磁性ガーネット微粒子を用いた フレキシブル磁気光学薄膜の作製と評価

嶋田拓馬、玉村拓也、高野巧光、後藤太一*、橋本良介 (鈴鹿高専、*東北大)

Faraday rotation angle of flexible magneto-optical thin films with magnetic garnet fine particles Takuma Shimada, Takuya Tamamura, Takumi Takano, Taichi Goto, Ryosuke Hashimoto (NIT Suzuka College,*Tohoku Univ.)

<u>はじめに</u>

磁性ガーネット薄膜は巨大な磁気光学効果を発現する代表的な磁気光学材料として知られている¹⁾。従来、 成膜にはスパッタ法や金属有機化合物分解法などが用いられてきたが、成膜後に 700 度程度で結晶化熱処理 を施す必要がある²⁾。従って基板には耐熱性の高い単結晶基板やガラス基板が用いられており、アクリル素 材のようなフレキシブル基板上への成膜は困難であった。そこで我々は、予め熱処理を施して結晶化した磁 性ガーネット粒子を液中に分散させて、スピンコート法を用いることで自在に湾曲する基板上への成膜を行 った³⁾。しかし、光散乱の影響により測定に必要な透光性が得られず、磁気光学効果の評価には至っていな かった。本研究は、ビスマス置換イットリウム鉄ガーネット(Bi:YIG)粉体を粉砕して光散乱を抑制し、自在に 湾曲する基板上へ塗布した際のファラデー回転角の大きさを評価した結果について報告する。

<u>実験方法</u>

Bi:YIG 粒子 1.0 g と純水 18 mL、有効成分を 10%に調整した界面活性剤 1.0 mL (花王(株)、poise520)、および粉砕するためのジルコニアビーズ 70 g をジルコニア容器に入れ、遊星ボールミリングを用いて Bi:YIG 粒子を粉砕した。ミリング条件は、回転数 300 rpm、処理時間 10 h、ビーズ径 0.1 mm とした。粉砕後に水性 ウレタンニスを有機バインダとして混ぜ合わせ、アクリル基板上にスピンコータを用いて成膜した。成膜条件は、回転数 2000 rpm、加速時間 5 s、回転時間 20 s とした。同条件で 10 回塗布を繰り返し、重ね塗りを行うことで、厚膜化した。この試料の粒径分布、ファラデー回転角を評価した。

実験結果

ミリング後の Bi:YIG 粒子の粒径分布を、ミリング処理時間ごとに レーザ散乱解析法により計測した結果を Fig.1 に示す。10 時間ミリン グ処理した結果から、光散乱の抑制が期待できる 200 nm 程度の粒径 の微粒子が得られていることが確認できた。作製したフレキシブル磁 気光学薄膜のファラデー回転角ループを波長 532 nm にて測定した結 果を Fig.2 に示す。10 層の重ね塗りを施した薄膜のファラデー回転角 は約 0.16 度であり、飽和磁界は 2 kOe 程度であった。発表では試料を 湾曲させた際の様子についても報告する。

参考文献

- 1) Y. Yoshihara, et.al., Applied Physics Letters, **123**, 112404, (2023).
- 2) R. Hashimoto, et. al., Journal of Applied Physics, 115, 17A931, (2014)
- 3) R. Hashimoto, et. al., Materials, 15, 3, 1241, (2022)





Fig. 2 Faraday rotation loop.

<u>謝辞</u>

本研究の一部は東北大学電気通信研究所共同プロジェクト研究により実施されたものである。

FeCo-BaF/ITO 複合多層薄膜の磁気光学効果

池田 賢司¹,刘 天際²,太田 泰友³,岩本 敏^{4,5},小林 伸聖¹
(電磁研¹,中科院長春光機所²,慶応大学³,東大先端研⁴,東大生研⁵) Magneto-optical effect in FeCo-BaF/ITO multilayer films
Kenji Ikeda¹, Tianji Liu², Yasutomo Ota³, Satoshi Iwamoto^{2,4}, Nobukiyo Kobayashi¹
(Denjiken¹, CIOMP², Keio Univ.³, RCAST, Univ. of Tokyo⁴, IIS, Univ. of Tokyo⁵)

<u>はじめに</u>

ナノグラニュラー磁性薄膜は、絶縁体等のマトリックス中に磁性金属ナノ粒子を分散させた構造を有して おり、多様な物性を示すことで知られている。一方、誘電率がほぼゼロとなるイプシロンニアゼロ(ENZ)特 性は、金属や半導体材料が特定の波長で示す特性として知られており、誘電率変化に伴う非線形光学応答な どの興味深い物性を示すことが確認されている。我々のグループでは、ENZ 特性による誘電率対角成分の減 少が、磁気光学効果を増強させ¹⁾、一方向性光導波路などのトポロジカル光デバイスの実現に有効であるこ とを見出した²⁾。ナノグラニュラー薄膜が有する大きい磁気光学効果を、ENZ 効果によって増強することが可 能となれば、より大きい磁気光学効果を得ることが可能となり、光デバイスへの応用を加速することが期待 される。本報告では、高い磁気光学効果を有する薄膜の作製を目的として、ナノグラニュラー薄膜と赤外波 長帯域に ENZ 特性を示す ITO 薄膜を交互に積層した薄膜を作製し、FeCo-BaF/ITO 複合多層薄膜の磁気光学効 果および光学特性を解析した結果について報告する。

<u>実験方法</u>

ナノグラニュラー薄膜は、BaF2 焼結ターゲットと Fe₆₀Co₄₀ 合金ターゲットを Ar ガス雰囲気において成膜、ENZ 層は ITO(Sn 10wt.%)ターゲットを Ar-O₂(1%)の混合ガス雰囲気において成膜し、シャッター開閉時間により各層の膜厚を制御した。成膜は 400℃の加熱雰囲気で行い、膜厚約 300 nm の薄膜を作製した。ITO 層の ENZ 波長を制御するため、成膜後に真空雰囲気で熱処理(400℃, 1hour)を行った。ファラデー効果の波長依存性は、分光式ファラデー効果測定装置(NEOARK, BH-501F-SVI)を用いて評価した。薄膜の光透過率は、分光光度計(Shimadzu, UV-3150)を用いて測定した。誘電率は分光エリプソメータ(Horiba, UVISEL-Plus)によって解析した。

実験結果

ENZ波長を変えて成膜した FeCo-BaF(20nm)/ITO(20nm)複合積層薄膜のフ アラデー回転スペクトルを Fig.1、ITO 層の誘電率(実数)を Fig.2 に示す。複 合積層薄膜の赤外帯域のファラデー回転角は、単一層のナノグラニュラー 薄膜に対して大きい値となっており、ITO 層の ENZ 波長の増加に応じてピ ーク波長が長波長側にシフトしている。ファラデー回転角の増加比率は、 ENZ 波長が長くなるほど大きくなり、ENZ 波長が 1270nm の試料において 最大の約 2.5 倍となる。ファラデー回転角のピーク波長が ITO 層の ENZ 波 長に応じて変化する結果は、ENZ 効果が磁気光学効果の増強に強く関与し ていることを示唆する。また、複合積層薄膜において磁気光学効果に直接 的に寄与するのはナノグラニュラー層のみと考えられることから、ナノグ





ラニュラー層の比率が半分となっていることを考慮すると、ENZ 効果による磁気光学効果の増強は実測結果 よりも大きいものと推測される。

<u>謝辞</u>本研究は JST-CREST, JPMJCR19T1 および JSPS 科研費 23K26371 の助成を受けたものです。 参考文献

-261 -

1) K. Ikeda, T. Liu, Y. Ota, N. Kobayashi, and S. Iwamoto, Adv. Opt. Mater., 12, 2301320 (2024).

2) T. Liu, N. Kobayashi, K. Ikeda, Y. Ota, and S. Iwamoto, ACS Photonics, 9 (5), 1621-1626 (2022).

種々の光学干渉層厚を有する GdFeCo 薄膜における 磁気円二色性および双対性符号の波長依存性

若林達也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) Wavelength Dependence of Magnetic Circular Dichroism and Duality Sign in GdFeCo Thin Films with Various Optical Interference Layer Thicknesses Tatsuya Wakabayashi¹, Hiroki Yoshikawa², Arata Tsukamoto²

(¹Graduate School of Science and Technology, Nihon Univ.,²College of Science and Technology, Nihon Univ.)

はじめに数十フェムト秒程度の円偏光パルスレーザーを照射することで初期磁化状態および入射光のカイ ラリティに対応した磁化状態遷移が可能である偏光依存全光型磁化反転 (Helicity Dependent All-Optical Magnetization Switching : HD-AOS)現象が発見され,応用が期待されている.希土類遷移金属合金系における, HD-AOS現象の偏光依存性は磁気円二色性 (Magnetic Circular Dichroism : MCD) に由来する¹⁾.本材料の内因 的 MCD に基づく左右円偏光に対する吸収エネルギー差は小さいと考えられ,応用実現のために外的要因に より実効的 MCD の増強が必要と考えられる.本報告では、実効的な MCD の増大を目的に、楕円率計測に基 づき種々の光学干渉層厚を有する GdFeCo 薄膜における磁気円二色性および双対性符号の波長依存性につき 検討を行った.

<u>実験方法</u>測定試料として、DC・RF Magnetron Sputtering によ り作製した SiN (t nm) / Gd_{24.0}Fe_{66.5}Co_{9.5} (20 nm) / SiN (5 nm) / glass sub. (t = 20, 40, 60, 100, 200)を用いた. また、既報告の HD-AOS 現象と光学干渉層膜厚の検討で用いた波長 800 nm²⁾と波長の近い LASER Diode (λ = 780 nm), He-Ne LASER (λ = 633 nm)を光源に用いた. 本報告では、光弾性変調器 (Photo-Elastic Modulator : PEM)による磁気光学 Kerr, Faraday 計測を行った.

結果 光源波長 $\lambda = 633$ nm, 780 nm で磁気光学 Kerr 効果, Faraday 効果により測定した旋光角 θ および楕円率 η の光学 干渉層膜厚依存性を, Fig. 1, Fig. 2 に示す. 磁気光学 Kerr, Faraday 計測のいずれも $\lambda = 633$ nm, 780 nm で大きく異なる 膜厚依存性を示した. 干渉層膜厚 100 nm 以下では,反射特 性は透過特性に比して強く干渉効果が現れており,特に Fig. 2 における $\lambda = 780$ nm の $\eta_{\rm K}$ は光学干渉層膜厚 t = 60 ~100 nm で双対性の符号が反転することを確認した. これは, 既報告の HD-AOS 現象と光学干渉層膜厚の検討における結 果と対応しており²⁾, 実効的な MCD に由来する吸収率差と η の相関を示唆する結果を得た. 一方, t = 200 nm では $\lambda =$ 780 nm のとき, $\eta_{\rm K}$ が再び双対性の符号反転するとともに, $\eta_{\rm F}$ は他膜厚と比べて大きく増大することを確認した. これに より, SiN 誘電体層膜厚の増加により光学干渉を用いて実効 的な MCD の更なる増大が示唆される.

