成膜時の基板温度に依らず 55.55 Å³ で一定値を示している。これは FePt 合金薄膜では規則-不規則の構造変化の過程で単位胞体積はほとんど変化しないことを示している。Fig. 2 には、基板温度 550°C のもと Ar ガスに N₂ ガスを添加して成膜した FePt 合金薄膜中の L1₀ 相の格子定数 (a, c) を示した。窒素流量比を 0 から 50% まで増加させると、(a, c) のプロットはグラフ中で上側にシフトし (c : 増加)、 c/a が 1 に近づいていくことがわかる。一方この場合の単位胞体積は 55.55 から 56.89 Å³ まで増大している。添え書きした規則度の減少も考え合わせると、N₂ ガスの添加成膜では、添加窒素量の増加にともない窒素が FePt 結晶粒内に固溶してしまい、Fe と Pt の規則配列の形成を妨げている描像が伺える。講演では、FePt 合金薄膜に加え FePt-GBM グラニューラ薄膜について、N₂、H₂、NH₃ 等のガスを用いてガス添加成膜やガス雰囲気ポストアニールを施した試料の解析結果についても紹介する。

参考文献 1) S.Saito et al., *J. Appl. Phys.*, **59**, 045501 (2020).

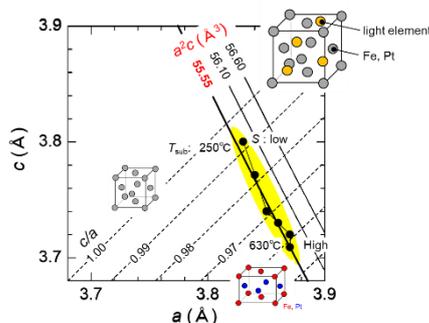


Fig. 1 Variation of the lattice constants a and c of the L1₀ phase in FePt alloy films deposited at different temperatures.

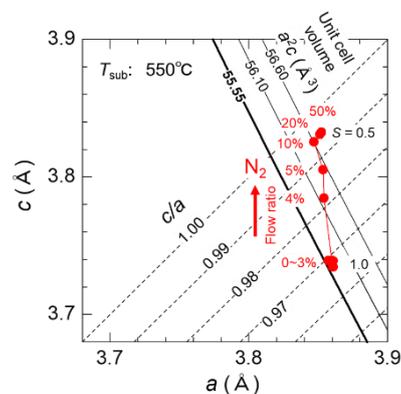


Fig. 2 Variation of the lattice constants a and c of the L1₀ phase in FePt alloy films sputtered with N₂ gas.

急速昇降温熱処理と微細加工を併用した 規則配置された $L1_0$ -FePt 微粒子群作製への検討

清水雄太¹, 吉川大貴², 塚本新²

(¹ 日本大学大学院理工学研究科, ² 日本大学理工学部)

Fabrication of regularly arranged $L1_0$ -FePt fine particulate with
combination of rapid thermal annealing and microfabrication

Yuta Shimizu¹, Hiroki Yoshikawa², Arata Tsukamoto²

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

² College of Science and Technology, Nihon Univ.)

はじめに 垂直磁気異方性を有する FePt ナノ磁性体の微粒子化, またその規則配置・粒径の低分散化を含むパターン化は次世代高密度磁気記録媒体, 高機能磁気デバイス作製における基盤要素技術である. 我々は熱酸化 Si 基板上に積層した Pt / Fe 連続二層膜に対して短時間の急速昇降温熱処理 (RTA : Rapid Thermal Annealing) を行い分離, 凝集, $L1_0$ 規則合金化を一工程の熱処理で可能とする微粒子作製手法を報告している¹⁾. 更に本 RTA に電子線リソグラフィ (EBL) による微細加工を併用した手法も検討・報告している²⁾. 通常連続二層膜への RTA では粒径, 磁気特性分散の大きな微粒子群が形成される. しかし, RTA と微細加工を併用する本手法では, 各粒子体積の低分散化とともに分離・凝集プロセスの多様性を強く限定できると考えられる. 本研究では微細加工により孤立二層膜タイトルの体積を限定し, 微細加工体積による熱処理後形成粒子数, 粒子形状について検討する.

実験方法 リフトオフ法にて Si 基板上に総積層膜厚 3.75 nm の Pt / Fe 孤立二層膜タイトル群を RTA 前初期構造として作製した. 本構造は Fig.1 に示す微細加工タイトル辺長 L を 50 ~ 200 nm, 周期 P を $L + 100$ nm の 150 ~ 300 nm となるように描画を行い, Fe を 1.64 nm, Pt を 2.11 nm, DC マグネトロンスパッタリングにて積層し作製した. この試料に対して到達真空度 $< 1.0 \times 10^{-3}$ Pa の雰囲気下で, 昇温速度約 120 °C/sec., 到達温度 590 °C の急速昇温後, 降温速度 -140 °C/sec. の急速降温にて RTA を実施した. この試料に対して走査型電子線顕微鏡 (SEM) による観察し形成された粒子形状, 粒子数を評価する.

実験結果 一つのタイトルから一つの微粒子形成可能な臨界タイトルのサイズの有無, また粒子サイズを評価するために SEM を使用した. Fig.2 に示すように $L < 110$ nm では1タイトルあたりの形成粒子数は概ね1個であるが, $L \geq 110$ nm 付近から複数粒子の形成を確認した. これより分離が発現するタイトルサイズの臨界点は 100 ~ 110 nm 近傍であることを示した. また, タイルサイズの増加に伴い1タイトルあたりの平均形成粒子数は線形に増加することを確認し, 孤立二層膜体積の増加と形成粒子数に相関があると確認できる. 粒子サイズ評価からは Fig.2 に示すように $L < 100$ nm ではタイトルサイズの増加とともに単調な平均粒子直径の増加が確認され, 複数粒子が形成された範囲では平均粒子直径が約 60 nm で飽和する. この RTA を用いた形成粒子サイズに対する臨界現象の存在により粒子数のタイトルサイズ依存性が生じているものと考えられる. 一方, EBL の電子線散乱により RTA 前初期構造が設計よりも約 10 ~ 20 nm 程度肥大化する傾向が確認されるものの, RTA の凝集効果により描画面積の約 60% に凝集した. これにより, RTA を併用する本形成手法において描画配列周期を維持したまま加工サイズよりも微小な構造を形成できる可能性も示した.

謝辞 本研究の一部は, 情報ストレージ研究推進機構の助成により行った.

参考文献

- 1) Y. Itoh, T. Aoyagi, A. Tsukamoto, K. Nakagawa, A. Itoh and T. Katayama : Jpn. J. Appl. Phys., **43**, 12, 8040(2004).
- 2) T. Naeki, K. Miyoshi, H. Yoshikawa, A. Tsukamoto : "T. Magn. Soc. Jpn. (Special Issues)", **3**, 1 - 6 (2019).

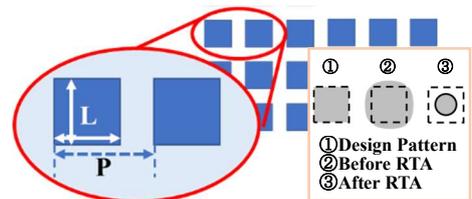


Figure1 Design tile pattern and Stepped microstructure

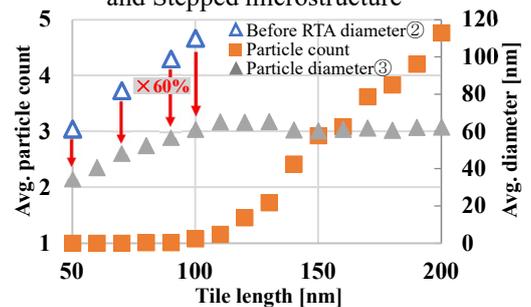


Figure2 Tile length characteristics

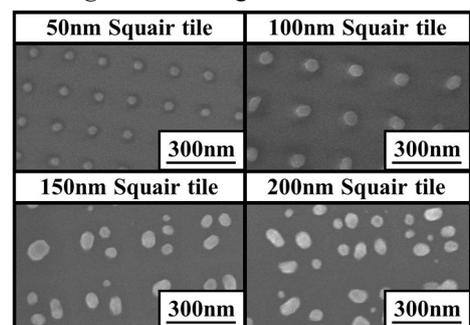


Figure3 Observation of nano particle shape by SEM.

脳神経構造可視化ツールを用いた分散ストレージ Ceph のデータアクセス性能の評価検討

川田悠貴, 田中陽一郎
(東北大)

Evaluation study of data access performance of distributed storage Ceph, using a brain neuronal structure visualization tool

Yuki Kawada, Yoichiro Tanaka
(Tohoku Univ.)

はじめに ストレージシステムの巨大化に伴うデータアクセス性能の向上が課題となっている。本実験では、大容量の回転ストレージデバイス(HDD)とレイテンシーの短いフラッシュデバイス(SSD)を組み合わせた大容量ストレージシステムの高性能化、高効率化に向け検討を行う。本実験で用いた分散ストレージシステム Ceph[1]は、柔軟なアクセス方式、優れた拡張性、高信頼性を持つオブジェクトストレージであり、ストレージ基盤としての活用が期待される。

実験方法 分散ストレージ Ceph を Compute Node-1 上のディレクトリにマウントし、ニューロンデータ(約 472GB)を格納した。Compute Node-2 上の脳神経構造可視化ツールを用いて初期表示のための一部データを Ceph クラスタから読み込み、データ通信量を測定した。ストレージデバイスとして NL-HDD を Storage Node-1, 2 に各 10 台, SATA SSD を Node-1, 2 に各 4 台, Node-3 に 1 台用いた。

実験結果 ①データ, メタデータの配置デバイスによる比較を行った。データの配置デバイス(HDD または SSD)による性能差は大きい, メタデータの配置デバイスによる影響は見られなかった。②データを HDD に配置し, 内部メタデータ(DB)/内部ジャーナル, Write-ahead ログ(WAL)に SSD を用いた場合の比較を行った。DB/WAL とメタデータをどちらも SSD に配置した場合のみ, 平均通信時間が約 3.5%短縮した。どちらか一方のみ SSD に配置した場合, SSD を用いなかった場合は, 性能の差がほとんど見られなかった。③データレプリカの数による比較を行った。レプリカ数を 1 から 2 に変更した場合, 平均通信時間はデータを HDD に配置したとき約 3.4%, SSD に配置したとき約 2.0%長くなった。レプリカは冗長性の確保とストレージデバイス同士の状態監視に使用されるため, 分散読み出しのようなメリットは得られなかった。

まとめ 性能評価の結果, データの配置デバイス, レプリカ数によるデータアクセス性能の差異を確認した。データを HDD と SSD に配置した時の性能差はベンチマークの性能差に比べ小さく, HDD にデータを配置した場合, データのシーケンシャル利用と分散配置により SSD との性能差を縮小することができた。メタデータおよび DB/WAL の配置デバイスと使用環境のデータアクセス性能への影響の詳細検討, データ保全のためのレプリカとアクセス性能のトレードオフの解消が今後の課題である。

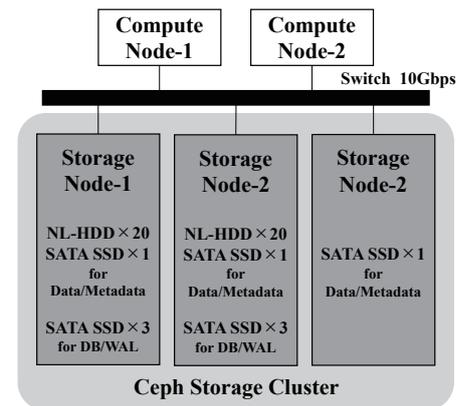


Fig.1 System Configuration

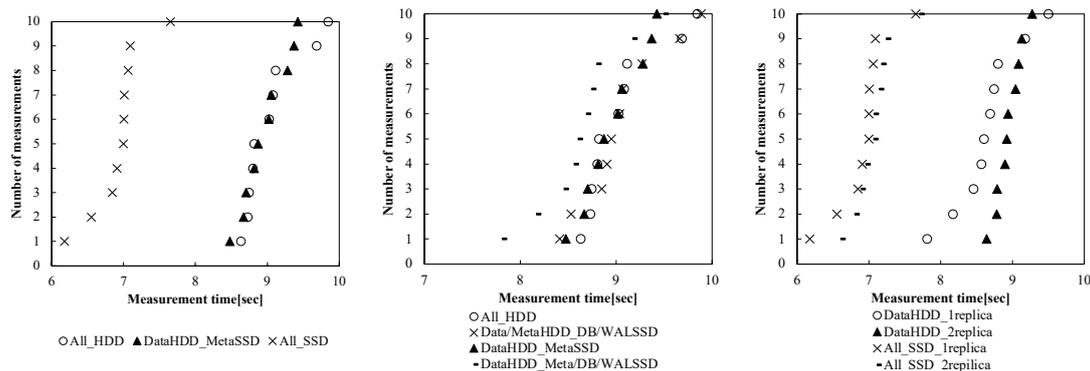


Fig.2 (From the left) ①Difference by data & metadata placement ②Difference when DB/WAL SSD is used
③Difference by number of replications