<u>参考文献</u>

- 1) A. R. Khorsand et al. : Phys. Rev. Lett. 108, 127205 (2012).
- 2) H. Yoshikawa et al. : Jpn, J. Appl. Phys. 62 SB1009 (2023).



Fig. 1 Optical interference layer thickness dependence of θ and η measured by Faraday effect



optical Kerr effect

Yafet-Kittel 構造による Planar ホール効果と X 線磁気線二色性

小泉 洸生1、山崎 裕一2、柳原 英人3

Planar Hall effect and X-ray magnetic linear dichroism by Yafet-Kittel Structure

Hiroki Koizumi, Yamasaki Yuichi, and Hideto Yanagihara

(1 Tohoku Univ., 2NIMS, 3 Univ. of Tsukuba)

【背景】

NiCo₂O₄(NCO)は、逆スピネル構造を有したフェリ磁性体で、MgAl₂O₄(001) (MAO)基板上に作製することで 正方歪が導入され、室温では垂直磁気異方性、低温では円錐型の磁気異方性を示す[1]。この円錐型の磁気異 方性のために、スピネル構造の副格子の1つであるパイロクロア格子において磁気トロイダル四極子秩序が 実現しており、これによる磁場に反対称な四極子異常ホール効果が報告されている[2]。さらに intrinsic な Planar ホール効果と考えられる磁場に対称なホール効果も見出されており、もう一つの副格子であるダイヤ モンド格子において Yafet-Kittel(YK)構造が実現している可能性が示唆されていた。YK 構造は非共線的なス ピン構造の一種で、ダイヤモンド格子においては図 1 のように青色と紫色のイオンが反強磁性的に結合した スピン構造となる [3]。一般的に YK 構造は交換相互作用の競合に起因して実現している。一方で円錐型の磁 気異方性では円錐面が磁化容易面となるため、反強磁性的な結合が存在すると図 1 のように円錐面内で反対 方向を向いた配置となり YK 構造が安定化すると考えられる。図 1 に示すような YK 構造が実現している場 合、(001)面内では反強磁性的な結合となるため、X 線磁気線二色性(XMLD)により検出が可能である。そこで 本研究では、NCO 薄膜に対して XMLD 測定を行い、YK 構造が実現しているかを調べた。

【実験】

NCO 薄膜は、MAO(001) 基板上に NiCo(1:2)合金をターゲットとした反応性 RF マグネトロンスパッタリング法によりに作製した。作製した試料は、高エネルギー加速器研究機構 フォトンファクトリーのBL16A にて磁場中冷却を行い、5K にて XMLD スペクトルの磁場依存性を調べることで、YK 構造が実現しているかを調べた。XMLD 測定は、直線偏光した放射光を膜面垂直方向(NCO[001])から入射し、さらに放射光と平行な方向に磁場を印加しながら行いその磁場依存性を調べた。直線偏光の方向はE || NCO[110], [10]とした。

【結果】

図2に、CoのL3端におけるXMLDスペクトルの磁場依存性を示 す。XMLDスペクトルが現れていることから、NCO(001)面内に低磁 場で反強磁性構造が生じていることを示唆している。加えてこの結 果は、電気伝導特性で観測された磁場に対称なホール効果とよく一 致していた。NCO薄膜において Coは、ダイヤモンド格子を占有し ていることから、この結果は NCO薄膜において低磁場で円錐型の磁 気異方性に起因して YK 構造がダイヤモンド格子で実現しているこ とを示唆している。

- [1] H. Koizumi, et al., Phys. Rev. B 104 014422 (2021).
- [2] H. Koizumi, et al., Nat. Commun. 14 8074 (2023).
- [3] Y. Yafet and C. Kittel, *Phys. Rev.* 87 290 (1952).



図 1:ダイアモンド格子と Yafet-Kittel 構造



図 2: XMLD の磁場依存性

磁気およびキラル光学応答を示すナノ構造体の円偏光による作製

石田拓也*、澤田直樹、伊藤拓哉、イ スンヒョク、立間 徹* (東大生研)

Nanostructures Exhibiting Magneto-optical and Chiroptical Responses Prepared by Circularly Polarized Light T. Ishida, N. Sawada, T. Ito, S.-H. Lee, T. Tatsuma

(IIS, the Univ. of Tokyo)

<u>はじめに</u>

空間と時間の反転対称性を同時に破ることで、無偏光に対して非 相反な光学応答を示す磁気キラルメタマテリアル¹の開発が進め ば、超小型単一素子で光伝搬特性を制御可能な光アイソレータや光 サーキュレータ、また非相反性ホログラフィによる高度なデータス トレージなど従来の技術とは異なる原理で作動する革新的な光学素 子への展開が期待できる。しかし、可視光域で非相反光学効果を示 すようなナノスケールの磁気キラル構造体は作製難度が高い。本研 究では、無偏光に対する非対称な透過を示す磁気キラルプラズモニ ックナノ構造体を、我々が報告してきた円偏光によるキラル形状化 法²⁴によりボトムアップ的に作製することを目的とした。

<u>実験方法</u>

ポリエチレンイミンを吸着させたガラス基板上で、Fe₃O₄ナノ粒 子(~40 nm)を化学的に成長させた。そこに円偏光を照射し、 Fe₃O₄の部位選択的な光触媒反応による Ag⁺の還元反応⁴と、還元 析出した Ag 自体の局在表面プラズモン共鳴(LSPR)を介したキ ラル形状化³を組み合わせることで、Fe₃O₄-Ag 磁気キラル構造体 (Fig. 1a)を作製した。

<u>実験結果</u>

得られた Fe₃O₄ナノ粒子は、SEM 像から平均粒径 40±8 nm であった。また、磁気円偏光二色性(MCD)を示した。この粒子に円 偏光を照射すると、Fe₃O₄ナノ粒子上にのみ Ag が還元析出し、 Fe₃O₄-Ag ナノ複合体が得られた。Ag の析出に伴い、LSPR に由来 する吸収の増大が見られ、また円偏光二色性(CD)が観測される ようになり、ナノ構造体がキラリティを有することがわかった (Fig. 1b,c)。この CD の正負は、照射する円偏光の左右に応じて反 転したことから、円偏光がキラル源であることもわかった。また、

Ag の析出後も MCD の強度が概ね保たれた(Fig. 1b,c)。Fe₃O₄-Ag

(a) (b) ₆₀ After R-CPL Fe₃O₄-Ag 30 CD / mdeg -1.6 T 0.0 T 0 -30 +1.6 T -60 600 400 500 700 800 Wavelength / nm (c) ₆₀ After L-CPL 30 CD / mdeg 0 -30 -60 600 700 400 500 800 Wavelength / nm

Fig. 1 (a) SEM image and (b, c) CD and MCD spectra of Fe₃O₄-Ag nanocomposites fabricated by right- or left-CPL.

ナノ構造体は、キラリティに起因した CD と、磁性に起因した MCD を示したことから、原理的には非相反 光学応答の観測が期待できる。

- 1) S. Tomita, K. Sawada, J. Phys. D: Appl. Phys. 51 083001 (2018).
- 2) K. Saito, T. Tatsuma, Nano Lett. 18, 3209–3212 (2018).
- 3) T. Ishida, A. Isawa, S. Kuroki, Y. Kameoka, T. Tatsuma, Appl. Phys. Lett. 123, 061111 (2023).
- 4) Y. Oba, S. H. Lee, T. Tatsuma, J. Phys. Chem. C 128, 827–831 (2024).

磁性ナノ構造を導入した磁気光学キャビティの磁気光学特性

劉家祥、安川雪子、*長谷川崇、**山根治起 (千葉工大、*秋田大、**秋田産技センター)

Magneto-optical properties of magneto-optical cavities incorporating magnetic nanostructures

J.Liu, Y.Yasukawa, *T.Hasegawa, **H.Yamane

(Chiba inst. Tech., *Akita Univ., **Akita Ind. Tech. Center)

はじめに 磁気光学 (MO) 効果とプラズモンの相互作用は盛んに研究 されている。我々は、CoPt 垂直磁化積層膜で構成された光学干渉 (キ ャビティ)素子の理論計算において、MO 効果の上限「Kerr 回転角($\theta_{\rm K}$) = $\pm 90^{\circ}$ 」が実現できることを報告している⁽¹⁾。また、貴金属微粒子 に CoPt 膜を成膜した試料では、局在プラズモンに起因する、特異な MO 特性についても報告している⁽²⁾。本研究では、キャビティと貴金 属微粒子とを組み合わせた、磁性ナノ構造体の磁気光学物性について 調査した。

実験方法 試料は[磁性ナノ構造層/光学干渉層/全反射層]積層膜を基本構造として、マグネトロンスパッタ法によって作製した(Fig. 1)。積 層膜は、ガラス基板上にシード層として Al 添加 ZnO (AZO)を 5 nm、 全反射層として Ag を 100 nm、光干渉層として AZO を成膜した。キャ ビティにおけるハーフミラーとして機能する磁性ナノ構造層は、Ag (5.2 nm)を加熱成膜することで粒子化した後、その上に[CoPt (5 nm)/AZO (2 nm)]を成膜することで作製した。光学干渉層の厚さを 0~ 80 nm まで変化させ、Ag の成膜温度を室温(rt)および 200~500℃まで 変化させて試料作製を行った。表面形態は走査電子顕微鏡 (SEM)で観 察し、磁気特性は振動試料型磁力計(VSM)で、MO 特性は分光式極 Kerr 装置で測定した。

結果及び考察 Fig.2 に、60 nm の光学干渉層を持ち、Ag を 200℃で加 熱成膜した試料の SEM 像を示す。 膜構造は [CoPt (5 nm)/AZO (2 nm)/Ag (5.2 nm)/AZO (60 nm)/Ag (100 nm)]である。SEM 像から、Ag が凝縮し、 粒子状となっていることがわかる。Fig. 3 に Ag を rt および 200℃で加 熱成膜した試料の磁気特性を示す。CoPt を Ag 微粒子上に成膜するこ とで、保磁力が大きくなっている。Fig. 4 に、Ag を 200℃で加熱成膜 した試料の、測定波長 506 nm および 540 nm における、規格化した極 Kerr ループを示す。波長 540 nm では VSM と同様のヒステリシス曲線 が観測されるのに対して、506nmでは特異な結果となっている。これ は、試料が、MO極性と保磁力が異なる2つの領域で構成されている ことを示唆している。ここで、磁気キャビティ素子の MO スペクトル は、共鳴波長において極性反転をともなった増大を示し、ハーフミラ ー層の厚さに敏感である⁽¹⁾。Fig.2 で示した試料では、磁性ナノ構造層 は、Ag 微粒子の有無によって厚さが異なる2種類のハーフミラー層と して機能すると推測される。この時さらに、2つの領域では保磁力も異 なっており、結果として Fig.4 で示した特異な Kerr ループが観測され たと考えられる。

参考文献

(1) 劉他,応用物理 2024 春季, 24p-12H-4

(2) H. Yamane et al., J.Appl.Phys. 124, 083901 (2018)



Fig. 1. Schematic diagram of sample structure.