謝辞 本研究の一部は, JSPS 科研費・基盤研究(B)JP20H02194, 東北大通研共同プロジェクト R02A33, 東北大 AI Yotta の助成を受けたものです。ニューロンデータをご提供頂いた MIT 坂東洋介博士、脳神経構造可視化ツールを提供頂いたキオクシア株式会社に感謝します。

参考文献 [1] S.A.Weil, S.A.Brandt, E.L.Miller, D.D.Long, and C.Maltzahn, "Ceph: A scalable, High-performance distributed file system," Proceedings of the 7th symposium on Operating systems design and implementation, Nov.2006

磁性ナノ粒子分散液の磁気直線二色性周波数スペクトル解析

諏訪 雅頼、江村 一志、塚原 聡
(大阪大)

Frequency spectrum analysis of magnetic linear dichroism in suspension of magnetic nanoparticles

M. Suwa, H. Emura, S. Tsukahara
(Osaka Univ.)

はじめに

磁性ナノ粒子 (MNP) の交流磁場応答を利用した医療・計測技術の発展に伴い、液中に分散した MNP の動的キャラクターゼーション法が求められている。Usov らは数値計算から、交流磁場下における液中 MNP の挙動は、磁気モーメントと容易軸が一体となって回転する”Viscous モード”と、Néel 回転により磁化反転した磁気モーメントにつられて容易軸が回転する”Magnetic モード”に分けられることを示したり。動的磁化曲線の形状からある程度モードの判別ができるが、MNP 自体の回転を観測することでより確からしくなることが期待できる。そこで本研究では、交流磁場で MNP 分散液に誘起される磁気直線二色性 (MLD) から容易軸の回転挙動を観測した。MLD 周波数スペクトルを作成し、その形状から回転モードの判別を試みた。

MLD 測定実験

Voigt 配置 (磁場 ⊥ 光の進行方向) での光測定が可能な空芯スプリット型コイルにバイポーラ電源を接続し、周波数 0.3 Hz ~ 40 kHz、振幅 max. 45 mT の定常的な交流磁場を発生させた。磁場に対して 45° の偏光面を持つ直線偏光 (波長 405 nm) をコイル内の試料溶液に入射した。ウォラストンプリズムで透過光を磁場と平行及び垂直な偏光成分に分離、それらの強度差を差分増幅器で測定、オシロスコープおよびロックインアンプで信号を観察して MLD を見積もった。粒径の異なる酸化鉄 (IO) MNP (直径 14 nm, 22 nm, 30 nm) およびコバルトフェライト (CF) MNP (直径 21 nm) の分散液を測定した。

結果と考察

今回測定したすべての MNP 分散液の MLD は磁場周波数 f の 2 倍で振動した。この振幅 A_{2f} と位相をロックインアンプで精密に測定し、実部 A_{2f}^{Re} と虚部 A_{2f}^{Im} に分けて周波数に対してプロットした。Fig.1 に粒径の異なる IO-MNP の MLD 周波数スペクトルを示す。直径 14 nm と 22 nm の IO-MNP は典型的な緩和型スペクトルを示したが、30 nm の IO-MNP では A_{2f}^{Re} が 10 kHz 付近で負の値をとった。また、異方性定数の大きな CF-MNP でも 30 nm の IO-MNP と同様のスペクトルが観測された。MNP 体積に比例して異方性エネルギーが大きくなる。従って、このスペクトル形状変化は回転モードの違いによるものと考えられる。Magnetic モードと Viscous モードにおける容易軸の振動周波数の違いと、ロックインアンプで測定される $2f$ 信号の位相の値から、スペクトル形状の変化が説明できた。

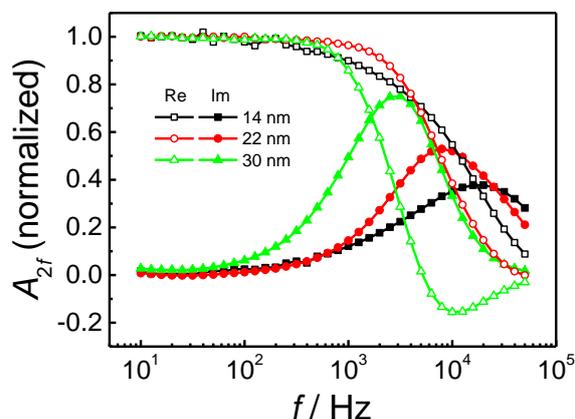


Fig. 1 Frequency spectra of MLD in MNP suspension. Open and filled symbols represent real (in-phase) and imaginary (out-of-phase) components in the $2f$ -oscillation of MLD. The amplitude of the field was 10 mT.

参考文献

- 1) N. A. Usov, B. Y. Liubimov, *J. Appl. Phys.*, **112**, 023901 (2012).

磁性ナノ粒子のパラメータ間相互依存性を考慮した分布推定

後藤春樹¹, 秋田祐加¹, 高橋廉¹, 平野陽豊³, 二川雅登¹, 竹村泰司², 大多哲史¹
(¹静岡大学, ²横浜国立大学, ³藤田医科大学)

Evaluation of distribution of interdepending parameters in magnetic nanoparticles

H. Goto¹, Y. Akita¹, R. Takahashi¹, H. Hirano³, M. Futagawa¹, Y. Takemura², S. Ota¹

(¹Shizuoka University, ²Yokohama National University, ³Fujita Health University)

はじめに

磁性ナノ粒子のバイオ医療応用において、磁性ナノ粒子設計や最適な磁場条件の決定には磁性ナノ粒子の磁気特性を詳しく評価する必要がある。先行研究において、振動試料型磁力計を用いて計測した磁化曲線からランジェバン関数を用いてフィッティングすることで粒径分布が推定されている^{1,2)}。本研究では磁化曲線から、粒径と飽和磁化を変数としてランジェバン関数でのフィッティングを行うことによる、パラメータ間相互依存性を考慮した分布推定に成功した。

実験方法・結果

実験に用いた粒子は市販の粒子である Resovist[®] (富士フィルム RI ファーマ)、synomag[®]-D (Micromod Partikeltechnologie GmbH) を用いた。純水中に分散した各粒子を解析資料として用意した。

Fig. 1 は Resovist[®]に含まれるパラメータ成分をマッピングした分布図を示している。Fig. 2(a)は Fig. 1 に関して式(1)の計算を行うことで粒径の分布としたもので、Fig. 2(b)は Fig. 1 に関して式(2)により飽和磁化の分布を計算したものである。

$$p(d_i) = \sum_k p(M_{s_k} | d_i) \quad (1)$$

$$p(M_{s_i}) = \sum_k p(d_k | M_{s_i}) \quad (2)$$

M_s は飽和磁化、 d はコア粒径、 p は確率を表しており、 k は観測系に含まれる各粒子を表す添え字である。Fig. 1 において、粒径の減少に伴い飽和磁化も減少した。粒子の凝集による双極子相互作用の影響で、飽和磁化が小さくなったと考えられる。Fig. 2(a)の粒径 3-4 nm 付近においては、コア粒子としての振る舞い、6 nm 以上でのピークは凝集体としての振る舞いを表していると考えられる。Resovist[®]の実効的な粒径の分布は、先行研究と概ね傾向が一致している^{1,2)}。講演では解析手法や各粒子の解析結果について詳細に述べる。

謝辞

本研究の一部は、JST ACT-X JPMJAX21A5 及び、科研費 20H02163, 20H05652 の助成を受けて実施した。

参考文献

- 1) T. Yoshida N. B. Othman, and K. Enpuku, *J. Appl. Phys.*, **114**, 173908 (2013).
- 2) S. Ota, S. B. Trisnanto, S. Takeuchi, J. Wu, Y. Cheng, and Y. Takemura, *J. Magn. Magn. Mater.*, **538**, 168313 (2021).

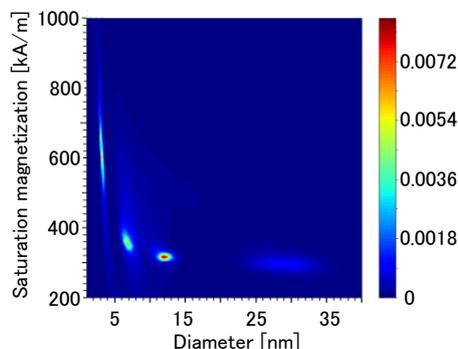


Fig. 1 Estimated distribution of saturation magnetization for each core diameters

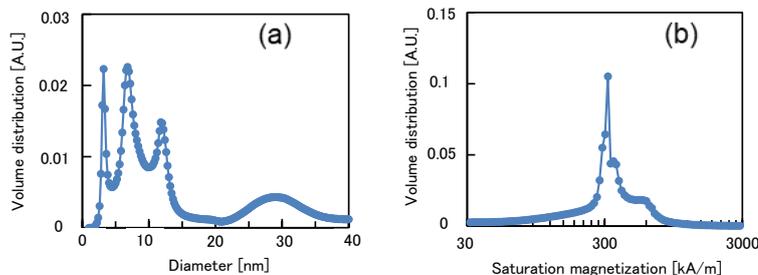


Fig. 2 Estimated distribution of core diameter and saturation magnetization calculated from Fig. 1

鎖状磁性ナノ粒子の磁化の個数依存性に関する基礎研究

張 昊晨、池田 一貴、笹山 瑛由、吉田 敬
(九州大学)Basic research on the number dependence of magnetization of chainlike magnetic nanoparticles
Zhang Haochen, Kazuki Ikeda, Teruyoshi Sasayama, Takashi Yoshida
(Kyushu University)

はじめに

磁性ナノ粒子(MNP)を用いた磁気粒子イメージングや磁氣的免疫検査などの医療応用が注目されている。MNPにはシングルコアと複数のコアが凝集体を形成するマルチコアがあるが、マルチコア型のMNPの磁気特性は定量的には未解明である。以前の研究では、鎖状マルチコア磁性ナノ粒子(CMNP)とそれと等価な鉄量をもつシングルコア磁性ナノ粒子(SMNP)の交流磁化特性について数値解析を行い、等価な鉄量を持つCMNPのほうがSMNPより磁化応答が良いことが分かった。本研究では、鎖状マルチコア磁性ナノ粒子(CMNP)の交流励起磁化特性の磁性コアの個数依存性を調べたので以下に報告する。

解析方法

Fig.1にCMNPのモデル図を示す。コア径と個数を変化させたときの磁化特性を調べた。コア直径6, 8, 10, 12, 14 nmそれぞれに対し、磁性コアの個数を2個から最大で30個まで繋げた鎖状マルチコア磁性ナノ粒子の交流励起磁化特性を解析によって求めた。

LLG方程式により、 i 番目のMNPの磁化の単位方向ベクトル \mathbf{u}_i の計算を行った。ただし、交流励起磁界 $H_{ex} = H_{ac} \sin \omega t$ は z 軸方向とした。

また、有効磁界 \mathbf{H}_{eff} は、(1)式に示すように励起磁界 \mathbf{H}_{ex} 、異方性磁界(第二項)、双極子相互作用磁界(第三項)、熱雑音磁界 \mathbf{H}_{th} の和で表すことができる。

$$\mathbf{H}_{eff} = \mathbf{H}_{ex} + \frac{2K}{M_s} (\mathbf{u}_i \cdot \mathbf{n}_i) \mathbf{n}_i + \sum \frac{1}{4\pi r_{ji}^2} \left(\frac{3\mathbf{m}_j \mathbf{r}_{ji}}{r_{ji}^3} \mathbf{r}_{ji} - \mathbf{m}_j \right) + \mathbf{H}_{th} \quad (1)$$

ここで、 \mathbf{n}_i は磁化容易軸の単位方向ベクトルを表しており、 z 軸方向に固定されているとした。(1)式の右辺第三項は双極子相互作用磁界であり、 \mathbf{m}_j は j 番目のMNPの磁気モーメントベクトルを表す。また、Fig.1に示すように、CMNPにおいて隣り合ったMNPは接触しているものとした。本解析では、 $\mu_0 H_{ac} = 10$ mT、励起周波数を100 kHz、飽和磁化 $M_s = 400$ kA/m、異方性定数 $K = 10$ kJ/m³とした。

解析結果

Fig.2に基本波磁化の実部の個数依存性を示す。磁性コアを10個以上繋げても磁化がほぼ一定になっていることが分かる。これは、10個以上磁性コアを繋げても磁性コア間の距離が遠くなるため、磁気双極子相互作用があまり増加(変化)しないためだと考えられる。また、コア径 d を大きくするほど励起磁界に対する双極子相互作用磁界が大きくなり、磁化が大きくなったが、Fig.3に示すように $d = 12$ nmから位相遅れが表れ、 $d = 14$ nmでは磁化が大きく下がっていた。これは、コア径が大きくなると、一つ一つの磁性コアの交流励起磁界に対する応答性が低下するためである。以上の結果から、本研究の交流励起磁界の条件では、磁性コアサイズは10~12 nm程度で10個以上磁性コアを繋げることで、磁化が大きくなりほぼ一定の磁化が得られることが分かった。

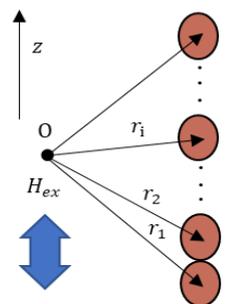


Fig.1. Schematic structure of chainlike MNPs.

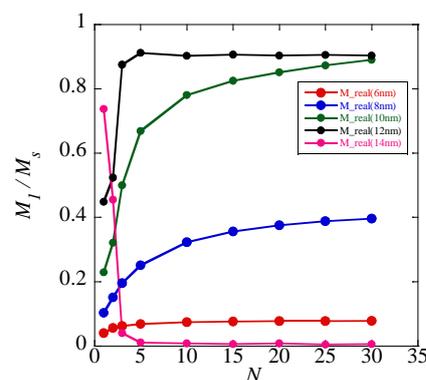


Fig.2. Relationship between the real part of the fundamental component of the magnetization and the number of MNPs.

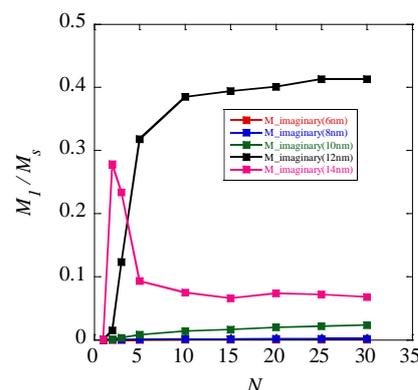


Fig.3. Relationship between the imaginary part of the fundamental component of the magnetization and the number of MNPs.

腫瘍内における磁性ナノ粒子の磁気特性評価

本多勁汰¹, 清水広介², 二川雅登¹, 竹村泰司³, 大多哲史¹
(¹静岡大学, ²浜松医科大学, ³横浜国立大学)

Evaluation of magnetic relaxation of magnetic nanoparticles in tumors

K. Honda¹, K. Shimizu², M. Futagawa¹, Y. Takemura³, and S. Ota¹

(¹Shizuoka University, ²Hamamatsu University School of Medicine ³Yokohama National University)

はじめに

磁性ナノ粒子を用いたハイパーサーミアは、身体的負担や副作用が少ない新たながん治療技術として期待されており、実用化に向けた研究が盛んに行われている。特に、実用化においては、粒子の磁気緩和特性の評価は必要不可欠である。既にマウスから切り離された腫瘍内での粒子に関して交流磁化測定を行い、磁気緩和特性の評価を行った研究が報告されている¹⁾。本研究では、マウスに移植された状態の腫瘍内に投与した磁性ナノ粒子についての磁化ダイナミクスを解明することを目的とし、パルス磁場を用いた磁気緩和特性測定²⁾を実施した。

実験方法・結果

本研究では、 γ -Fe₂O₃ ナノ粒子(Resovist®, FUJIFILM Toyama Chemical Co., Ltd.)を測定試料として用いた。腫瘍における計測では、短径 10.8 mm、長径 13.3 mm の腫瘍に、140 mg-Fe/mL の磁性ナノ粒子を 10 μ L 直接投与した。比較試料としては、溶媒の粘度が 0.089, 0.89, 8.9 mPa \cdot s の液状試料と、エポキシ樹脂により固定した固体状試料を用意し、特に粘度 0.89, 8.9 mPa \cdot s の液状試料については、水に加えてグリセリンにより粘度の調整を行った。直径 8.5 mm、高さ 9.5 mm の円柱状容器に粒子濃度が腫瘍内に近い 2.64 mg-Fe/ml になるように調整した。印加するパルス磁場に関するパラメータは、磁場強度を 0.79 kA/m、立ち上がり時間を 22.5 μ s とした。

Fig. 1 にパルス磁場を印加した際の、液体(89 μ Pa \cdot s)、高粘度(890 μ Pa \cdot s、8.9 mPa \cdot s)、固体の計 4 サンプルから得られた粒子の磁気緩和特性を示した。ここで、液状試料について、パルス磁場を印加することで 2 段階に変化する波形が得られ、特に 2 段階目の変化をブラウン緩和に由来する磁性ナノ粒子の磁気緩和特性と考えられる²⁾。本研究では、磁場の立ち上がり時間がネール緩和時間よりも遅いため、1 段階目の変化は、磁場の遷移に追従する磁気モーメントの回転が表れている。液体から高粘度になるに従い、ブラウン緩和時間が長くなるため、2 段階目の立ち上がりの時間が遅くなることを確認した。対して固体試料では、ブラウン緩和に相当する 2 段階目の立ち上がりが確認されなかった。

パルス磁場を印加した際の、マウスに移植された状態の腫瘍内から得られた磁性ナノ粒子の磁気緩和特性は固体サンプルに類似した状態にあることを確認した。講演では、液体、高粘度、固体サンプルの磁気緩和特性の結果及び、腫瘍内における粒子の磁気緩和特性の原因の考察について詳細に述べる。

謝辞

本研究の一部は、科研費 20H05652、20H02163 および、公益財団法人テルモ生命科学振興財団の助成を受けて実施した。

参考文献

- 1) S. Dutz, M. Kettering, I. Hilger, R. Müller, and M. Zeisberger, *Nanotechnology*, **22**, 265102 (2011).
- 2) S. Ota and Y. Takemura, *J. Phys. Chem. C*, **123**, 28859–28866 (2019).

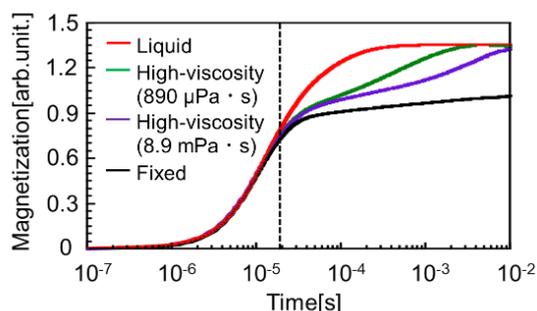


Fig. 1 Magnetic relaxation properties in the liquid high-viscosity, and fixed samples.

Development of gold-coated magnetic nanoparticles for magnetic hyperthermia and micro-CT imaging applications

Loi Tonthat¹, Tomoyuki Ogawa¹, Narufumi Kitamura², Yoshio Kobayashi³, Kohsuke Gonda², Shin Yabukami¹

¹Graduate School of Engineering, Tohoku University, Miyagi 980-8579, Japan

²Graduate School of Medicine, Tohoku University, Miyagi 980-8575, Japan

³Graduate School of Science and Engineering, Ibaraki University, Ibaraki 316-8511, Japan

Gold-coated magnetic core-shell nanoparticles have attracted much interest due to their potential applications in cancer therapy through the combination of target drug delivery, diagnostic imaging, and magnetic hyperthermia which would greatly increase the treatment efficacy. In previous studies, we developed a simple magnetic hyperthermia system¹⁾, as well as synthesized water-soluble iron oxide magnetic nanoparticles²⁾ and gold nanoparticles³⁾ with a size of sub-10 nanometer. In this study, the development of gold-coated Fe₃O₄ (Fe₃O₄@Au) nanoparticles as therapeutic and diagnostic (theranostic) agents for magnetic hyperthermia and micro-CT imaging applications is presented.

The synthesis of Fe₃O₄@Au involved the sequential formation of the Fe₃O₄ core and Au shell. First, the Fe₃O₄ nanoparticles were synthesized via thermal decomposition method that reduced iron (III) oleate using 1,2-hexadecanediol in the mixture of oleylamine and oleic acid as capping agents. Gold was then deposited onto the surface of Fe₃O₄ nanoparticles by reducing gold acetate using 1,2-hexadecanediol in the mixture of oleylamine and oleic acid at 190°C (the mole ratio of Au precursor to Fe₃O₄ was approximately 7:1). The synthesized nanoparticles were characterized by TEM, XRD, EDS, DLS, and magnetization measurements. Figure 1 shows the TEM images and photographs of Fe₃O₄ and Fe₃O₄@Au nanoparticles and their magnetization curves at 300K. The Fe₃O₄ nanoparticles after coating with Au appeared much darker than the Fe₃O₄ nanoparticles due to the generation of contrast depending on the atomic number of atoms composing the nanoparticles. The average sizes of Fe₃O₄ and Fe₃O₄@Au are 5.2 nm and 6.1 nm, respectively, and the average thickness of the Au coating is 0.45 nm. The magnetization of Fe₃O₄@Au nanoparticles (9.7 emu/g-Fe₃O₄) at 300K was much smaller than that of Fe₃O₄ nanoparticles (52.4 emu/g-Fe₃O₄). This decrease is considered to be due to a decrease in magnetic moment coupling as a result of the increased interparticle spacing of the magnetic core by gold shell and organic capping agents. We are evaluating the synthesized Fe₃O₄@Au nanoparticles as a heating agent for magnetic hyperthermia and a contrast agent for micro-CT imaging.

References

- 1) A. Shikano *et al.*, *Trans. Magn. Soc. Jpn.*, 6(1), 100-104, (2022)
- 2) L.Tonthat *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, 54 (7), 5400506, (2018)
- 3) T. Inose *et al.*, *Colloids Surf. B: Biointerfaces*, 203, 111732, (2021)

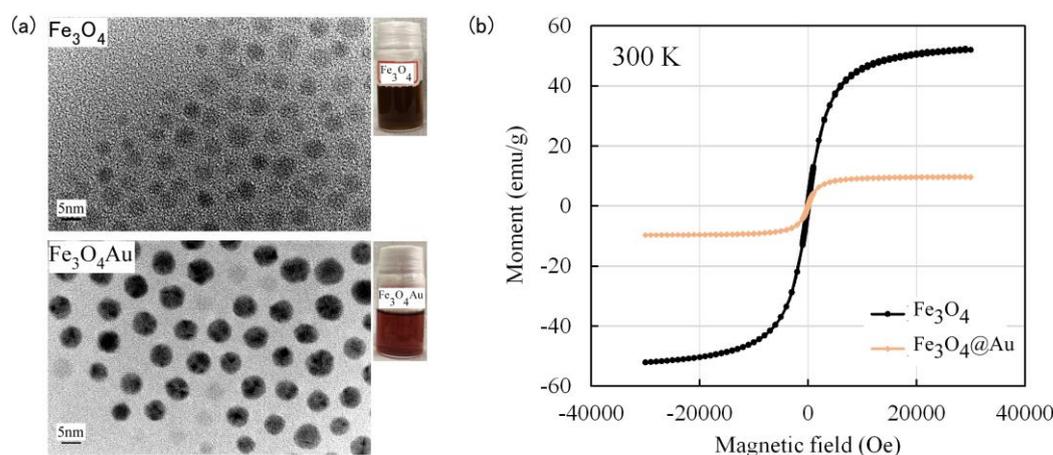


Fig. 1 (a) TEM images and photographs of the diluted hexane solutions of Fe₃O₄ and Fe₃O₄@Au nanoparticles, and (b) magnetization curves for dried Fe₃O₄ and Fe₃O₄@Au nanoparticles at 300K.

商用超磁性磁性ナノ粒子の交流磁化・自己発熱特性

尾花洋輝¹、大多哲史²、竹内誠治¹、Suko Bagus Trisnanto¹、山田努¹、竹村泰司¹
(¹横浜国立大学, ²静岡大学)

AC magnetization and self-heating properties of commercial superparamagnetic magnetic nanoparticles
Hiroki Obana¹, Satoshi Ota², Seiji Takeuchi¹, Suko Bagus Trisnanto¹, Tsutomu Yamada¹, Yasushi Takemura¹
(¹Yokohama National Univ., ²Shizuoka Univ.)