Fig. 2. Surface morphology for MO cavities with nanostructures.



Fig. 3. Measured magnetic properties for rt and 200°C sputtering.



Fig. 4. Measured polar Kerr loops for MO cavities with nanostructures.

回折限界領域に励起した表面プラズモンを用いた 磁気光学応答の顕微計測

松林大揮, 山根治起*, 加野裕

(室蘭工業大学大学院 工学専攻、*秋田県産業技術センター)

Observation of magnetic domains in the diffraction-limited region using focused surface plasmon

Daiki Matsubayashi, Haruki Yamane*, Hiroshi Kano

(Division of Engineering Muroran Institute of Technology, *Akita Industrial Technology Center)

はじめに

金属表面における自由電子の集団的振動運動の量子である表面プラズモン(SP)を,磁性層と金属層で構成 された積層膜上に励起すると,磁性層の磁気光学特性を増強することができ,これを利用して磁性層近傍の 屈折率を高感度に測定する手法が提案されている¹.本研究では,光の回折限界領域に SP を局在させた集束 表面プラズモン(FSP)を励起し,顕微領域における磁気光学特性の測定を試みた.提案する手法により, 基板表面近傍の極めて微弱な屈折率分布を高い空間分解能で可視化する顕微鏡の実現が期待できる.

実験方法と実験結果

Fig.1 (a)に, FSP を励起し, 磁気光学応答を測定する 光学系を示す.この光学系では、磁性層と金属層の積 層基板に集束光を照射するが、対物レンズの入射瞳の 1点を通る光は、集束光を構成する一つの平面波成分 として基板を照明する. 平面波成分の中で, p 偏光 し、空間周波数が SP の空間周波数(k_{sp})と一致する 成分によって、クレッチマン配置を構成する金属層の 表面に、平面波成分の波動ベクトルに沿った方向へ伝 搬する SP が励起される.入射瞳に, Fig. 1(b)に示す, ラジアル偏光を与えると、さまざまな方向へ伝搬する SP が、焦点で強め合うように干渉するため、回折限 界に相当するスポットが形成される. Fig. 1(c)には, 射出瞳における電場の偏光状態を示す. 表面プラズモ ンを励起できない平面波成分は入射瞳に与えた偏光状態が 維持されるが、表面プラズモンの励起効率が高まるにつ れ, 基板からの反射光の p 偏光成分は顕著な減少を示すと ともに、磁気カー効果によるs 偏光成分の増大が生じる. Fig. 1(d)は、射出瞳の電場分布に検光子を作用させた状態 を表している. SP の励起条件を満たす平面波成分によっ て、射出瞳に半径がkspの円環状の吸収パターンが形成さ れ、この円環に沿った光強度には、偏光の回転角 (θ_{κ}) と楕円率 ($\eta_{\rm K}$) に応じた変化が現れるため、磁気光学応 答 $\Phi_{\rm K} = \sqrt{\theta_{\rm K}^2 + \eta_{\rm K}^2}$ を求めることができる. Fig.2は coverglass/ZnO(30nm)/Ag(21.3nm)/ZnO(2nm)/







 $CoPt(1.0nm)/Pt(1.5nm)/SiO_x(5nm)の順に成膜し,波長 632.8nm の光を用いて測定した結果である. 検光子の偏光方向は 90°に調整してあり、<math>\theta_K$ は 83°、 η_K は 7°であった.

<u>参考文献</u>

1) H. Yamane,: Optics & Photonics Japan, 28pP1 (2023).

窒素源に有機物を用いた磁性窒化金属の簡易合成と磁性

武藤 孝宜、*木田 孝則、*萩原 政幸、本多 善太郎 (埼玉大院理工、*阪大先端強磁場)

Simple synthesis method using organic nitrogen sources and magnetic properties of magnetic metal nitrides Takasumi Muto, *Takanori Kida, *Masayuki Hagiwara, and Zentaro Honda (Saitama Univ., *AHMF, Osaka Univ.)

<u>研究背景</u>

窒化金属は半導体から超硬材料まで様々な用途に利用されており、Fe₁₆N₂や Mn₄N がレアアースレス磁性 材料の観点からも注目されている。既存の窒化金属合成法はアンモニアガスを用いた CVD が主であるが、高 温(~600 ℃)でのガス圧制御が必要である。我々はこれまでの研究で窒素を含む特定の有機物と金属粉を混合 加熱すると、比較的低温(~300 ℃)で金属粉の窒素化が進むことを明らかにしており、窒化金属の簡便な合成 法として有望である。また、本方法では表面が炭素で被覆された窒化金属粒子が形成されるため、酸化抑制 や炭素表面の有機物吸着能を利用した磁気分離材料としての応用も期待される。そこで磁性窒化金属である Mn₄N 等の生成条件を明らかにすることを目的に合成条件の検討及び生成物の磁性調査を行った。

<u>実験方法</u>

金属源には高純度化学製の粒径約1µmのMnおよびFe粉末を、窒素源にはテトラシアノベンゼン(TCB)、 テトラシアノエチレン(TCNE)、テトラシアノキノジメタン(TCNQ)などのシアノ基を有する有機物を用いた。 金属粉と各種有機物を所定のモル比で混合・プレス成型した後、シリカガラス管に減圧封入(2Pa)し、電気炉 で加熱した。加熱温度、加熱時間、有機原料を合成パラメーターとして検討し、各種反応生成物中に含まれ る窒化金属の種類を粉末X線回折(XRD)法で同定し、磁気特性を超伝導量子干渉素子磁束計で計測した。ま た、粒子形状を走査型電子顕微鏡により観察した。

実験結果

Mn-有機物反応生成物を XRD で同定したところ、300 ℃以下の反応温度では目的の Mn4N のみが生成した。 一方、350 ℃以上の反応温度では、Mn3N4, Mn2N 等が生成し、反応温度により窒素化の制御が可能であった。 Fig. 1 に Mn と各種有機原料を 300 ℃、1 週間反応させた生成物の XRD を示す。いずれも Mn4N のみが生成 しており、TCNE および TCNQ 原料が良好であった。一方、TCB では原料の残存が認められた。Fig. 2 にこ れら試料の温度 300 K における磁化曲線を示す。低磁場での急激な磁化の立ち上がりはフェリ磁性体である Mn4N が原因と考えられ、自発磁化値は TCNE 試料が最大であった。一方高磁場における磁化の線形増加は 残存する原料 Mn の磁性を示唆する。Fe 粉末の窒素化の結果と合わせて当日詳細を報告する。









二次元ハニカム格子磁石のエピタキシャル製膜

山田 豊和, 石井 榛 (千葉大学大学院工学研究院・物質科学コース) Epitaxial growth of a two-dimensional honeycomb lattice magnet Toyo Kazu Yamada and Haruki Ishii (Chiba Univ., Graduate School of Engineering, Department of Materials Science)

物質表面・界面では空間反転対称性が破れラシュバ分裂が生じ、また磁性物質による磁場は時間反 転対称性も崩す。加えて、二次元ハニカム格子の120度対称性は、磁性原子に磁気スラストレーシ ョンを与え、量子スピン液体のような特異な磁気構造を持つ事が示唆される。このような二次元磁 気格子は、これまで原子層物質を始め主としてバルク結晶合成で開発されてきた。

我々は、このような二次元量子スピン物質を、基板表面上に有機分子と磁性原子を蒸着し真空エ ピタキシャル成膜法を用いて実現したい。基板原子、磁性原子、有機分子の三者は融合するのか、 それとも分離成長するのか慎重に研究を進めてきた [1-4]。これら技術の確立は超高密度媒体の量 産化に向け重要である。

本実験は全て超高真空環境で、温度は低温から室温で実施した。四台の走査トンネル顕微鏡(STM) 装置を用いた。基板として原子テラス幅 50 nm 以上を持つ清浄な Cu(111)表面を使用した。

(a)研究当初、有機素子に広く使用されるフタロシアニン分子やポルフィリン分子を用いた。これらに、一個の磁性原子を吸着した。その結果、磁性原子は有機分子内に取れこまれず、分子下で 凝集した[1]。単純に、有機分子と磁性原子を吸着しても二次元格子は実現しない事が分かった。

(b) 有機分子で磁性原子を捉えるため"トラップ"機能をもつクラウンエーテル(BrCR)分子を用いた。Cu(111)上で BrCR 分子に磁性原子を吸着した。各 BrCR 分子は磁性原子を数個ずつトラップし磁性ナノ粒子化した。しかし、ハニカム格子にはならなかった [2,3]。

(c) 二次元格子を実現するには、分子や原子同士が表面上で二次元的に結合しなくてはならない。 そこで、臭素(Br)を終端に持つ前駆体分子を表面合成し共有結合有機構造体 (COF) を作製し活用し た。"ウルマン反応"を利用し数十 nm サイズの二次元ハニカム格子を完成した。これに磁性原子を 吸着した。やはり磁性原子はCOFとは結合せず、格子の穴の中で凝集し均一な大きさ(約1.5 nm)の 磁性金属ナノ粒子は作製できた [4]。磁性ナノ粒子のハニカム格子実現への道は拓けた。

(d) 二次元ハニカム格子磁石を実現するには、前駆体分子自身に工夫を凝らす必要がある。一次 元有機分子の終端に磁性原子が優先的に吸着する"しかけ"を施した。その結果、基板表面全体に 均一に広がる二次元ハニカム格子を作製できた。この格子は、基板原子ステップをまたぐように全 表面に広がっていた。

- E. Inami, M. Yamaguchi, R. Nemoto, H. Yorimitsu, P. Krueger, and T. K. Yamada, *The Journal of Physical Chemistry C* 124, 3621-3631 (2020).
- [2] T. K. Yamada, R. Nemoto, F. Nishino, T. Hosokai, C.-H. Wang, M. Horie, Y. Hasegawa, S. Kera, and P. Krueger, *Journal of Materials Chemistry C*, 12, 874-883 (2024).
- [3] T. K. Yamada, R. Nemoto, H. Ishii, F. Nishino, Y.-H. Chang, C.-H. Wang, P. Krueger, M. Horie, *Nanoscale Horizons*, 9, 718 (2024).
- [4] T. K. Yamada, S. Kanazawa, K. Fukutani, S. Kera, *The Journal of Physical Chemistry C*, 128, 1477 (2024).