はじめに

磁性ナノ粒子を発熱体とする磁気ハイパーサーミアを広く臨床実用するためには、発熱量の向上、特に発熱効率の向上が求められている。そのためには発熱効率、即ちより低振幅かつ低周波数の交流磁界の印加で如何に高い発熱を得るかということが重要となる¹⁾。そのためのアプローチとして私達は磁性ナノ粒子の発熱特性、発熱機構の解明を目指している²⁾。本発表では、3つの商用超常磁性ナノ粒子としてResovist[®]、MS1 (Resovist[®]の原料であるFerucarbotranを磁気分画した比較的粒径の大きな粒子)³⁾、Synomag[®]-Dを試料として、それぞれの直流・交流磁化特性を測定し⁴⁾、発熱特性を考察した結果を報告する。

実験方法・結果

測定粒子として、MRIの肝臓造影剤として臨床利用されているResovist[®]、その原液であるFerucarbotranを磁気分画して抽出した比較的粒径の大きな粒子群であるMS1 (名糖産業株式会社)、及び γ -Fe₂O₃粒子が凝集して形成されたナノフラワー構造を持つマルチコア粒子であるSynomag[®]-Dの3種類を使用した。Resovist[®]が6–21 nmのコア径分布を有するところ、MS1のコア径は21.6 nm程度となる。液中試料及びエポキシで粒子を固定した固定試料を作製した。試料濃度はいずれも2 mg-Fe/mLとした。それぞれの試料の直流磁化特性、交流磁化特性を測定した。交流磁化測定では、 $H_{AC}=5-30$ mT/ μ_0 、周波数 $f=1-600$ kHzの交流磁界を印加した。

Fig. 1にSynomag[®]-Dの液中試料の直流・交流磁化曲線を示す。印加周波数が増加すると、最大磁化が減少することが確認できた。当日はこの結果についての詳細や他の粒子についての結果、算出した発熱量SLP、発熱効率ILPを報告する。

参考文献

- 1) H. Mamiya, B. Jeyadevan, *Sci. Rep.* 1, 157, 2011.
- 2) G. Shia *et al.*, *J. Magn. Magn. Mater.*, 473, 148-154, 2019.
- 3) T. Yoshida *et al.*, *J. Appl. Phys.*, 114, 173908, 2013.
- 4) S. Ota *et al.*, *J. Magn. Magn. Mater.*, 535, 168313, 2021.

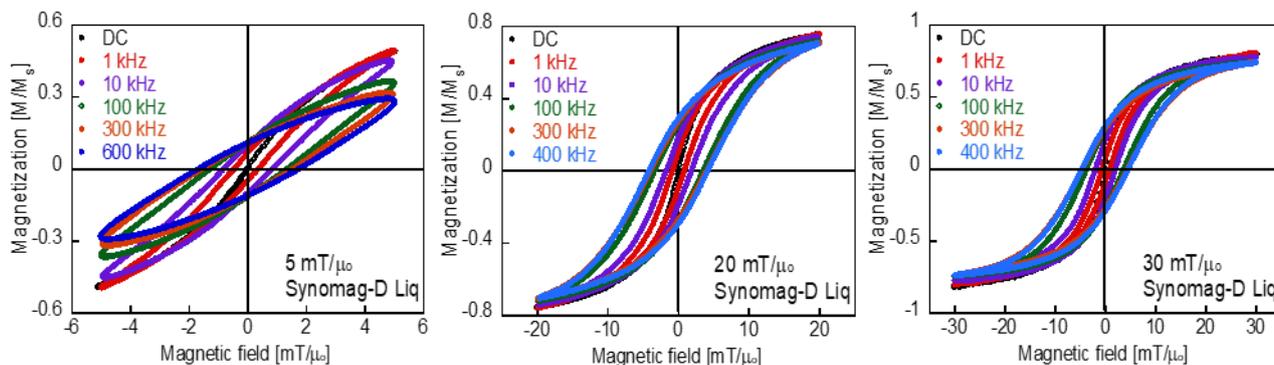


Fig. 1 AC hysteresis loops of the liquid sample of Synomag[®]-D.

高周波パルス磁界印加による磁性粒子の加熱

安達 友威¹, 桑波田 晃弘¹, 薮上 信¹, 中村 英滋²

(¹東北大学,²高エネルギー加速器研究機構)

Heating of magnetic particles by application of high frequency pulsed magnetic field

Yuui Adachi¹, Akihiro Kuwahata¹, Shin Yabukami¹, Eiji Nakamura²

(¹Tohoku University, ²High Energy Accelerator Research Organization)

1. はじめに

磁気ハイパーサーミア (Magnetic Hyperthermia) において、印加する交流磁界波形の変化が、磁性体の加熱効率の向上につながる^[1]。特に、波形の立ち上がり速度が速いパルス波は、磁性体の磁化と印加磁界の位相のずれを生むため、加熱効果が高いことが予想される^[2]。本研究では、高周波パルス磁界を印加した磁性粒子の加熱特性を測定し、加熱効率の高い磁界波形について報告する。

2. 実験系と実験方法

Fig. 1 にパルス磁界印加実験の実験系を示す。本実験系は、インダクタとコンデンサを用いたパルス磁界発生回路、加熱用コイル、光ファイバー温度計 (OptoTemp 2000, micromaterials) で構成される。磁性粒子加熱のためのコイルは、内径 12 mm, 外径 20 mm, ピッチ 51 mm の 8 巻である。パルス磁界発生回路は、インパルス磁界形成回路とロングパルス磁界形成回路の 2 種類であり、入力電源電圧 100 V で、それぞれ加熱用コイルに 22.5 A_{pp}, 16.0 A_{pp} の電流を出力することができる。波形の立ち上がりは、どちらも 2.0 μs である。直径 3 mm の炭素鋼球 30 個と水 1.5 ml をガラスビンに入れ、加熱用コイルの中心に設置し、インパルス磁界、ロングパルス磁界をそれぞれ 300 秒間印加し、温度変化を光ファイバ温度計で測定することで、2 種類の印加磁界がもつ加熱効率の比較を行った。測定は同条件で 3 回ずつ行い、平均値を求めた。

3. 結果

Fig. 2 に印加磁界波形と磁性粒子の温度変化 (インパルス) を示す。パルス磁界 4.0 mT_{pp} を 300 秒間印加した時の炭素鋼球の温度変化は、インパルス、ロングパルス磁界それぞれ +10.9 °C, +17.2 °C であった。つまり、等しい振幅値での加熱効果は、ロングパルス磁界の方が 1.58 倍大きいことが確認できた。

また、それぞれの磁界について、熱出力を加熱コイルの磁束密度による磁気エネルギーで規格化することで、加熱効率を求めた。その結果、インパルス磁界はロングパルス磁界と比較して 1.52 倍の加熱効率をもつことが確認できた。このことは、インパルス磁界の duty 比が、ロングパルス磁界と比べて小さいことに起因すると考えられる。磁化が外部磁界に対して十分に追従した場合、duty 比が小さい波形の方が入力エネルギーは小さいため、加熱効率は大きくなる。したがって、インパルス磁界の加熱効率が大きくなったと考えられる。

4. まとめ

2 種類の磁界を用いた磁性粒子加熱実験を行うことで、ロングパルス磁界と比較して、インパルス磁界の加熱効率が 1.52 倍大きいことを確認した。今後の予定として、正弦波磁界との加熱比較実験を行い、パルス磁界の加熱効率が大きいことを実証する。

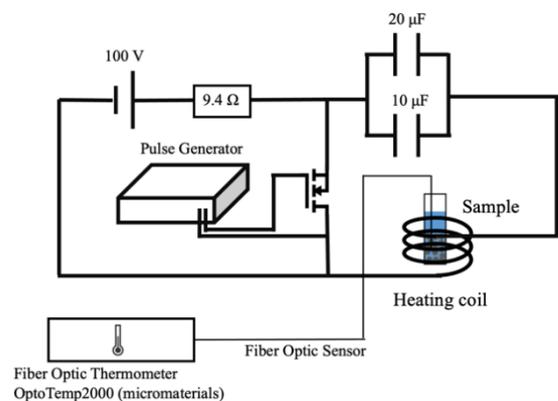


Fig. 1 Pulse heating experimental system

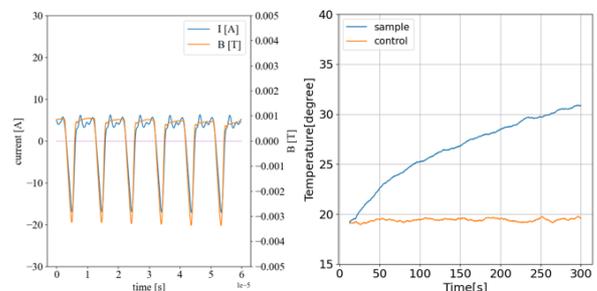


Fig. 2 Pulse waveform and Sample temperature

参考文献

- 1) M. Zeinoun et al. : *Nanomaterials*, Vol.97, 093705(2010)
- 2) S. Morgan et.al. : *Applied Physics Letters*, Vol.11, 123240(2021)

謝辞

本研究は、KEK 令和 4 年度加速器科学総合育成事業、及び KEK 共同開発研究 2022-ACCL-1, AMED プロジェクト (22ym0126802j0001) の支援を受けた。

多チャンネル計測のためのフィードバック型 Peak to Peak 検出 MI センサの開発

井立聖二、内山剛、馬家駒*
(名古屋大学、*豊田中央研究所)

Development of Feedback Type Peak to Peak Voltage Detector MI Gradiometer for multichannel measurement

S. Idachi, T. Uchiyama, J. Ma.
(Nagoya Univ., *Toyota Central R&D Labs., INC.)

はじめに

表皮効果を利用した Magneto-Impedance (MI) 磁気センサは小型で非常に高い磁場感度を持ち、広いダイナミックレンジを持つことからシールドルーム外において脳磁場や心磁場といった微小な生体磁場を計測するセンサとして期待されている。当研究室では Peak to Peak 検出 MI センサをグラジオメータ化することによりノイズフロア 700fT (at 10Hz) を達成している[1]。一方で、高い磁場感度により回路のダイナミックレンジが制限されることで、シールドルーム外において多チャンネル計測をすることが困難である。そこでアモルファスワイヤにフィードバックコイルを巻くことで、ダイナミックレンジの拡張および磁場感度の向上を目指す。

実験方法

図1に実験で使用した MI センサヘッドの模式図を示す。フィードバックの選送差 $F=1.86$ である。外部磁場をヘルムホルツコイルで準静的 (1Hz) に変化させたときの検出特性を計測した。

また、シールドルーム外における磁気ノイズスペクトル密度を計測し、フィードバックによるノイズフロアの影響を確認した。

実験結果

図2にフィードバックをかける前及びかけた後の、グラジオメータ MI センサの検出特性を示す。フィードバックをかける前の磁場感度がそれぞれ 255490V/T (センシング)、378940V/T (リファレンス) なのに対し、フィードバック後の磁場感度がそれぞれ 202640V/T (センシング)、221990V/T (リファレンス) となり、磁場感度差 Δ がフィードバック前では 48% なのに対し、フィードバック後は 9.5% となった。図2から、フィードバックによりグラジオメータの MI センサ同士の磁場感度差が減少することが分かった。

図3にフィードバックあり及びなしの時の磁気ノイズスペクトル密度比較を示す。図3よりフィードバック前は 20pT (at 10Hz) のノイズフロアが、フィードバック後は 10pT (at 10Hz) となり、ノイズフロアが低減することを確認できた。

参考文献

[1] J.Ma, and T.Uchiyama, IEEE Trans. Magn., VOL. 53, NO. 11, (2017).

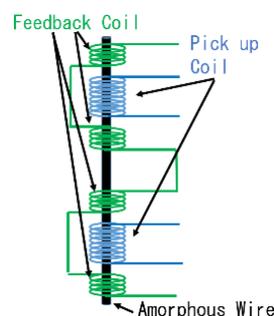


Fig. 1 Feedback Type MI sensor

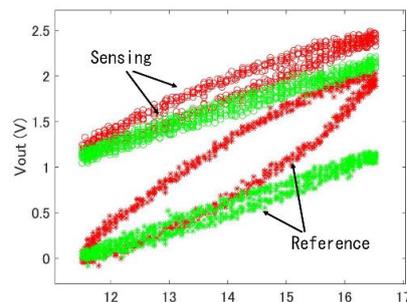


Fig. 2 Field detection characteristics of two MI element in the Feedback Type MI Gradiometer. Red line: Before Feedback. Green line: After feedback.

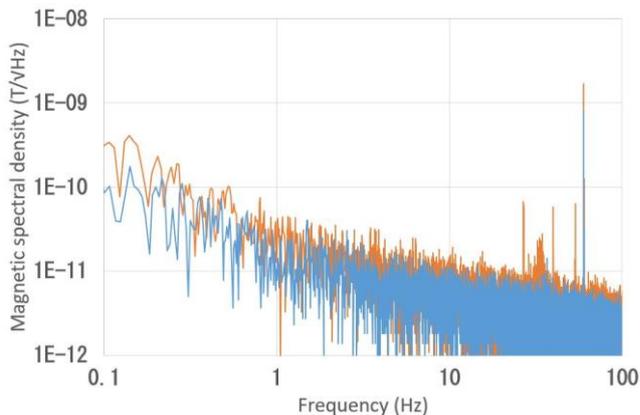


Fig. 3 Magnetic noise spectral density. Red line: Before feedback. Blue line: After feedback.

位置ずれを伴う心磁図の信号源推定における センサ位置と解析空間に関する研究

岩井守生¹, 小林宏一郎¹, 孫文旭²

¹ 岩手大学理工学部 ² 近畿大学工学部

Misalignment of Sensor Position and Analysis Area on Current Source Estimation of MCG.

Morio Iwai¹, Koichiro Kobayashi¹, Wenxu Sun²

¹Faculty of Science and Engineering, Iwate University, Iwate 020-8551, Japan

²Department of Engineering, Kinki University, Hiroshima 739-2116, Japan

はじめに

心磁図は、心疾患の診断に有効であり、近年臨床研究において注目されている、特に、心磁図は人体の透磁率が一定であることなどから、心筋内の電流分布の推定に有用である。現在多くの場合、空間フィルタ法を用いて心筋内の電流源推定が行われている。算出方法の違いにより、様々な手法が提案されているが、本研究では、再構成磁場精度が高く、過剰な広がりや抑制可能な eLORETA 法¹⁾を採用した。また、シミュレーションでは心臓を挟むように胸部側・背中側の2つの測定面を用いて信号源推定することで推定精度が向上することが知られている。しかし臨床データを用いた複数測定面の信号源推定では、胸部側・背中側の測定面の位置ずれを考慮する必要がある²⁾。そこで本研究では、特にセンサと心臓の位置関係による位置ずれについて検討する。位置ずれによる推定精度への影響を検討するため、心磁図の磁場分布に着目し、測定面と解析空間の位置を疑似的に修正する方法を提案する。測定面と解析空間の位置関係の違いによる推定解の影響を検討し、推定精度の向上を目指す。

検討方法

測定面が解析空間の直上に存在するとして解析する従来法、R波ピーク時の電流アロー図の電流強度最大の位置が解析空間のxy座標中心に位置するように各測定面および解析空間位置を変更する解析空間移動法および解析空間移動法後に得られた推定電流情報をもとに測定面の空間座標上に磁場を再構成する磁場再構成法を比較し、測定面と解析空間のずれによる推定解への影響を検討する。検討には実際の測定における位置ずれを再現した心臓モデルを用いて行った。

検討結果

3つの推定方法を比較した結果、測定面と解析空間のずれの影響により、推定解が広がることが分かった。表1に推定解の広がりや評価として各方法による推定解のボクセル数を示す。これらの結果より、実際に起こる位置ずれや測定対象の個人差によるずれを考慮して、推定を行う際の条件を最適化する必要性があることが分かったため報告する。

表1. 検討結果 (ボクセル数)

解析領域	従来法	解析空間移動法	磁場再構成法
ボクセル数	296	205	157

参考文献

- 1) R. D. Pascual-Marqui. "Discrete, 3D distributed, linear imaging methods of electric neuronal activity. Part 1: exact, zero error localization.", arXiv :0710.3341 [math-ph], vol. 1, pp. 1-16, Oct. 2007.
- 2) K. Kobayashi, M. Iwai, Y. Ono, W. Sun, M. Sugimachi, K. Kusano, and T. Shishido, "Magnetocardiography Current Source Estimation using Multiple Spatial Filters", J. Magn. Soc. Jpn., 45, 131-135 (2021)

高調波磁化を用いた磁性ナノ粒子の状態識別

山村柊哉、五藤仁哉、安武茉莉、圓福敬二、吉田敬
(九州大学)

State identification of magnetic nanoparticles using harmonic magnetization
Shuya Yamamura, Jinya Goto, Mako Yasutake, Keiji Enpuku, Takashi Yoshida
(Kyushu University)

はじめに

ナノメートルサイズの磁性ナノ粒子を用いた画像診断手法として、磁性ナノ粒子からの高調波磁化信号を検出し対象の位置を特定する、磁気粒子イメージング (Magnetic Particle Imaging, MPI) が提案されている。MPIにおいて、粒子が検出対象と結合したか否かを判別した上で正確な位置を特定する技術の開発が必要とされている。また、トレーサの候補としてMS1 (Meito Sangyo, Japan)、Synomag (Micromod, Germany)、Perimag (Micromod, Germany) がある。本研究では、これらの磁性ナノ粒子が検出対象と結合したか否かを液相と固相状態で模擬した混合サンプルにおいて状態を識別し、含まれる鉄量の推定を行った。さらに特異値分解法により鉄量推定の評価を行った。

実験方法

1つの容器に液相、固相状態の磁性ナノ粒子が混在しているサンプルに交流励起磁界を印加し、粒子の磁化信号から液相・固相それぞれに含まれる磁性ナノ粒子の鉄量推定を行った。推定するにあたり初めに、液相・固相それぞれの鉄量 $1 \mu\text{g}$ あたりの磁化信号を取得した。次に、磁化信号の第三、第五高調波成分の実部と虚部の中から、どの組み合わせを用いて推定を行うべきか、特異値を用いて評価した。最後に、すべての信号成分の組み合わせで鉄量推定を行い、推定誤差と特異値との関係を評価した。

実験結果

励起周波数 20 kHz と 3 kHz の2条件について実験を行った。磁性ナノ粒子はPerimag, Synomag, MS1の3つを使用した。Fig.1 (a), (b)に励起周波数 20 kHz の場合の、MS1を用いて行った鉄量推定の結果と信号の組み合わせごとの特異値と誤差の標準偏差の関係をそれぞれ示す。特異値と装置のノイズから想定される誤差よりも大きな推定誤差が出たが、特異値と推定誤差に相関関係があり特異値を用いて推定に使用する信号を評価できることを確認した。再現性について確認すると測定誤差に比べサンプル誤差が大きくなっておりサンプル作製の精度が低いことが確認できた。3 kHz では固相の誤差が大きくなることと特異値が大きくなる組み合わせが20 kHzと異なっているという特徴があったが同様に特異値を用いて使用する信号を評価できた。

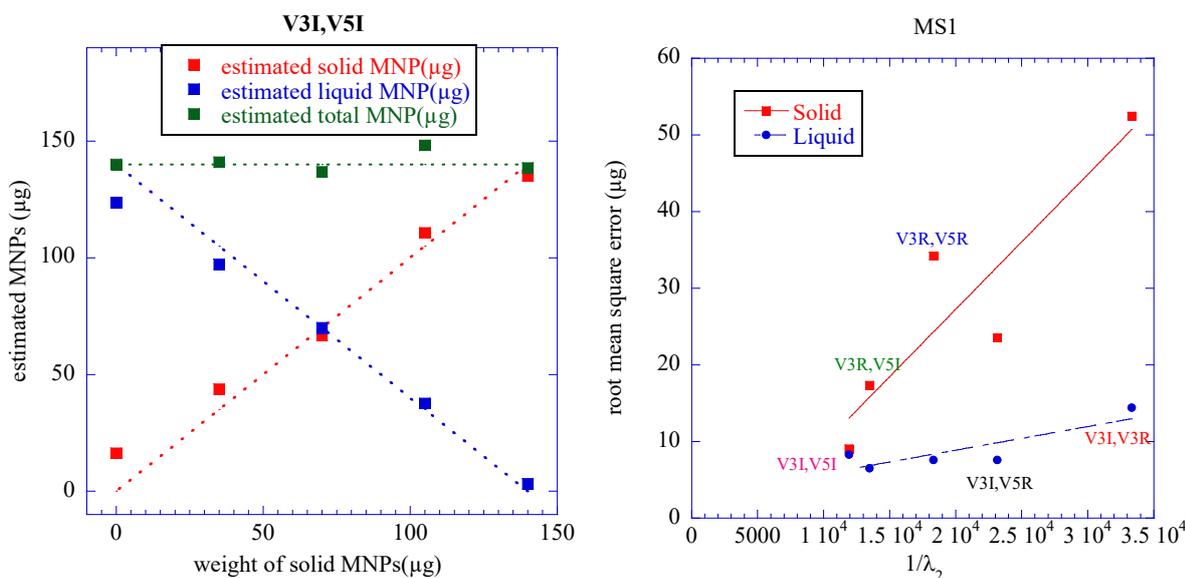


Fig.1 (a) Iron content estimation for MS1

(b) Root mean square error vs. singular value for MS1

Method for Rapid Detection of Bacteria Using Magnetic Nanoparticle Aggregates

Y. Pu¹, H. Zhao², T. Murayama³, L. Tonthat², K. Okita³, Y. Watanabe³, S. Yabukami^{1,2,3}

¹School of Engineering, Tohoku University, Sendai 980-8579, Japan

²Graduate School of Engineering, Tohoku University, Sendai 980-8579, Japan

³Graduate School of Biomedical Engineering, Tohoku University, Sendai 980-8579, Japan

A novel method for rapid detection of bacteria was developed using magnetic nanoparticles with antibodies embedded in them. Fig. 1 shows the basic structure of the detection system. The constructed system consists of drive coil, pick-up coil with yoke inside, magnet, signal generator (AWG1005), preamplifier (SR560) and lock-in amplifier (LI5640, sensitivity was 1 V and time constant was 300 ms). To detect bacteria, each sample contains magnetic nanoparticles (0.2 μl , 500 nm ϕ , Nanomag-D). And the OD (Optical Density) value of five *Fusobacterium nucleatum* samples varies from 0.0001 to 1 with ten times increase for each sample. One sample only magnetic nanoparticles without *Fusobacterium nucleatum* was added, which is six samples in total. It is necessary to put the sample on the yoke to get sample magnetized and aggregated, as such the stray field of the aggregate can be picked up easier by pick-up coil. As for drive and pick-up coils, an LVDT (Linear Variable Differential Transformer) structure was used to detect small signal generated from the aggregate as two output signals of pick-up coil cancel so the output voltage is theoretically zero before detection. According to the equation relationship between magnetization / magnetic field and voltage, it would be possible to calculate magnetic susceptibility when both two voltages detected. Considering the influence of microtube itself and solution of sample inside, the voltage of the sample was also measured and calculated to get higher accuracy. For each detection, signal generator generates five signals with a same voltage of 200 mV and different frequencies of 110, 310, 1010, 3010 and 10010 Hz. Fig. 2 shows the concentration dependence of magnetic susceptibility of *Fusobacterium nucleatum*. In all frequencies tested, it shows that when the concentration of the sample (OD value) increases, the magnetic susceptibility decreases. The reason for this phenomenon is that when the OD increases, the distances between magnetic particles also increase because there is a larger number of *Fusobacterium nucleatum* in the aggregate, thus magnetic field generated by aggregate gets weaker and causes this phenomenon. Furthermore, we found that as the frequency of input signal increases, the magnetic susceptibility decreases. It is considered that as the frequency increases, the change rate of the magnetic flux passing through the pick-up coil increases, which makes the voltage generated by drive coil increase, causing magnetic field of drive coil increase. As magnetic field of drive coil is considered as denominator during the calculation of magnetic susceptibility, thus magnetic susceptibility decreases.

Acknowledgement: This research was supported by AMED under Grant Number 22ym0126802j0001, and the Comprehensive Growth Program for Accelerator Sciences and the Joint Development Research 2022-ACCL-1 at High Energy Accelerator Research Organization (KEK). This work was supported by JSPS KAKENHI Grant Number 21K04090.

Reference

- 1) S. Yabukami et. al., *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 58 (2022, in press).

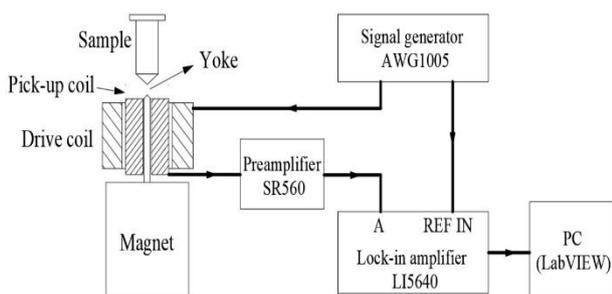


Fig. 1 Schematic view of the detection system.

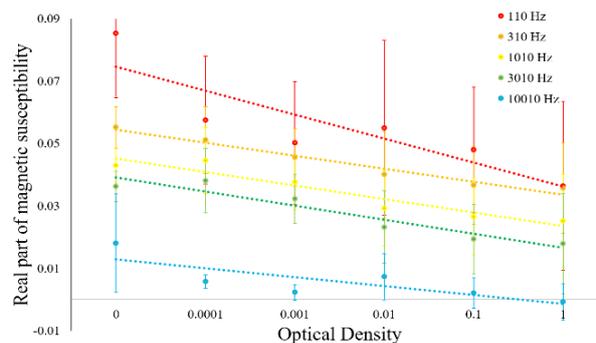


Fig. 2 Concentration dependence of *Fusobacterium nucleatum*.

A simple antigen-antibody reaction using ultrasmall FeCo nanoparticles

L. Tonthat¹, T. Murayama², N. Kobayashi³, S. Yabukami^{1,2}, W. Ikeda-Ohtsubo⁴, K.I. Arai³

¹Graduate School of Engineering, Tohoku University, Miyagi 980-8579, Japan

²Graduate School of Biomedical Engineering, Tohoku University, Miyagi 980-8579, Japan

³Research Institute for Electromagnetic Materials, Denjiken, Tomiya 981-3341, Japan

⁴Graduate School of Agricultural Science, Tohoku University, Miyagi 980-8570, Japan

Antibody-conjugated magnetic nanoparticles (MNPs) have attracted considerable attention in bioseparation and clinical diagnostics assays. By utilizing the antigen concentration-dependent magnetic response of MNPs-antibody-antigen aggregates under a switching magnetic field, we developed a user-friendly and rapid detection system of oral bacteria in the liquid phase for point of care testing¹⁻²). To improve the detection sensitivity for smaller antigens, we also synthesized ultrasmall iron oxide MNPs with an average particle size of 4 nm and proposed a novel method for adsorbing antibodies directly on their surface without coating any proteins³). Although the smaller MNPs have a greater surface-to-volume ratio to interact with bacteria or viruses, their saturation magnetization decreases with decreasing their size. Therefore, in this study, to enhance their magnetic moment without increasing their size, we examine FeCo nanoparticles with a high magnetic moment for bacteria or virus detection.