スピンクロスオーバー化合物の多機能性

中嶋悠人、関根良博、張 中岳、禅野 光、速水真也 (熊本大院先端) Spin Crossover System with Multifunction Yuto Nakashima, Yoshihiro Sekine, Zhongyue Zhang, Hikaru Zenno, Shinya Hayami (Kumamoto Univ.)

Spin crossover (SCO) compounds with multi-functions are attracting attention because of its switching property. We have also investigated photo switching, thermochromism, luminescence, conductivity, gas adsorption, liquid crystal, ferroelectricity, single molecule magnet in SCO systems. Ferroelectrics that display electrically invertible polarization are attractive materials because of their potential for wide-ranging applications. To date, considerable effort has thus been devoted towards developing ferroelectric materials, particularly those comprising organic/inorganic compounds. In these systems, structural dynamics such as atomic displacement and reorientation of polar ions/molecules play a key role in the generation of reversible spontaneous polarization. Although there are many reports concerned with organic/inorganic ferroelectrics, ferroelectrics based on coordination metal complexes have been largely unexplored despite their often unique electronic and spin state properties. In this feature article, we discuss recent progress involving coordination metal complex-based ferroelectrics where the reversible polarization originates not only from structural dynamics (represented by proton transfer, molecular motion, and liquid crystalline behavior) but also from electron dynamics (represented by electron transfer and spin crossover phenomena) occurring at the metal center. Furthermore, unique synergy effects (i.e., magnetoelectric coupling) resulting from the structural and electron dynamics are described. Recently, we also focused on spin qubit behavior as a multi-functional SCO. In this presentation, I would like to discuss on multi-functional SCO.

Cu(II)錯体の S=1/2 系磁気緩和特性

脇坂聖憲¹・山下正廣² ¹千歳科技大・²東北大

S=1/2 system magnetic relaxation properties of Cu(II) complexes Masanori Wakizaka,¹ Masahiro Yamashita² ¹Chitose Institute of Science and Technology, ²Tohoku university

背景

金属有機フレームワーク (MOF) や分子鎖に、単一イオン磁石やスピン量子ビットを組み合わせることで、 新しい量子磁性材料およびスピン材料が生み出されると期待される。本研究では、磁性金属イオンをドープ するフレームワークとして反磁性の MOF を使用した新しい MOF と一次元 Cu(II)錯体鎖を示す (図 1)。 スピンドープ MOF

S=3/2のCo(II)またはS=1/2のCu(II)を、ドーピング量を変えて[CH₆N₃][Zn^{II}(HCOO)₃]のMOFにドーピン グした。ドープされたCo(II)イオンは、ゼロ磁場分裂の正のD項を持つ単一イオン磁性であり、静磁場下で 遅い磁気緩和を示した。^[1]一方、ドープされたCu(II)イオンも、静磁場下で遅い磁気緩和を示した。パルス電 子スピン共鳴分光法によって、マイクロ秒を超えるハーンエコー減衰時間と M_{S} = ±1/2スピンサブレベル間 のラビ振動を伴うスピンコヒーレンス特性が明らかになった。^[2]

一次元 Cu(II)錯体鎖

[Cu^{II}(chxn)₂I]I (chxn = 1R,2R-ジアミノシクロヘキサン)からなるハイゼンベルグ型の弱い反強磁性分子鎖を新規合成した。Cu(II)はヨウ化物によって架橋されており、弱い磁気双極子相互作用による反強磁性相互作用 (*J* = -0.5 cm⁻¹)を伴い、静磁場下で磁気緩和を示した。このCu(II)分子鎖は、一次元状に結合したスピン 量子ビットのモデルと考えることができる。これは一次元量子スピン系とスピンダイナミクス系が融合した 新しい量子磁性とみなせる。^[3]



図 1. (a) スピンドープ MOF の概念図と (b) [Cu^{II}(chxn)₂I]I の遅い磁気緩和.

謝辞

Dr. R. Ishikawa (福岡大)、Dr. H. Tanaka (千歳科技大)、Dr. S. Gupta (東北大)、Dr. M. Arczyński (東北大)、Dr. S. Takaishi (東北大)、Dr. Q. Wan (香港大)、Ms. H. Noro (大阪公大)、Prof. K. Sato (大阪公大) に感謝申し上げます。

- 1) M. Wakizaka, R. Ishikawa, H. Tanaka, S. Gupta, S. Takaishi, M. Yamashita, Small, 2023, 19, 2301966.
- 2) M. Wakizaka, S. Gupta, Q. Wan, S. Takaishi, H. Noro, K. Sato, M. Yamashita, *Chem. Eur. J.* **2024**, *30*, e202304202.
- 3) M. Wakizaka, M. Arczyński, S. Gupta, S. Takaishi, M. Yamashita, Dalton Trans. 2023, 52, 10294.

水素結合を用いたニトロキシルラジカル集積体の構築と低次元磁性

吉岡直樹、久富雄大、目見田捷俊、三浦洋平 (慶大理工)

Construction of nitroxyl radical self-assemblies using hydrogen bond and their low-dimensional magnetism N. Yoshioka, Y. Hisatomi, H. Memida, Y. Miura

(Keio Univ.)

<u>はじめに</u>

有機結晶では、分子設計と結晶設計を階層的に行うことができる ため多様な機能発現が期待される。分子磁性研究においては、個々 の分子が磁気モーメントの基本単位となるので、分子の配列様式が 結晶全体の磁気特性に大きく影響する。

当研究室では、ニトロニルニトロキシド(NN)のプロトンアク セプター性に着目し、NNの2位にベンゾイミダゾールを導入した 1が分子内および分子間の分岐型水素結合により一次元積層カラム 構造を形成し、カラム内で一次元強磁性的な相互作用を示すことを 見出している。しかし、1にメチル基を導入した2では互変異性の 影響で結晶が得られなかった。本研究では、1と同様の強磁性的な 一次元積層カラム構造を形成し置換基位置を規定することが可能な インドール環を導入した3の4つの修飾位置に対してメチル基およ びトリフルオロメチル基を導入した一連の誘導体を合成し、磁気特 性に及ぼす周辺置換基の効果を議論した(Scheme 1)。

実験方法

溶媒蒸発法により単結晶を作製しX線構造解析を行い磁気測定の 結果と合わせて、結晶構造と磁性の相関を整理した。また、構造解 析より得た結晶座標をもとに DFT 計算(UB3LYP/6-31G(d))を行い、 エネルギー計算からJ値を推定した。

<u>結果</u>

4-CH₃, **6-CH₃**, **6-CF₃**, **7-CH₃**, **7-CF₃** においては、分岐型水素 結合により **1**, **3** と同様な一次元積層カラム構造が形成された(Fig. 1)。結晶中の分子間の最接近したニ原子は、節である炭素原子とニ トロキシル酸素原子であった。磁気測定よりこれらの誘導体では、 分子間に強磁性的相互作用が観測された(Fig. **2**)。これは NN の SOMO間の重なり積分が小さくなり、分子間で強磁性的相互作用が 発現したためと考察した。 χ_MT 値の温度依存性は鎖間の分子場を考 慮した Heisenberg 一次元強磁性鎖モデルで解析することができた。低 温域においては、**6-CH₃**(空間群 *Pbca*)の χ_MT 値が著しく大きかった。 興味深いことに積層カラムの向きが反転した **6-CF₃**(空間群 *Pccn*) で は χ_MT 値の著しい増大は認められず、積層カラム間に弱い反強磁性 的な相互作用がはたらいていることが示唆された。

積層カラム構造が形成されなかった誘導体では、分子間に反強磁性的な相互作用がはたらき、分子配列様式が磁気特性に大きく影響していた。



4-CH ₃	CH ₃	Н	Н	Н
4-CF ₃	CF ₃	Н	Н	Н
5-CH ₃	Н	CH ₃	Н	Н
5-CF3	Н	CF ₃	Н	Н
6-CH ₃	Н	Н	CH ₃	Н
6-CF3	Н	Н	CF ₃	Н
7-CH3	Н	Н	Н	CH ₃
7-CF ₃	Н	Н	Н	CF ₃



Fig. 1 Crystal structure of 4-CH₃.



Fig. 2 Temperature dependence of $\chi_{\rm M}T$ and $\chi_{\rm M}^{-1}$ for **4-CH₃** at 1.8~300 K.

金属イオン間電子移動を示す磁気スイッチング分子の創出

関根 良博、福島 陸、速水 真也 (熊本大学)

Construction of Magnetic Switching Molecules Exhibiting Metal-to-Metal Electron Transfers Yoshihiro Sekine, Riku Fukushima, Shinya Hayami

(Kumamoto University)

はじめに

固体状態で分子内・分子間電子移動を示す物質群の開拓は、構造や電子状態・スピン状態の変化に伴う諸 物性の発現のみならず、外部刺激に応答し物性が可逆にスイッチングしうる機能性分子へと展開できるため、 物質科学において重要なテーマの一つである。分子性化合物、特に金属錯体は、配位子の分子設計によりス ピン状態・酸化還元状態の制御が可能であり、さらに構造的・電子的柔軟性に基づく特異的な外場応答性を 示すことから、有用な物質群といえる。^[1,2]我々は先に、シアン化物イオン架橋 Co₂Fe₂ 環状四核錯体が、固 体状態では温度変化や光照射を外部刺激とした金属イオン間電子移動を示すことを見出した。また、孤立分 子(0次元)である Co₂Fe₂ 四核錯体と架橋性プロトンドナー分子との反応により、分子の集積構造を制御で きることを見出した。^[3]本発表では、CoFe 二核錯体分子における磁気スイッチング挙動について報告する。 **実験結果**

単結晶 X 線構造解析の結果、化合物 1 はシアン化物イオンによって Fe イオンと Co イオンが架橋された二 核構造からなることが分かった(図 la)。化合物 1 とキラルジカルボン酸を共結晶化させることで得られた 化合物 3 は、[CoFe]二核錯体が水素結合によって擬一次元鎖状に配列することで結晶格子を構築していた。 温度可変測定の結果、3 では配位結合長が変化したことから金属イオンの電子状態およびスピン状態が変化 することが示唆された。一方で、3 と同一の磁性ユニットを有する 1 ではこの変化は観測されなかった。化 合物 3 の磁化率の温度依存測定の結果、室温近傍で磁化率の急激な変化が起こり、ヒステリシス温度を伴い ながら常磁性と反磁性を可逆に変換可能であることが明らかとなった。メスバウアー分光法測定の結果、こ のスピン状態変化は、Fe イオンと Co イオン間での電子移動と Co イオンのスピン転移が協奏的に生じる現象 によって引き起こされたものである(図 lb)。また、磁気相転移温度 *T*_{1/2} は、配位子の化学修飾によって制御 可能であり、同形構造で異なるスイッチング分子を合成可能であることが分かった。



図 1.(a) 化合物 3 の[CoFe]コア構造.(b) 化合物 3 の温度依存磁気測定.