FeCo nanoparticles used in the experiment were collected by dissolving the fabricated FeCo-BaF films in water since Ba-F in the matrix was deliquescent. Here, the FeCo-BaF thin films composed of crystal phase of BaF₂ matrix and FeCo alloy MNPs (Fe:Co:Ba:F=14:11:21:54 at.%) were fabricated using a RF sputtering tool⁴). Our experiment showed that the FeCo nanoparticles well dispersed in water could not be collected by the magnet. As such, we used ultracentrifugal separation (110,000 rpm, 90 min) to collect them as well as the antibody (abcam ab53891)-conjugated FeCo MNPs and the antigen (*Candida albicans*)-antibody FeCo MNPs. Figure 1(a) shows the magnetization curve of FeCo-BaF film and the TEM image of FeCo MNPs. Considering that the magnetization of the film is caused by the FeCo alloy MNPs in the film, the magnetization of ~5 nm FeCo nanoparticles at 1.4 T could be estimated at approximately 13 kG. Figure 1(b) shows the number of *Candida albicans* counted from the micrographs of the aggregates of FeCo MNPs and *Candida albicans*. By adding sonication treatment of the film before bounding them to antibodies, the number of bacteria bound to FeCo MNPs increased significantly. The success of antigen-antibody reaction of ultra-small magnetic nanoparticles improves detection sensitivity as well as offers potential detection for smaller biomolecules.

Acknowledgements: This research was supported by AMED under Grant Number 22ym0126802j0001, by High Energy Accelerator Research Organization (KEK) under the Comprehensive Growth Program for Accelerator Sciences and the Joint Development Research 2022-ACCL-1, and Japan Society for the Promotion of Science through Grants-in-Aid for Scientific Research (KAKENHI) under Grant 20K20210 and 21K04090.

References

1) L.Tonthat *et al.*, AIP Advances, 9 (12), 125325 (2019); 2) S. Yabukami *et al.*, IEEE Trans. Magn., 58, (2022) (in press); 3) T. Yoneyama *et al.*, IEEE Trans. Magn., 58, (2022) (in press); 4) N. Kobayashi *et al.*, Electron Comm Jpn., 104 (2), e12308 (2021)

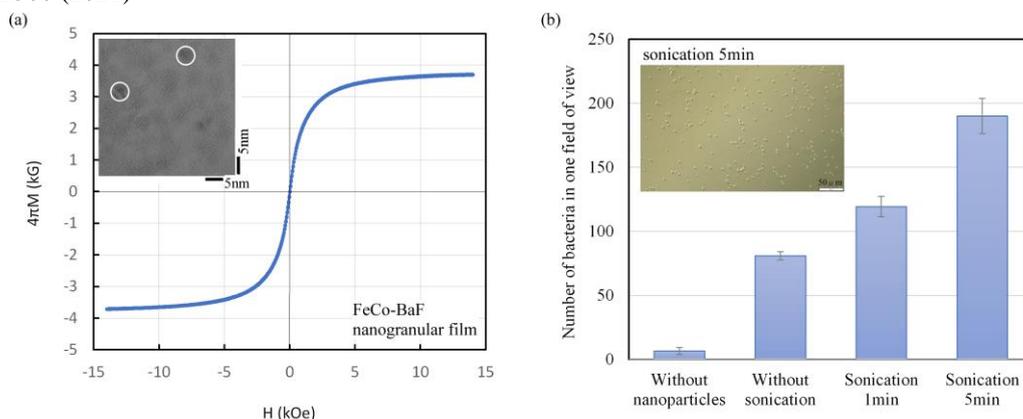


Fig. 1. (a) Magnetization curve of FeCo-BaF thin film at 300K and TEM image and (b) the number of *Candida albicans* after sonication treatment and the micrograph of the aggregates of FeCo nanoparticles and the *Candida albicans*.

MR センサアレイを用いた pT 級磁気信号の視覚化 と磁気粒子イメージング

Suko Bagus Trisnanto¹、笠島多聞²、悪七泰樹²、竹村泰司¹

(¹横浜国立大学、²TDK 株式会社)

pT-field mapping by using magnetoresistive sensor array for magnetic particle imaging

Suko Bagus Trisnanto^{*1}, Tamon Kasajima², Taiju Akushichi², Yasushi Takemura¹

(¹Yokohama National University, ²TDK Corporation)

はじめに

磁気粒子イメージング(magnetic particle imaging, MPI)は、体内に注入させた磁性ナノ粒子を磁化させ、画像化する技術である^{1,2)}。人体サイズへの適応に向けて、高周波磁界に対する安全性や磁気刺激等の観点から励磁強度・周波数の制限下での最小感度推定やシステム設計が重要である。本講演では、磁気抵抗効果(MR)センサアレイを用いた pT 級磁気信号のマッピングを報告する。高感度な MR センサにより MPI における励磁周波数の低減や磁性ナノ粒子の検出感度向上が期待される³⁾。

実験方法と結果

心磁界などの生体磁気計測に用いられている 6×6=36 チャンネルの TDK 製 MR センサアレイを使用した⁴⁾。静磁界で磁化した磁性ナノ粒子の単一 MR センサを用いた磁気信号マッピングを報告しているが⁵⁾、本研究では、磁気モーメントのモデルとして、直径 1 mm、長さ 5 mm、40 巻きのコイルから磁界を発生させた。このミニコイルをアレイの中心から 50、100、若しくは 150 mm の距離に設置した。距離 50 mm においてコイル電流 30 mA、200 Hz とした場合の 36 チャンネル、各 MR センサで同時測定した検出信号を Fig.1 に、CH16 の検出信号を Fig.2 に示す。これらの結果は磁気シールドルーム内で測定したものであるが、シールドルーム外でも測定を行った。交流磁気信号に対する検出感度<1 pT@10 kHz の測定結果⁶⁾などの詳細も当日報告する。

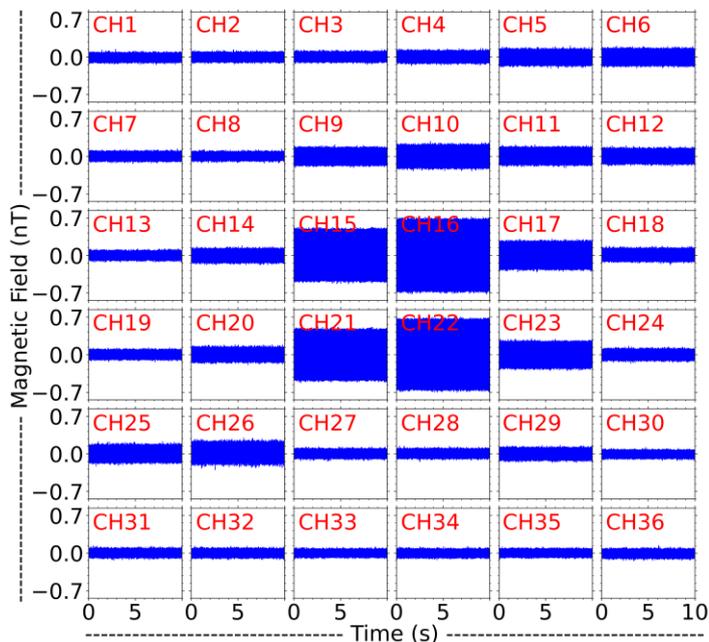


Fig. 1 Simultaneous signal acquisition of 36-channels MR sensor array for a given magnetic field from mini coil at 200 Hz.

参考文献

- 1) B. Gleich, J. Weizenecker, *Nature*, **435**, 1214, 2005.
- 2) 吉田、日本磁気学会 まぐね, **13**(4), 161, 2018.
- 3) S. B. Trisnanto, T. Kasajima, T. Akushichi, Y. Takemura, *Applied Physics Express*, **14**, 095001, 2021.
- 4) 寺園、澁谷、大川、日本磁気学会 まぐね, **14**(4), 211, 2019.
- 5) S. B. Trisnanto, T. Kasajima, T. Akushichi, Y. Takemura, *Journal of Applied Physics*, accepted.
- 6) S. B. Trisnanto, T. Kasajima, T. Akushichi, Y. Takemura, to be submitted.

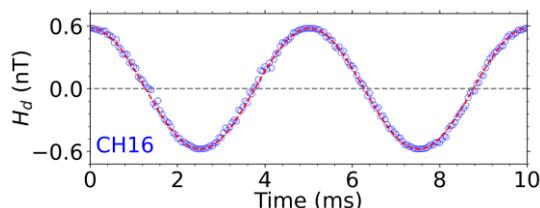


Fig. 2 Signal waveform detected by MR sensor of channel 16 (CH16 in Fig.1).

磁気粒子イメージング装置の大型化に向けた超伝導傾斜磁界コイル および交流励起磁界コイルの開発

森岡大陽¹、吉本昌史¹、笹山瑛由¹、竹村泰司²、吉田 敬¹
(¹九大、²横国大)

Development of Superconducting DC Gradient and Copper AC Magnetic Field Coils for Large-sized
Magnetic Particle Imaging Scanner

Hiroaki Morioka¹, Masafumi Yoshimoto¹, Teruyoshi Sasayama¹, Yasushi Takemura², Takashi Yoshida¹
(¹Kyushu Univ., ²Yokohama National Univ.)

1. はじめに

磁性ナノ粒子からの磁化信号を検出し、疾病領域を高感度・高分解能にイメージングする磁気粒子イメージング (MPI) が注目されている。人体サイズ MPI の実現に向けた課題の1つとして、傾斜磁界コイルの開発が挙げられる。本研究では、超伝導傾斜磁界コイルを導入したボア径 12 cm の 1/5 モデル MPI スキャナーの開発を目指し、直流傾斜磁界測定と交流励起磁界コイル作製を行った。

2. 直流傾斜磁界測定

YBCO 高温超伝導線材 (SCS4050-APi, SuperPower) を用いて 40 Turn×2 Layer (コイル直径 180 mm) の超伝導コイルを二つ試作した。77 K での四端子法による I - V 特性を Fig.1 に示す。電界基準を $1 \mu\text{V}/\text{cm}$ とすると、電圧 4.5 mV 時の電流が臨界電流となる。Fig.1 より、臨界電流は 60 A 前後であり、以降、負荷電流 50 A で傾斜磁界コイルの設計を行った。

続いて試作した超伝導コイル 2 つをコイル間距離 300 mm で配置、および逆接続し、50 A 通電時のコイル中心軸上での直流傾斜磁界の測定を行い、ビオ・サバールの法則による理論値と比較した。Fig.2 に示すように、測定値と理論値が非常に近い値となっており、理論通りの傾斜磁界が発生していることが確認できる。また、今後開発予定の超伝導傾斜磁界コイル (片側 90 Turn×2 Layer×3) では、理論計算によりおよそ 0.63 T/m の傾斜磁界が発生可能であることが分かった。

3. 交流励起磁界コイル作成および通電試験

銅線のリッツ線を用いて交流励起磁界コイルの作製に取り組んだ。ビオ・サバールの法則を基に数値計算を行うことで、振幅 12.1 mT を得ることが可能な 7 Turn×25 Layer の交流励起磁界コイルを設計した。実効値 10 A、周波数 15 kHz で交流励起した場合、コイルに 5500 V という大きな電圧が生じる。よって、安全面・資格面からコイルに発生する電圧を低圧に分類される交流 600 V 以下に抑制する対策を講じた。具体的には、コイルを 25 層に分割し、分割した層ごとに適切な静電容量を持つコンデンサを取り付けて LC 直列共振回路を作製することにより、電圧を抑制した。実際にコイルを作製し、10 A の通電試験を行ったところ、コイル全体では 30 V の電圧が生じている結果となり、目標値である 600 V 以下に抑えることができた。また、各端子間でも同様に電圧測定を行い、600 V 以下に抑えられていることを確認した。

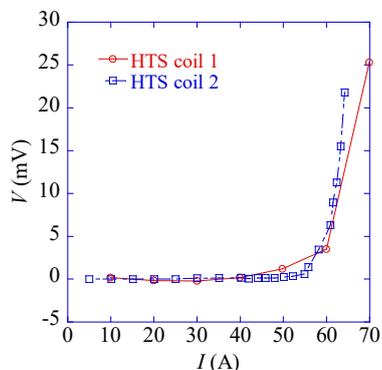


Fig.1 I - V characteristics of the developed superconducting coils

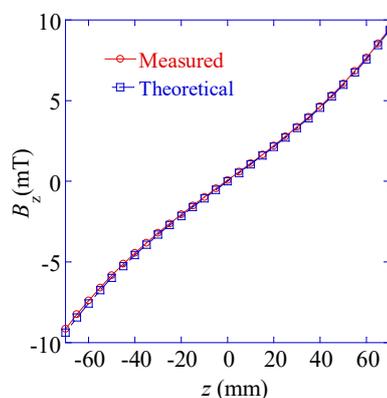


Fig.2 Measured and theoretical values of gradient field

頭部サイズの磁気粒子イメージング用励磁・検出コイル

鈴木健太¹, Hyuna Ahn¹, Suko Bagus Trisnanto¹, 山田努¹, 大多哲史², 吉田敬³, 竹村泰司¹
(¹横浜国立大学, ²静岡大学, ³九州大学)

Drive and receive coils for head-size magnetic particle imaging

Kenta Suzuki¹, Hyuna Ahn¹, Suko Bagus Trisnanto¹, Tsutomu Yamada¹, Satoshi Ota², Takashi Yoshida³,
Yasushi Takemura¹
(¹Yokohama National Univ., ²Shizuoka Univ., ³Kyushu Univ.)

はじめに

人体を対象とする磁気粒子イメージング^{1,2)}において、交流磁界の人体への影響の観点から特に頭部に対しては低強度かつ低周波の励磁磁界条件に抑えることが望まれる。本研究では、頭部の画像診断^{3,4)}を想定し、頭部サイズの励磁コイル及び検出コイルを用いた測定を行っている。

磁気粒子イメージングにおいて、(1)微量の磁気粒子を検出すること(検出感度)、及び(2)画像分解能(磁気粒子検出の空間分解能)を向上することが重要である。本発表では主に前者の磁気粒子の検出感度について報告する。

実験方法・結果

頭部サイズの検出コイルはソレノイド形状やヘルメット形状などが用いられる。ここでは、Fig. 1の左側にある開口部 186 mm 径のヘルメット形状の検出コイルを使用した研究結果を紹介する。磁気粒子イメージングでは励磁コイルにより磁気粒子に交流磁界を印加し、その磁化回転に伴う磁気モーメントの時間変化を検出コイルへの誘導起電力として測定する。Fig. 2に示した測定では、交流励磁した磁気粒子を通電したミニコイルで模擬した。ミニコイルはコイル長 5 mm、巻き数 40 turn であり、頭部サイズの検出コイルの中心に設置した。ミニコイルへの通電は周波数 4 kHz として、振幅を変化させながら検出コイルに生じる誘導起電力を測定した。Fig. 2の横軸はミニコイルから生じる磁界を飽和磁化の 50%で磁化変化($M/M_s=0.5$)すると仮定した Fe_3O_4 の重量に換算している。

検出コイルにキャンセルコイルを直列接続した場合など測定結果の詳細や励磁コイルを含めた頭部サイズの磁気粒子イメージングなどについて当日報告する。

参考文献

- 1) B. Gleich, J. Weizenecker, *Nature*, **435**, 1214, 2005.
- 2) 吉田、日本磁気学会 まぐね, **13(4)**, 161, 2018.
- 3) M. Graeser *et al.*, *Nature Communications*, **10**, 1936, 2019.
- 4) 清野他、第 45 回日本磁気学会学術講演会、01aA-5、2021.



Fig. 1 Coil system for head-size magnetic particle imaging.

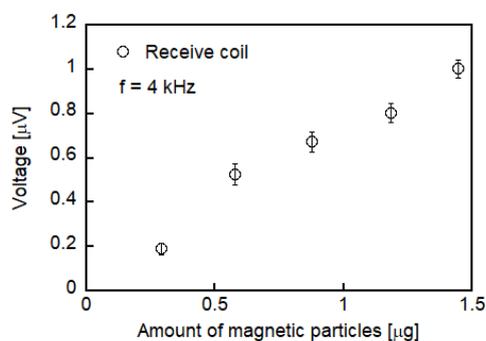


Fig. 2 Signal voltage induced in the receive coil. The equivalent amount of Fe_3O_4 is calculated by the amplitude of the excitation AC field from the mini coil.

Magnetic Orientation of Diamagnetic Particles

T. Kimura

Department of Applied Science and Engineering, Fukui University of Technology,
3-6-1 Gakuen, Fukui 910-8505, Japan

Diamagnetism originates from the motion of electrons induced by a magnetic field and all materials have this magnetic property. Diamagnetism is much weaker than ferromagnetism and is usually difficult to detect and utilize. The diamagnetic energy of a particle in a magnetic field is proportional to the volume V and diamagnetic susceptibility χ of the particle, and the square B^2 of the applied magnetic field. This energy is comparable to the thermal energy kT at room temperature if the particle is about 1 μm in size and B is about 10 T. Under these circumstances, the orientation of the particle can be maintained by the magnetic field against the randomizing force of thermal agitation. Although the diamagnetic orientation of particles has been known for a long time, it did not attract scientists and engineers until high magnetic field such as 10 T became common. At 10 T, the magnetic energy is 100 times larger than at 1 T, increasing the chance of finding orientation of a variety of materials^{1,2)}.

Diamagnetism is described by the magnetic susceptibility tensor, a second rank tensor similar to the dielectric and optical tensors. Symmetry in diamagnetism is equal to or higher than crystal symmetry (Neumann's Principle). This is in contrast to ferromagnetism. The diamagnetic symmetry of crystals is characterized by (a) isotropic, (b) uniaxial, and (c) biaxial ones. Cubic crystals belong to (a), trigonal, tetragonal, and hexagonal crystals to (b), and orthorhombic, monoclinic, and triclinic crystals to (c). These features are common to physical tensors of the second rank. The magnetic field only allows biaxial orientation at most.

Diamagnetic anisotropy of a particle is described by the magnetic susceptibility tensor, χ_1 , χ_2 , and χ_3 ($\chi_3 < \chi_2 < \chi_1 < 0$), and the corresponding magnetic axes. The χ_1 is called the easy axis following the notation for ferromagnetic materials. In a biaxial crystal, the three magnetic χ_1 -, χ_2 -, and χ_3 -axes correspond to the three crystallographic a -, b -, and c -axes. In a static magnetic field, χ_1 -axis aligns parallel to the magnetic field, and in a rotating magnetic field, χ_3 -axis aligns parallel to the field rotating axis. Furthermore, three-dimensional crystal alignment is possible if a time-dependent magnetic field is applied (Fig. 1)^{3,4)}

Magnetic orientation is a useful tool in materials science^{1,2)}. Micro- to nano-scale fibers, crystals, and particles can be easily oriented in matrices to form composite materials with high anisotropy. Flexible heat diffusion plastic sheets, in which carbon fibers are oriented perpendicular to the sheet surface, are commercialized.

Magnetic orientation is also useful for various spectroscopic studies. Biaxial microcrystals can be aligned three-dimensionally to create pseudo single crystal which we call "Magnetically Oriented Microcrystal Array" (MOMA). In MOMA, three-dimensionally oriented microcrystals are embedded in a solid matrix. Since the X-ray diffraction from MOMA is equivalent to that from actual single crystal, the single crystal analysis is possible from powder samples. We have determined the crystal structures of inorganic and organic compounds, and proteins from powder samples using the MOMA technique⁵⁾. MOMA is also used for single-crystal solid-state NMR⁶⁾ and ESR.

For MOMA, it is difficult to recover the sample crystals after measurement because the microcrystals are embedded in the matrix resin. This is a disadvantage of this method. To avoid this, a method called "Magnetically Oriented Microcrystal Suspension" (MOMS) was developed⁵⁾. In this method, X-ray and NMR measurements of a suspension of magnetically oriented microcrystals are performed in-situ, which facilitates sample recovery.

Reference

- 1) T. Kimura, *Polym. J.*, 2003, **35**, 823
- 2) M. Yamato, T. Kimura, *Polymers* **12** (2020) 1491.
- 3) T. Kimura, M. Yoshino, *Langmuir*, **21** (2005) 4805.
- 4) J-Y. Genoud, M. Staines, A. Mawdsley, B. Manojlovic, W. Quinton, *Supercond. Sci. Technol.*, **12** (1999) 663.
- 5) F. Kimura and T. Kimura, *CrystEngComm*, **20** (2018) 861.
- 6) R. Kusumi, F. Kimura, G. Song, T. Kimura, *J. Magn. Reson.* **223** (2012) 68.

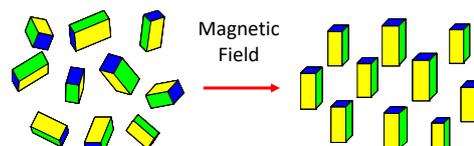


Fig. 1 Three-dimensional magnetic orientation of microcrystals

Field-induced rotational oscillation of diamagnetic and paramagnetic materials caused by a permanent magnet

Chiaki Uyeda

Graduate School of Science, Institute of Earth & Space Science, Graduate School of Science, Osaka University, Machikaneyama 1-1, Toyonaka, Osaka 560-0043 J

A number of magnetic effects have been reported on weak magnetic materials, which required strong field intensities above the level of several Tesla. To realize such application at a low field intensity, it is important to adopt reliable values of χ and $\Delta\chi$ assigned to individual materials in designing the experiment of magnetic effects.¹⁾ In order to obtain $\Delta\chi$ from a small sample, rotational oscillation of magnetically stable axis with respect to static field B was observed;²⁾ here sample was released in an microgravity are. From the period of oscillation τ , $\Delta\chi$ of a small particle is detected, and intrinsic $\Delta\chi$ assigned to individual material was obtainable without measuring mass m of sample. Value of τ is deduced from a field anisotropy energy $\frac{1}{2}\Delta\chi m B^2$ as

$$\tau = 2\pi(I/m\Delta\chi)^{1/2} B^{-1}; \quad (1)$$

moment of inertia of the crystal is defined as I . A compact magnetic circuit consisting of small Nd magnetic plates was effective to produce the magnetic field area in a limited area. It is seen in eq.(1) that τ is independent to m , and it is possible to deduce $\Delta\chi$ from τ , I/m and $|B|$ no matter how small the crystal may be. Using this system, $\Delta\chi$ above 5×10^{-10} emu/g is measurable from a submillimeter size sample, and $\Delta\chi$ is obtained for most existing materials.³⁾

Using this system, $\Delta\chi$ was detected for the first time in amorphous silica, which has been considered to possess negligibly small anisotropy. This $\Delta\chi$ appears in a limited region of the silica surface formed by rapid cooling of a melt precursor, and is expected to provide a quantitative data in elucidating the origin of interstellar dust alignment. By improving spatial resolution of the system, extent of structural deformation with respect to bulk material can be estimated for particles in the nano-region, because $\Delta\chi$ directly correlates with the configuration of chemical bonds.^{2,4)}

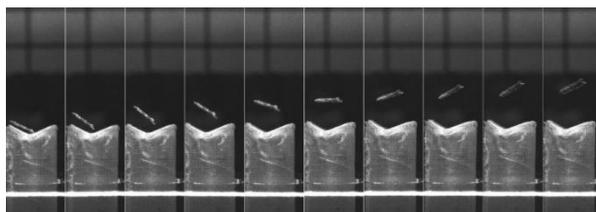


Fig.1 Sequential image of field induced oscillation observed in a sheet silicate crystal.^{1,2)} Time interval between the images is 0.033 s. Homogeneous field of $B = 0.056$ T is applied in a horizontal direction of the image. The crystal has a planer shape with its plane parallel to c-plane, Rotational-oscillation of c-plane with respect to direction of field is seen in the figure..

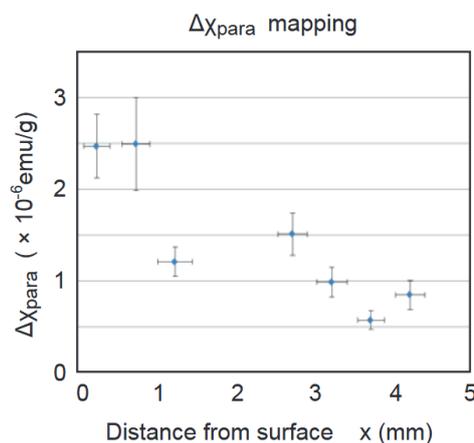


Fig.2 Depth profile of $\Delta\chi$ observed at the surface of synthetic silica³⁾.