- 1) J. Chen, Y. Sekine, Y. Komatsumaru, S. Hayami, H. Miyasaka, Angew. Chem. Int. Ed. 57, 12043-12047 (2018).
- 2) J. Chen, Y. Sekine, A. Okazawa, H. Sato, W. Kosaka, H. Miyasaka, Chem. Sci. 11, 3610-3618 (2020).
- 3) Y. Sekine, M. Nihei, H. Oshio, Chem. Eur. J. 23, 5193-5197 (2017).

Cu-Coフェライト単結晶の磁歪特性

小杉静花¹、久松美佑¹、藤枝俊^{2,3}、寺井智之¹、大石佑治¹、牟田浩明¹、清野智史^{1,2}、中川貴^{1,2} (¹大阪大工、²大阪大 OTRI-SPIN、³島根大 先端マテリアル研究開発協創機構)

Magnetostrictive properties of Cu-Co ferrite single crystals

S. Kosugi¹, M. Hisamatsu¹, S. Fujieda^{2,3}, T. Terai¹, Y. Ohishi¹, H. Muta¹, S. Seino^{1, 2}, T. Nakagawa^{1, 2}

(¹Graduate School of Engineering, Osaka Univ., ²OTRI-SPIN, Osaka Univ., ³IAMR&D, Shimane Univ.)

はじめに

最近、我々は立方晶スピネル構造の CoFe₂O₄の多結晶において、Co の Cu 部分置換により磁歪特性が向上 することを明らかにした¹⁾。最適組成である Cu_{0.6}Co_{0.4}Fe₂O₄の多結晶では、磁歪材料として市販されている Galfenol (Fe–Ga 合金)を凌駕する 511 ppm の最大歪み量が得られる¹⁾。CoFe₂O₄の磁歪特性は結晶方位に強 く依存し、<100>方向で最も大きな歪み量が報告されている²⁾。したがって、Cu_xCo_{1-x}Fe₂O₄系(Cu–Co フェ ライト)の単結晶における磁歪特性に興味が持たれる。そこで、本研究ではフラックス法により Cu–Co フェ ライトの単結晶の育成を試み、その歪み量を明らかにすることを目的とする。

実験方法

 α -Fe₂O₃、CoO および Cu₂O の粉末試薬を出発原料として使用し、化学組成が Cu_{0.5}Co_{0.5}Fe₂O₄になるように 秤量した。それらをフラックス(NaB₄O₇・10H₂O)と共に混合し、白金るつぼに入れ、電気炉(1350 °C)に て溶解および凝固させた。その後、白金るつぼを硝酸に入れ、フラックスを除去して塊状の Cu-Co フェライ ト試料を得た。試料の結晶方位の評価には Laue カメラを用いた。また、試料を溶解した溶液の ICP-AES 分 析により組成を評価した。磁歪特性の評価は歪みゲージ法で行った。

実験結果

フラックス法により得られた Cu-Co フェライト試料の外 観を Fig. 1 に示す。試料の大きさは 5 mm×5 mm×4 mm 程度 であった。Fig. 1(a)に観察されるように、試料は単結晶の特徴 であるファセットを示す。また、Laue 写真により試料が単結 晶であることを確認した。さらに、ICP 分析の結果、得られ た試料中の Cu、Co および Fe のモル比は、0.3:0.6:2.1 であ った。つまり、歪みが測定可能な大きさの Cu-Co フェライト の単結晶の育成に成功した。

Cu-Co フェライト単結晶試料の<100>方向に対する歪み $\Delta L/L$ の測定を行った。測定方向に平行な<100>方向に対し、 平行および垂直方向に磁場を印加した。印加磁場方向を平行 (H_{\parallel}) から垂直 (H_{\perp}) に変化させた際に得られる最大歪み量 $|\Delta L/L(H_{\parallel}) - \Delta L/L(H_{\perp})|$ の印加磁場依存性を Fig. 2 に示す。 $|\Delta L/L(H_{\parallel}) - \Delta L/L(H_{\perp})|$ は4kOe 程度で値がほぼ飽和する。また、 25 kOe における $|\Delta L/L(H_{\parallel}) - \Delta L/L(H_{\perp})|$ は、最適組成の Cu-Co フェライトの多結晶の値よりも遥かに大きい 860 ppm に達す ることが明らかになった。



Fig.1 Photographs of the (a) top and (b) side of a Cu–Co ferrite single crystal



- Fig.2 Magnetic field dependence of $|\Delta L/L(H_{\parallel})-\Delta L/L(H_{\perp})|$ of the Cu–Co ferrite single crystal.
- S. Kosugi, M. Hisamatsu, Y. Ohishi, H. Muta, S. Seino, T. Nakagawa and S. Fujieda., *Mater. Trans.* 64 (2023) 2014-2017.
- 2) R. M. Bozorth, Elizabeth F. Tilden and Albert J. Williams, Phys. Rev., 99 (1955) 1788-1798.

γ-Fe₂O₃を含むポーラスシリカガラスの磁性及び光透過特性

佐藤 陽斗、*木田 孝則、*萩原 政幸、本多 善太郎 (埼玉大院理工、*阪大先端強磁場)

Magnetic properties and optical transmission spectra of γ-Fe₂O₃ containing porous silica glass Akito Sato, *Takanori Kida, *Masayuki Hagiwara, and Zentaro Honda (Saitama Univ., *AHMF, Osaka Univ.)

<u>研究背景</u>

透明磁性体はその磁気光学特性により光アイソレーターなどに用いられているが、その種類は少なく、材 料開発が望まれている。磁性体に光透過性を付与する方策としては光透過性マトリックス中に磁性ナノ粒子 を分散させる方法が一般的であり、可視光透過性マトリックスには有機ポリマーやゾルゲル法で作製された ポーラスガラスが広く用いられている。ポーラスガラスにはゾルゲルガラスのほかに分相法ガラスがあり、 その構造上の特徴である両端貫通した細孔により、溶液への浸漬により容易にイオンを取り込むことが可能 である。今回我々は磁性体である γ-Fe₂O₃を分相法ガラスの細孔内に合成し、磁性と光透過性を併せ持つ材料 を得ることを目的とし、目的の性質を持つガラスを得たので報告する。

<u>実験方法</u>

分相法ガラスは平均細孔径 2 nm のシリカ主成分のものを用いた。硝酸鉄の飽和水溶液に直径 3 mm の円柱 形状分相法ガラスを1日浸漬させ、空気中 50 ℃で乾燥後に 400 ℃で加熱した。次に環状炉を用いて混合ガ ス(N₂ 97 %、H₂ 3 %)中 400 ℃で加熱後に空気中 240 ℃で加熱し、細孔内に γ-Fe₂O₃を形成した。反応後分相 法ガラスの磁気特性を超伝導量子干渉素子磁束計により、可視吸収スペクトルを分光光度計により測定した。

<u>実験結果</u>

 γ -Fe₂O₃を細孔に導入した分相法ガラスは透明感のある褐色を呈し、室温でネオジム磁石に引き寄せられた。 その磁気特性を Fig.1 に示す。磁化の立ち上がりは緩やかであり、磁化の温度依存性を測定したところ、超 常磁性的な温度依存を示した。 γ -Fe₂O₃を細孔に導入したガラスの可視吸収スペクトルを Fig.2 に示す。長波 長域で光透過を示し、 γ -Fe₂O₃純物質と類似したスペクトル特性であった。ガラス細孔中の γ -Fe₂O₃が超常磁 性を示した原因として平均細孔径が 2 nm と極めて小さいため、 γ -Fe₂O₃の十分な粒成長が起こらなかったこ とが考えられる。当日詳細を報告する。







- 274 -

27aB - 1

スピン三重項超伝導体におけるスピンカロリトロニクス

京大理^A,京大基研^B,阪大院基礎工^C,東北大院工応物^D,ルイジアナ州立大^E 松下太樹^{A,B},水島健^C,安藤慈英^C,正木祐輔^D,藤本聡^C,Ilya Vekhter^E

スピン三重項超伝導におけるクーパー対のスピンは、トポロジカル超伝導や非ユニタリ 超伝導などのエキゾチックな超伝導の起源となる。具体的には、

- 時間反転対称なトポロジカル超伝導体は、クーパー対のスピンカイラリティ (< S_uL_v >)、
- 非ユニタリ超伝導体は、クーパー対のスピン分極(< Su >)により実現する。

しかし、これらのクーパー対のスピン構造を捉える物理現象は明らかにされておらず、 そのことが、物質におけるトポロジカル超伝導や非ユニタリ超伝導の立証を妨げてい た。本発表では、時間反転対称なトポロジカル超伝導体と非ユニタリ超伝導体にお いて、温度勾配により誘起されるスピン伝導を観測することにより、クーパー対のスピン カイラリティやスピン分極を検出できることを示す。具体的には、

- 時間反転対称なトポロジカル超伝導体においては、クーパー対のスピンカイラリティがスピンネルンスト効果(温度勾配に垂直な方向のスピン伝導)[1]、
- 非ユニタリ超伝導体においては、クーパー対のスピン分極がスピンゼーベック 効果(温度勾配に沿ったスピン伝導)を引き起こすことを示す[2]。

これらの温度勾配によるスピン伝導は、クーパー対のスピンにより引き起こされるため、 超伝導転移温度以下で増大する。そのため、スピンネルンスト伝導率やスピンゼーベ ック伝導率が、超伝導転移温度以下で増大する振る舞いを観測することにより、クー パー対のスピンカイラリティやスピン分極を立証できる。

引用文献

[1] T. Matsushita, J. Ando, Y. Masaki, T. Mizushima, S. Fujimoto, and I. Vekhter Phys. Rev. Lett. **128**, 097001(2022).