References

- 1) C. Uyeda: Appl. Phys. Lett., **86** (2005) 094103,
- 2) C.Uyeda: Jpn. J. Appl. Phys., **32** (1993) L268,
- 3) C. Uyeda, K.Hisayoshi and S.Kano: J. Phys. Soc. Jpn., **79** (2010) 064709,
- 4) Yokoi, M. Katsura, K. Hisayoshi and C. Uyeda: Planet. Space Sci., **100** (2014) 46,

Recent progress in three dimensional magnetic alignment techniques

S. Horii, W. B. Ali, S. Adachi, and F. Kimura

Kyoto University of Advanced Science, Kyoto 615-8577, Japan

In materials science, technologies of crystal growth are indispensable from the viewpoint of the improvement of functionalities of their functional materials. A typical method of the single crystal growth is based on the epitaxial growth technique such as melt-solidification using seed crystal and thin film growth on single-crystalline templates. Our group focuses on biaxial grain-orientation using by a modulated rotating magnetic field (MRF)^[1]. In principle, this technique is extensively applied for various polycrystalline functional materials with tri-axial magnetic anisotropies. Moreover, the magnetic alignment method using MRF is a room-temperature process, and it does not require seed crystals and single-crystalline templates. Appropriate substances for the magnetic alignment are expected to be further expanded by the use of 10-tesla-class magnets. However, in order to raise the magnetic alignment process using MRF to the practical stage of a material-production process, it should be improved as a continuous production process. Recently, our group developed an equipment that can generate a linear drive type of MRF^[2] for tri-axial magnetic alignment applicable to a continuous production process. This equipment can generate a kind of MRF by reciprocating an arrayed magnet unit assembled using permanent magnets.

Figure 1(a) shows a fundamental concept for designing the arrayed magnets in the linear drive type MRF generation system. It is important to create a magnet array with two different portions of bending magnetic field from downward to upward directions and uniform magnetic field which points upward or downward in a space between top and bottom array by designing the top and bottom parts of the array using permanent magnets. In details, it is expected, by the reciprocating motion of the magnet array, that static magnetic field is generated for the regions ① - ③ and ⑤ - ⑦, and rotating magnetic field is generated for the region ③ - ⑤. Therefore, it leads to the generation of MRF. Figure 1(b) shows an example of the arrayed Nd-Fe-B magnets, which is obtained from simulation by FEM. In practice, the two different regions of magnetic flux can be seen in the space between upper and bottom arrays. At the current stage, MRF with a static magnetic field component of 0.9 T and a rotating magnetic field component of 0.5–0.9 T and 350 rpm has been successfully generated. Moreover, biaxial alignments of orthorhombic $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ ($y \sim 7$) superconductor powders cured in epoxy resin and dried from a slurry have been achieved. It is indicated that the magneto-scientific process is a candidate of practical production methods of superconducting bulks and tapes.

In this presentation, in addition to the above topics, simulation research on the design of the magnet arrays using a concept of magnetic circuit will be reported. This work was partly supported by Adaptable and Seamless Technology Transfer Program through Target-driven R&D (A-STEP), Japan Science and Technology Agency (JST) and JSPS KAKENHI Grant Number JP17H03235.

Reference

- 1) T. Fukushima, S. Horii et al., Appl. Phys. Express 1 (2008) 111701.
- 2) S. Horii et al., J. Cer. Soc. Jpn. 126 (2018) 885.

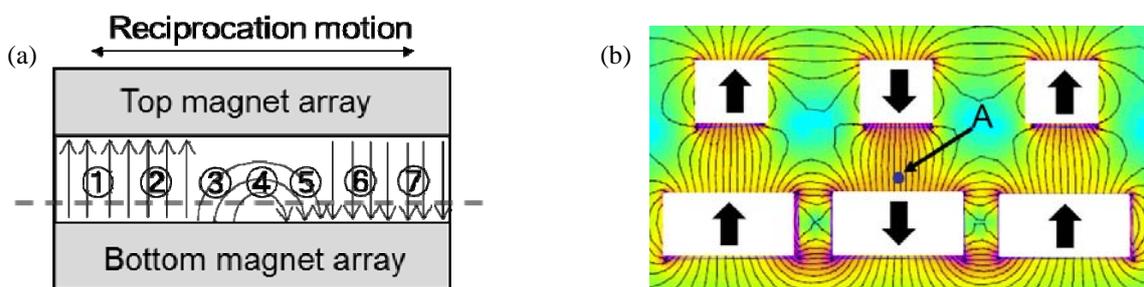


Figure 1. (a) A conceptual magnet array for the linear drive type MRF generation system. (b) Distribution of magnetic flux in a magnet array. This simulation result was obtained by the FEMM software.

Control of the orientation of inorganic particles in a magnetic field by addition of metal elements

Satoshi Tanaka
Nagaoka University of Technology

In the orientation method using a high magnetic field, particles are oriented using a slight magnetic anisotropy to prepare a particle-oriented powder compact. The crystal-oriented ceramics was obtained by sintering the particle-oriented powder compact, and it was expected that the property would be improved by the crystal orientation. In the case of a diamagnetic material, the crystal direction with a large diamagnetic susceptibility is perpendicular to the magnetic field. A rotating magnetic field is used to direct that crystal axis in one direction. We reported the c-axis orientation of tungsten bronze oxide crystals and hydroxyapatite by applying a rotating magnetic field¹⁾. However, since the rotating magnetic field is a batch process and is not very suitable for continuous production, it would be a great advantage if the orientation direction of the substance could be changed. Horii et al. have reported that the anisotropy of magnetic susceptibility is changed by adding various rare earth ions to superconducting materials²⁾. In the presentation, we will introduce the effect of adding metallic elements on the magnetic field orientation of hydroxyapatite and mordenite zeolite crystals. Hydroxyapatite (Hap) considered Europium (Eu) as an additive. For mordenite zeolite particles, we investigated the effects of transition metals in addition to rare earth metals. See reference (3) for more detail information on mordenite zeolite particles with ion-exchanged.

Hydroxyapatite particles doped with europium were synthesized by solid reaction. After grinding and mixing raw powders in a ball milling, the dried powder was heated at 1050 °C for 4 hours. The reacted powders were ground by a ball milling in 2 propanol as a solvent and dried. A slurry was prepared using distilled water as a solvent and ammonium polyacrylic acid as a dispersant. The pH of the distilled water was adjusted to 10. This slurry was poured into a mold with a diameter of 25 mm, and a vertical magnetic field was applied to the slurry in a superconducting magnet (TOSHIBA TM-10VH10) to dry the slurry. The magnetic flux densities were 3T and 10T. The slurry of HAp alone was naturally dried in a rotating magnetic field. The powder compacts were sintered at 1150 °C for 2 hours. The orientation of the samples was evaluated by powder X-ray diffraction, and the degree of orientation was calculated by the Lotgering method. The microstructure was observed with a scanning electron microscope.

The crystal structure of HAp that Eu^{3+} is replaced with Ca^{2+} sites has been reported, and that Ca sites are particularly frequently replaced⁴⁾, and this tendency was confirmed from Rietveld analysis. Figure 1 shows the XRD figures of HAp:Eu³⁺ prepared in a 3T magnetic field, a single HAp powder compact, and a powder compact fabricated without using a magnetic field. Due to the solid solution of Eu, the c-axis was oriented in the direction of the magnetic field in a vertical magnetic field. On the other hand, the simple HAp was oriented on the c-axis by the rotational magnetic field orientation similar to previous study. It was found that the easily magnetized axis changed due to the solid solution of Eu^{2+} , and that the magnetic field required for orientation decreased to a magnetic flux density of 3T. It is suggested that anisotropic solution of Eu contribute to oriented direction and response to the magnetic field.

Reference

- 1) S Tanaka et al., *J. Am. Ceram. Soc.*, 90 (2007) 3503.
- 2) Horii et al., *Sci Technol Adv Mater.*, (2009) 014604.
- 3) S Tanaka et al., *J. Euro. Ceram. Soc.*, 40 (2020) 5984.
- 4) R. Tarnane et al., *Optical Materials*, 16 (2001) 291-300.

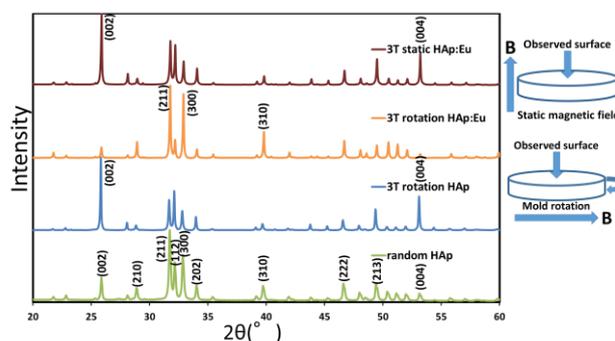


Fig.1 XRD of oriented HAp:Eu and HAp powder compact

Preparation of Crystalline Oriented Poly(L-lactide) Films by Casting in a Magnetic Field Using Ionic Liquids, and those of the Useful

H. Ikake¹, S. Shimizu¹ and S. Hara²

¹ College of Science and Technology, Nihon University, Tokyo 101-8308, Japan

² Faculty of Engineering, Kanagawa University, Yokohama 221-8686, Japan

Poly(L-lactic acid) (PLLA) is harmless to the human body and exhibits unique properties such as piezoelectric effect by appropriately controlling the crystal structure of PLLA. We have found that field-induced blend films composed of PLLA and amorphous poly(lactic acid) can be fabricated by an isothermal process under a 10 T magnetic field without forming β -crystals¹⁾ and increasing the degree of crystallinity while maintaining the orientation²⁾. The key to this method lies in the melt viscosity of PLLA. Although PLLA films showing high orientation can be obtained by appropriately adjusting the viscosity, there were significant barriers to crystal growth while maintaining orientation.

On the other hand, we are developing novel ionic liquids (ILs) to improve the dispersion of inorganic nanoparticles in polymer matrices. PLLA was dissolved in chloroform and 1-butyl-3-methylimidazolium dibutylphosphate (IL) was added and the films were cast deposited under a 10 T magnetic field. Isothermal crystallization treatment at 90°C for 2 hours was then performed to improve the crystallinity of the PLLA film while maintaining some orientation of the PLLA film. POM observation of the oriented PLLA film (Fig. 1) showed no spherulite³⁾.

In our recent work with ILs, dispersion and release have been successfully achieved⁴⁾. After dispersion of a complex of tetrabutylphosphonium cation and iron(III) chloride anion in a polymer matrix, iron(III) chloride could be deposited in the matrix by light irradiation. The phase transition induces magnetic properties only in the light-irradiated areas. In particular, when combined with a molecularly oriented matrix, the magnetic domains of iron(III) chloride were aligned and the magnetic susceptibility was three times higher than that of disordered iron(III) chloride. We believe that the combination of ILs with external stimuli to polymer matrices, such as crystal growth, dispersion, and phase separation while maintaining orientation, will lead to a great leap forward in the functionalization of polymeric materials.

Reference

- 1) R. Nakayama, H. Ikake, K. Kurita, S. Shimizu, S. Kurumi, K. Suzuki, K. Takahashi, K. Watanabe, *Kobunshi Ronbunshu*, **72**, 661-666 (2015).
- 2) R. Nakayama, H. Ikake, K. Kurita, S. Shimizu, S. Kurumi, K. Suzuki, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **41**, 66-69 (2017).
- 3) S. Hara, S. Watanabe, K. Takahashi, S. Shimizu, H. Ikake, *Polymers*, **10**, 1083/1-1083/9 (2018).
- 4) H. Ikake, S. Hara, S. Kurebayashi, M. Kubodera, S. Watanabe, K. Hamada, S. Shimizu, *J. Mater. Chem. C*, **10**, 7849-7856 (2022).

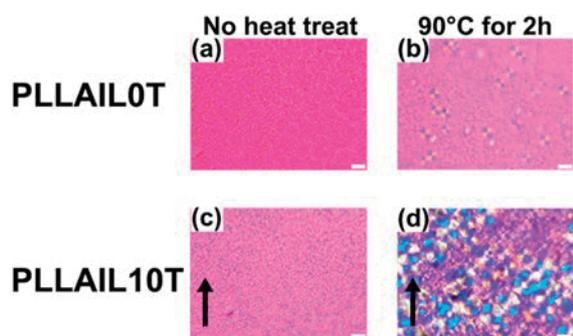


Fig.1 Polarization microscope image of PLLA films. (a): PLLAIL0T, (b): PLLAIL0T2, (c): PLLAIL10T and (d): PLLAIL10T2. Black arrow is the direction of the magnetic field.

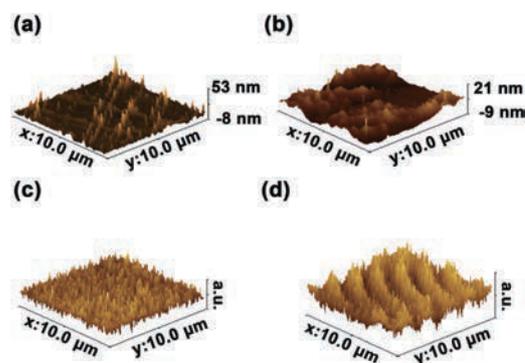


Fig 2. AFM images of each state of films: (a) After UV irradiation, (b) After UV irradiation and oriented polymer chains. MFM images: (c) After UV irradiation, (d) After UV irradiation and oriented polymer chains.