[2] T. Matsushita, T. Mizushima, Y. Masaki, S. Fujimoto, and I. Vekhter arXiv: 2404.02633 (2024).

All-in-one evaluation method for transverse thermoelectric properties of a single magnetic thin film device

IMR, Tohoku Univ.¹, CSIS, Tohoku Univ.²

^oTakumi Yamazaki¹, Norihiko L. Okamoto¹, Tetsu Ichitsubo¹, and Takeshi Seki^{1,2} E-mail: takumi.yamazaki.d5@tohoku.ac.jp

Transverse thermoelectric conversion, in which a temperature gradient leads to a transverse electric field, is a promising phenomenon for realizing the next-generation energy harvesting technology [1]. The anomalous Nernst effect (ANE) is a representative transverse thermoelectric effect in magnetic materials. The performance of transverse thermoelectric conversion for the ANE is characterized using the figure of merit $z_T T$ (= $S_T^2 \sigma_{yy} T/\kappa_{xx}$), where S_T , σ_{yy} , κ_{xx} and T denote the transverse thermoelectric coefficient, electrical conductivity, thermal conductivity, and temperature, respectively. Although thin film forms offer advantages from the viewpoint of practical thermoelectric applications, the precise evaluation of their thermoelectric figure of merit is quite challenging. Recently, we have demonstrated that $z_T T$ in thin films can be precisely quantified by the combined use of heat-flux method, time-domain thermoreflectance, and four-terminal method [2]. However, the samples specialized for each evaluation method are required, which slows down the throughput speed and prevents the rapid materials development.

In this study, we propose an all-in-one method to evaluate $S_{\rm T}$, σ_{yy} , and κ_{xx} of thin films. The device features a multilayer structure comprising of substrate/magnetic film sample/insulator/transducer. The device structure was fabricated by photolithography and Ar ion milling, enabling the simultaneous measurement of these three parameters with a single device. Herein, κ_{xx} is determined by fitting the temperature response of Joule heating to a theoretical curve derived from a one-dimensional heat conduction model, known as the 2ω method [3]. $S_{\rm T}$ is obtained from the relation of $S_{\rm T} = \kappa_{xx}\Delta T_{\rm AEE}/(dj_cT)$ [4], where *d* and *j*_c represent the sample thickness and applied charge current density, respectively. $\Delta T_{\rm AEE}$ denotes the temperature change induced by the anomalous Ettingshausen effect (AEE), which is the reciprocal phenomenon of the ANE. σ_{yy} is measured using the four-terminal method. To detect the temperature response induced by Joule heating and $\Delta T_{\rm AEE}$, the lock-in thermoreflectance is employed, which is an optical thermometry based on the temperature dependence of reflectivity [5]. To verify the accuracy of the developed 2ω method, κ_{xx} of an Al-O insulating film was measured, yielding a value of 1.15 ± 0.22 W m⁻¹ K⁻¹, which is consistent with values reported in the previous study [6]. Subsequently, the magnetic field dependence of $\Delta T_{\rm AEE}$ of CoFeB film was measured. The obtained response reflects the magnetization curve of the CoFeB film, successfully evaluating the AEE. In the presentation, the details of each measurement method will be explained.

[1] K. Uchida and J. P. Heremans, Joule 6, 2240 (2022). [2] T. Yamazaki *et al.*, Phys. Rev. Applied 21, 024039 (2024). [3] Y. Nakamura *et al.*, Nano Energy 12, 845 (2015). [4] A. Miura *et al.*, Appl Phys. Lett. 115, 222403 (2019). [5] T. Yamazaki *et al.*, Phys. Rev. B 101, 020415(R) (2019). [6] S.-M. Lee *et al.*, Int. J. Thermophys. 38, 176 (2017).

局所熱流注入による磁気イメージング

 一色弘成、Nico Budai、Zheng Zhu、小林鮎子、上杉良太、肥後友也^A、中辻知^A、大谷義近^B (東大物性研、^A東大理、^B理研 CEMS)

Magnetic imaging by local heat injection H. Isshiki, N. Budai, Z. Shu, A. Kobayashi, R. Uesugi, T. Higo^A, S. Nakatsuji^A, Y. Otani^B (ISSP, ^AUniv. of Tokyo, ^BRIKEN)

<u>はじめに</u>

近年、新しい磁性トポロジカル材料が続々と発見されており、それらをスピントロニクスデバイスに組み 込んで高機能化を目指す研究が盛んに行われている。そのため、微細加工された磁性トポロジカル材料に対 する磁気イメージングがますます重要になっている。本発表では、従来の強磁性体のみならず、反強磁性 Weyl 半金属のナノ細線に対しても有効な、空間分解能約80 nm の新しい磁気イメージング手法を報告する。

<u>実験方法</u>

磁性体内の磁気分極と温度勾配の外積方向に電圧を生じる異常ネル ンスト効果に着目した。原子間力顕微鏡の探針を、ヒーターで加熱し た試料細線に接触させることで局所的な面直温度勾配を作る。Fig.1 に 示すように、探針を接触モードでスキャンし試料細線両端に生じる異 常ネルンスト電圧をマッピングすることにより磁気像を得る¹⁾。本稿 では、反強磁性体であるにも関わらずその特異なバンド構造によって 異常ネルンスト効果を示す、反強磁性 Weyl 半金属 Mn₃Sn 多結晶のナ ノ細線に対する測定結果を示す。測定は大気・室温の環境で行った。

<u>実験結果</u>

Mn₃Sn ナノ細線の凹凸像と、対応する磁場印加前後の異常ネ ルンスト電圧マッピング像を Fig.2a,b,c にそれぞれ示す。 Fig.2b,c の正(負)の電圧は、その領域のクラスター磁気八極子 (Mn₃Sn の磁気分極)が+y(-y)方向を向いていることを示してい る。初期状態の Fig.2b では、異常ネルンスト電圧の符号が異な る数百ナノメートル程度の大きさの領域が複数存在しており、 結晶粒に閉じ込められた磁気八極子のドメインがランダムに 分布していることがわかる。一方、外部磁場により細線短手方 向(+y 方向)に磁気八極子を飽和させた後、ゼロ磁場で同じ領域 をマッピングした Fig.2c では、全体的に磁気八極子が+y 方向 を向いていることがわかる。形状磁気異方性のない Mn₃Sn では、 細線の短手方向に、残留磁気分極が生じていることが可視化さ れた。Fig.2cの電圧信号が一様ないことは、多結晶で一部の結 晶粒が異常ネルンスト効果を発現していないことを示してい る。このように、本手法によって、多結晶 Mn₃Sn ナノ細線の磁 気的な構造について新しい知見を得ることができた²⁾。

参考文献:

N. Budai et al. Appl. Phys. Lett. 122, 102401 (2023)
 H. Isshiki et al. Phys. Rev. Lett. 132, 216702 (2024)



Fig.1 Concept of the experiment.



Fig. 2 (a) Topography of the Mn₃Sn wire. (b), (c) Local anomalous Nernst voltages before and after applying an external magnetic field. The Seebeck signals have been removed.

GdFeCo フェリ磁性薄膜における熱電発電の負荷抵抗依存性

小林祐希¹, 笠谷雄一², 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)

Load resistance dependence of thermoelectric generation in GdFeCo ferrimagnetic thin film

Yuki Kobayashi¹, Yuichi Kasatani², Hiroki Yoshikawa², Arata Tsukamoto²

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

²College of Science and Technology, Nihon Univ.)

<u>はじめに</u>

27aB - 4

温度勾配と磁化に共に直交する方向に電界が生じる異常ネルンスト効果(ANE)は、熱を直接電気エネルギーに変換する Thermoelectric generator(TEG)への応用が期待されている. 我々はこれまでに、電力抽出用負荷抵抗を接続した GdFeCo フェリ磁性薄膜における ANE に根差した熱電発電量の負荷特性が、理想電流源と内部抵抗が並列接続した等価電源回路のような特性を示すことを報告してきた^{1)~3)}.等価電源回路の各素子値と各種物理現象との対応付けにより、熱電効果の等価回路は TEG の負荷特性制御・動作解析の指標となり得るが、先行研究¹⁾⁻³⁾では等価内部抵抗と薄膜物性との対応付けは未検討であった.本報告では、GdFeCo 薄膜における熱電発電の等価電源回路における内部抵抗値と薄膜物性の対応付けに向けた計測検討を行った.

<u>実験方法</u>

垂直磁化膜となるように設計した SiN(60 nm) / Gd₂₂Fe₆₈Co₁₀(20 nm) / SiN(5 nm)を Si 基板上にマグネトロン スパッタ法で作成した.対象薄膜における熱電発電値(負荷抵抗電圧 V_{LT})の負荷抵抗 R_L に対する変動を検討

するため, Fig. 1 のように薄膜に種々の負荷抵抗 R_{LT} を接続した. 薄膜に対して膜面垂直(z)方向に外部磁界 H を印加し, 膜面内(x) 方向に温度勾配 $\nabla_x T$ を与え, V_{LT} を測定した. また, 負荷抵抗を接 続せずに薄膜素子の端子間抵抗 R_{pin} の計測も行った.

<u>実験結果と考察</u>

種々の負荷抵抗 R_{LT} における異常ネルンスト効果に起因する負荷電圧 V_{LT} を Fig. 2 に示す. V_{LT} は R_{LT} の増加に伴い連続的に増加し, R_{LT} の増加と共に一定値に漸近する.この V_{LT} の負荷抵抗依存性につき電子回路理論に基づいて評価する.理想電流源 I と内部抵抗 r_{int} および負荷抵抗 R_L の並列回路で構成される等価回路における負荷電圧 V_L は

$$V_{\rm L} = Ir_{\rm int}R_{\rm L}/(r_{\rm int} + R_{\rm L})$$

で算出できる. この集中定数回路では, $r_{int} \ge R_L$ が等しい場合, V_L は開放電圧の半値となる. ここで,有限の負荷抵抗 ($R_{LT} \le 200 \text{ k}\Omega$)における実測値 V_{LT} の近似線から $V_{LT}(R_{LT}) = V_{LT} (200 \text{ k}\Omega)/2$ となる実効的内部抵抗 $r_{int-eff} \ge 2$ 積もった. (1)式に $r_{int-eff} \ge C$ 代入し算出した等価回路(Fig. 2 挿入図)における $V_{LT} \ge Fig. 2$ に破線で示す. 実測値(plot)と算出値(破線)は R_{LT} に対し同様の変化を示す. 一方で,端子間抵抗 R_{pin} は 80 Ω であり, $r_{int-eff}$ (=360 Ω)に比べ比較



Fig.1 schematic picture of the experimental setup.



Fig.2 Load resistance R_{LT} dependence of load voltage V_{LT} of GdFeCo thin film.

的小さな値を示し,起電力を表す電圧源および端子間抵抗に加え,付加的直列抵抗成分で示されるエネルギ 一損失機構の存在を示唆する結果となった.

(1)

- 1) Y. Kobayashi et al., 第47回 日本磁気学会学術講演会概要集. 28aB-6 (2023).
- 2) Y. Kobayashi et al., 2023 年マグネティックス研究会(IEE-MAG), MAG23-089 (2023).
- 3) Y. Kobayashi et al., MORIS2024, Th-P-14 (2024).

CoFe/Cu 多層膜の磁気熱抵抗効果による巨大熱伝導率変化

牧野楓也^{1,2,4}, 平井孝昌², 志賀拓麿³, 首藤浩文², 藤久裕司³, 大柳洸一⁴, 小林悟⁴, 佐々木泰祐², 八木貴志³, 内田健一^{1,2,5}, 桜庭裕弥^{1,2} (筑波大¹, NIMS², 産総研³, 岩手大⁴, 東大⁵)

Huge changes in thermal conductivity by magneto-thermal resistance effect in CoFe/Cu multilayer Fuya Makino^{1,2}, Takamasa Hirai², Takuma Shiga³, Hirofumi Suto², Hiroshi Fujihisa³, Koichi Oyanagi⁴, Satoru Kobayashi⁴, Taisuke Sasaki², Takashi Yagi³, Ken-ichi Uchida^{1,2,5}, Yuya Sakuraba^{1,2}

(Univ. of Tsukuba¹, NIMS², AIST³, Iwate Univ.⁴, Univ. of Tokyo⁵)

はじめに

巨大磁気抵抗効果(GMR)は磁性多層膜において隣り合う強磁性層の磁化配置に依存して電気伝導率 が大きく変化する現象である。巨大磁気熱抵抗効果(Giant magneto-thermal resistance effect: GMTR) は、磁性多層膜の磁化配置に依存し熱伝導率 κ が変化する現象であり、非接触かつ能動的な伝熱制御 技術の動作原理として期待されている。近年、中山らによって、全層が bcc 構造を有する Co₅₀Fe₅₀(CoF e)/Cu エピタキシャル多層膜系における、膜面直方向の熱伝導率が磁化配置に依存して大きく変化する ことが報告された¹⁾。観測された熱伝導率変化量 $\Delta \kappa$ と磁気熱抵抗比(MTR 比)はそれぞれ24.8 Wm⁻¹K⁻¹と150%であり、MTR 比は室温で磁気抵抗比(MR 比)60%の2倍以上に及ぶ値を示した。この結果 は熱キャリアとして電子とフォノンの寄与だけでは説明できないため、非従来的な熱輸送原理が存在 することが示唆されている。この起源を明らかにするためには、各層膜厚や材料組成等を変えた系統 的な実験と理論的アプローチが必要と考えられる。本研究ではその第一段階とし、CoFe 膜厚の異なる 試料を作製し、GMTR を評価するとともに、熱伝導率に対する電子及びフォノン成分を理論的に解析 した。

実験方法

先行研究の CoFe 3 nm¹⁾より強磁性膜厚の厚い CoFe(6 nm)/Cu 多層膜を MgO 基板(001) 上にマグネト ロンスパッタリング法により作製し、膜面直方向の熱伝導率計測には、時間領域サーモリフレクタン ス (Time-domain thermoreflectance: TDTR) 法を使用した²⁾。得られた温度応答を一次元熱伝導方程式 でモデル化し、解析を行うことで試料の熱伝導率を決定した。

実験結果

作製した CoFe(6 nm)/Cu 多層膜の TDTR 測定を行った結果、Fig.1 (a)に示す通り、平行状態と反平行状態の明瞭な温度応答の変化を観測した。モデル解析により得られた熱伝導率 κ は平行状態(69.5 Wm⁻¹K⁻¹)から反平行状態(34.8 Wm⁻¹K⁻¹)まで変化し、 $\Delta \kappa$ は 34.7 Wm⁻¹K⁻¹と先行研究の約 1.4 倍に及ぶ非常に大きな変化量を示した。電子のスピン自由度を取り入れた、2 流体モデル(Valet-Fert モデル)³⁾を用いて膜面

直方向の MR 比を計算し MTR 比と比較した結果、MTR 比 が MR 比を上回った。大きな $\Delta \kappa$ の要因を調べるため、熱伝 導率の電子成分を Valet-Fert モデルにより得られた電気抵 抗率をヴィーデマン・フランツ則に基づき算出し、フォ ノン成分を TEM(Fig.1 (b))によるナノ構造解析結果に基 づき非平衡分子動力学法から見積もった。その結果、平 行配置においては、電子とフォノン以外の未解明な熱キ ャリア成分が全体の熱伝導率の4割近くにも及び、 $\Delta \kappa$ への寄与も大きいことが示唆された。

参考文献

1) H. Nakayama et al., Appl. Phys. Lett. 118, 042409 (2021).

2) D. G. Cahill, Rev. Sci. Instrum. 75, 5119 (2004). 3) T. Valet et al., Phys. Rev. B 48, 7099 (1993).



黒線はモデル解析結果、(b) TEM 画像

異なる磁性材料と非磁性層が積層した多層膜における マグノンドラック効果の数値的研究

庄子瑛章, 水口将輝*, 大江純一郎

(東邦大,名大*)

Numerical study on the magnon drag effect in magnetic multilayers

T. Shoji, M. Mizuguchi*, J. Ohe

(Toho Univ., *Nagoya Univ.)

<u>はじめに</u>

熱とスピンダイナミクスの相関効果を扱うスピンカロリトロニクス分野において、温度勾配 に対して垂直方向に電圧が生じる異常ネルンスト効果に注目が集まっている。磁性体中の熱電 効果では、通常の電子系の熱起電力に加えて、スピン波の運ぶ電流(マグノンドラック効果) も重要な役割を果たしており、実験と理論の両面から調べられている[1,2]。電子系の熱起電力 を増強する方法はバンドエンジニアリングなどによって提案されているが、マグノンドラック 効果を増強する方法については明らかになっていない。本研究では、このマグノンドラック効 果を増強する系として磁性多層膜に注目し、数値的な解析を行った。

解析方法

Fig.1のような多層膜について、温度勾配下での磁化のダイナミクスを数値的に解いた。特に、層内や層間の強磁性結合定数が異なる場合の指向性スピン波励起に注目した。有限温度の効果は、揺動散逸定理から求められるランダム磁場としてLLG方程式に取り入れた。

解析結果

計算によって、温度勾配を印加することで勾配方向に進行するスピン波振幅の増大を確認した。また、層間結合によってスピン波バンドの分裂が起こり、磁性層間に反強磁性結合があるときに、マグノンドラック効果がより大きくなることが明らかになった。これは反強磁性結合によるスピン波振幅の増大を意味している。また、異なる磁性材料を用いた多層膜では、下層内の交換相互作用が弱いほど上層でのマグノンドラック効果が大きくなることが明らかとなった。

本研究の一部は、科学研究費補助金 基盤研究 (S) (Grant No. 21H05016)、(B) (Grant No. 23K21077)の支援を受けて行われた。

<u>参考文献</u>

[1] T. Yamaguchi and H. Kohno, Phys. Rev. B 99, 094425 (2019).

[2] G. E. W. Bauer, E. Saitoh and J. van Wees, Nature Materials 11, 391 (2012).





Fig.1 Thermal induced spin waves in magnetic multilayers.

Fig.2 Dispersion of the spin wave in magnetic multilayers. Color represents the magnification of the spin wave amplitude

不規則構造 Fe-Ga 合金薄膜の単結晶及び多結晶構造における 異常ホール効果の起源解析

中川碧¹,遠山諒², Simalaotao Kodchakorn^{3,2}, 増田啓介², 三浦良雄^{4,2}, 首藤浩文², 桜庭裕弥^{2,3}, 神田哲典¹ (大島商船高専¹, NIMS², 筑波大³, 京工繊大⁴) Analysis of Origin of Anomalous Hall Effect in

Single Crystal and Polycrystalline of Fe-Ga Disordered Alloys Thin Films

A.Nakagawa¹, R.Toyama², K.Simalaotao^{3, 2}, K.Masuda², Y.Miura^{4, 2}, H.Suto², Y.Sakuraba^{2, 3}, T.Koda¹

(NIT, Oshima Col.¹, NIMS², Tsukuba Univ.³, Kyoto Inst. of Tech.⁴)

はじめに

近年, Society 5.0 の実現が進む中,環境やインフラ等の様々な情報を高速・高感度かつ低消費電力で取得す る革新的なセンサ実現の需要が高まっている.省エネルギー社会の実現に期待される熱流センサは,熱エネ ルギーの流れを直接的に検知することが可能だが,汎用的な熱流センサは未だに実現されていない.磁性体 で発生する異常ネルンスト効果(ANE)は熱流と磁化に垂直な方向に電場が生じる熱電効果である.ANE モ ジュールはシンプルな面内接続構造を実現できるため,耐久性,フレキシビリティに優れる¹⁾.しかし,材料 単体で得られる熱起電力は低く,高い熱起電力を示す磁性材料の探索が進められている.不規則構造 Fe-Ga 合金薄膜の ANE は高い熱起電力を示すことが報告されているが,その起源はまだ明確には解明されていない ²⁾.本研究は,系統的に組成を変化させた Fe_{100-x}Ga_x合金薄膜の単結晶及び多結晶薄膜を作製し,ANE と大き な相関がある異常ホール効果(AHE)について検討した.

実験方法

Fe_{100-x}Ga_xの単結晶及び多結晶薄膜は MgO(100)単結晶基板,熱酸化膜付き Si 基板上にコスパッタ法でそれ ぞれ作製された.組成分析,結晶構造解析,磁化特性はそれぞれ蛍光 X 線分析装置,X 線回折装置,振動試 料型磁力計で評価された.更に物理特性測定装置により,電気抵抗率 ρ_{xx} 及びホール抵抗率 ρ_{yx} を 15 K から 300 K の間で測定し,AHE の輸送特性についてスケーリング解析 ($\rho_{yx}^{A} = a\rho_{xx0} + b\rho_{xx}^{2}$)を行った³⁾.ここで ρ_{xx0} は残留抵抗率を表している. ρ_{yx}^{A} は正常ホール効果を分離するために,飽和磁場より高磁場側における ρ_{yx} の 磁場依存性を線形近似することで得た切片値を採用している.

実験結果

Fig. 1(a), (b)に単結晶及び多結晶薄膜におけるρ^A_{yx} とρ²_{xx}の関係をそれぞれ示す.この関係をスケーリン グ解析式に基づいて線形近似を実行すると,外因性 のパラメータαと内因性のパラメータbが得られる. Fig. 1(c), (d)に単結晶及び多結晶薄膜における内因 性,外因性寄与のGa組成依存性をそれぞれ示す.単 結晶及び多結晶薄膜ともにGa濃度が増加するにつ れ,外因性項αρ_{xx0}が増加する.特に,多結晶薄膜に おけるAHEの輸送特性は,外因性が支配的であるこ とがわかる.スケーリング解析式のαρ_{xx0}はスキュー 散乱を意味するが,その他に結晶粒界起源の散乱も AHEに寄与することが示唆される.

本研究は、NIMS インターンシップ制度及び NIMS 連携拠点推進 制度の支援により遂行されました.



Fig. 1. The scaling analysis of the anomalous Hall effect in (a) single crystal and (b) polycrystalline. The composition dependence of the extrinsic contribution and the intrinsic contribution in (c) single crystal and (d) polycrystalline.

- 1) Yuya Sakuraba et al., Appl. Phys. Express 6, 033003 (2013)
- 2) Hiroyasu Nakayama, Keisuke Masuda, and Yuya Sakuraba et al., Phys. Rev. Mat.3, 114412 (2019)
- 3) Yuan Tian, Li Ye, and Xiaofeng Jin, Phys. Rev. Lett. 103, 087206 (2009)

Ir 添加による Fe₃Co 単結晶薄膜における 異常ホール効果・異常ネルンスト効果に対する外因性の寄与

遠山 諒, 周 偉男, 桜庭 裕弥 (物質・材料研究機構)

Extrinsic contribution to the anomalous Hall effect and Nernst effect in Fe₃Co single-crystal thin films by Ir doping R. Toyama, W. Zhou, and Y. Sakuraba (National Institute for Materials Science)

<u>はじめに</u>

磁性体における熱電輸送特性として、異常ネルンスト効果 (ANE) が挙げられる。ANE とは、磁性体に 温度勾配 (∇T) を印加したとき、∇Tと磁化の単位ベクトル (m) に垂直な方向に異常ネルンスト電界 (Eane) が生じる現象である [1]。 E_{ANE} は、異常ネルンスト係数 (S_{ANE})を用いて $E_{ANE} = S_{ANE}$ ($\nabla T \times \mathbf{m}$)と表される。 一方、∇T を電流に変えた場合は、印加電流と磁化に垂直な方向に異常ホール電圧が生じる異常ホール効果 (AHE) が観測される。SANEは、異常ネルンスト伝導度 (α,y) を介した VT の横方向電流への直接変換による内 因性の寄与と、AHE とゼーベック効果の掛け合わせの寄与の和で表される。内因性起因の ANE については、 モットの関係式より、avvは内因性異常ホール伝導度 (ov)のエネルギー微分として表されるため、内因性AHE と密接に関わっている。ベリー曲率の積分として σxyを計算することにより、内因性 αxyを理論的に計算する ことが可能である。実験的にも、ワイル半金属 Co2MnGa に代表されるように、特異な電子構造に由来して、 大きな内因性 asyが得られることが報告されている [2]。一方、ANE に対する外因性の寄与については、AHE にはスキュー散乱やサイドジャンプといった外因性の寄与が知られていることから、ANE に対しても外因性 AHE の寄与が関係することが考えられる。しかしながら、理論計算の適用の難しさから、あまり深く研究さ れてきていない。実験的に AHE の支配的起源を変化させた例として、強いスピン軌道相互作用を持つ重元素 を試料に添加する方法が報告されている [3]。そこで本研究では、単純な 3d 遷移金属である Fe3Co に重元素 であるIrを添加した組成傾斜薄膜を作製し、AHEに対する外因性の寄与の割合を系統的に変化させることで、 ANE に対する外因性の寄与について、輸送特性測定から実験的に考察することを試みる。

<u>実験方法</u>

コンビナトリアルスパッタ装置を用いて、(Fe₃Co)_{100-x}Ir_x ($x \le 12\%$) 組成傾斜膜を MgO(100)基板上に成膜した。 れ成傾斜膜の結晶構造を X 線回折 (XRD) により評価した。その後、フォトリソグラフィと Ar イオンミ リングにより、組成傾斜膜をホールバー素子に加工した。PPMS 等を用いて、加工したデバイスの AHE、ANE、 縦抵抗率、ゼーベック効果の Ir 組成依存性を評価した。

実験結果

XRD 測定結果より、(Fe₃Co)_{100-x}Ir_x組成傾斜膜は MgO(100)基板上にエピタキシャル成長しており、x = 7.3%から B2 規則構造 [4] を有することが確認された。AHE 測定結果より、Ir 添加により、300 K において x = 12%で ≈ 9.2 倍という異常ホール抵抗率の増大が観測された。AHE のスケーリング解析を行った結果、Ir 低濃度 領域では Ir 添加直後に外因性寄与が急激に増加し、高濃度領域では内因性寄与が支配的になることがわかった。 た。一方、ANE は、AHE とは異なり、顕著な組成依存性を示さなかった。これらの輸送特性結果より、SANE に対しては、AHE とゼーベック効果に関係した寄与が支配的であることがわかった。また、 a_{xy} は、Ir 添加直 後に正から負の値へと急激に変化し、 $x \approx 1\%$ で負の最大値を示し、x = 12%ではほぼゼロまで減少することが わかった。以上の実験結果から、Ir 添加直後に急激に値・符号が変化する a_{xy} と、Ir 添加直後に増加する AHE の外因性寄与の関連性を実験的に示唆した [5]。

- 1) K. Uchida et al., Appl. Phys. Lett. 118, 140504 (2021).
- 2) K. Sumida et al., Commun. Mater. 1, 89 (2020).
- 3) S. Jamaluddin et al., Phys. Rev. B 106, 184424 (2022).
- 4) R. Toyama et al., Phys. Rev. Mater. 7, 084401 (2023).
- 5) R. Toyama, W. Zhou, and Y. Sakuraba, Phys. Rev. B 109, 054415 (2024).

スキルミオン強磁性体 Fe2-xPdxMo3N 薄膜におけるネルンスト効果

山本 完地¹、強 博文¹、浅野 秀文²、宮町 俊生¹、水口 将輝¹ (¹名古屋大学、²名古屋産業科学研究所)

Nernst effect in ferromagnetic Fe_{2-x}Pd_xMo₃N thin films with skyrmions

K. Yamamoto¹, B.W. Qiang¹, H. Asano², T. Miyamachi¹, M. Mizuguchi¹ (¹Nagoya Univ, ²Nagoya Industrial Science Institute)

【はじめに】

スキルミオンは、ナノスケールの渦状の磁気構造であり、次世代の高密度不揮発性メモリ やロジックデバイスへの応用が期待されている^[1]。そのため、室温で安定的に駆動可能なス キルミオンの生成が必要不可欠となる。ネルンスト効果は、スピン軌道相互作用に起因する 電気伝導と熱伝導のクロスオーバー現象であり、スキルミオンの生成・制御に深く関与して いると考えられる。しかしながら、およそ 30 nV/K²のネルンストシグナルが観測されてい る Gd₂PdSi₃においても、そのキュリー温度は室温には及ばない^[2]。本研究では、室温でスキ ルミオンが形成されることが確認されている Fe_{2-x}Pd_xMo₃N (FPMN) 薄膜におけるネルンス ト効果を調べた^[3]。

【実験方法】

マグネトロンスパッタにより FPMN 薄膜材料をサファイア(001)基板上に作製した。6.4 Pa の窒素雰囲気下、基板温度 580 °Cで成膜を行い、スパッタ時間 90 min で約 50 nm の薄膜試 料を作製した。EDX により試料の組成分析を行った。また、PPMS により室温で 1.5 K 程度 の温度差を付与してネルンスト効果の測定を行った。

【結果】

EDX による組成分析の結果、Pd の組成 (x) が x=0.1、0.3、0.7 の三つの組成の試料が作 製されたことが分かった。試料のネルンスト効果の測定を行った結果、Pd の組成に依存し てネルンスト効果の大きさが変化し、x = 0.3 の試料においておよそ 30 nV/K²の大きさのネ ルンストシグナルが観測され、本試料は従来の強磁性体と比較して最大レベルの大きさの ネルンスト効果を室温で発現することがわかった。また、スキルミオンを生成しない Pd 組 成 (x = 0.1) では、異常ネルンスト効果のみが観測され、トポロジカルネルンスト効果が発 現しないことも分かった。講演では、理論的考察と実験的検証を交えながら、スキルミオン 磁性体におけるネルンスト効果の重要性について議論する。

- [1] 望月維人,日本磁気学会報「まぐね」,10,192 (2015).
- [2] M. Hirschberger et. al., Phys. Rev. Lett., 125, 076602 (2020).
- [3] B. W. Qiang et. al., Appl. Phys. Lett., 117, 142401 (2020).

CoPt 組成傾斜薄膜における L1₀規則化 CoPt の大きな異常ネルンスト伝導度

遠山 諒¹, 増田 啓介¹, Kodchakorn Simalaotao^{1,2}, 周 偉男¹, Varun K. Kushwaha¹, Nattamon Suwannaharn¹, 佐々木 泰祐¹, 桜庭 裕弥^{1,2} (¹物質・材料研究機構,²筑波大学)

Large anomalous Nernst conductivity of *L*1₀-ordered CoPt in CoPt composition-spread thin films R. Toyama¹, K. Masuda¹, K. Simalaotao^{1,2}, W. Zhou¹, V. K. Kushwaha¹, N. Suwannaharn¹, T. T. Sasaki¹, and Y. Sakuraba^{1,2} (¹National Institute for Materials Science, ²Univ. of Tsukuba)

<u>はじめに</u>

異常ネルンスト効果 (ANE) は、磁性体において温度勾配 (∇T) と磁化の単位ベクトルの外積方向に電界が 発生する現象である [1]。ANE は、∇T に対して電界が横方向に発生する横型熱電変換であるため、デバイス 構造を単純化できることから、次世代の熱電デバイスや熱流センサへの応用が期待されている [2]。異常ネル ンスト係数 (SANE) は、二つの異なる起源の和で表される。一つは、異常ネルンスト伝導度 (axy) を介して∇T を横方向電流に直接変換するものであり、もう一つは異常ホール効果 (AHE) によるゼーベック効果誘起電 流の変換である [1]。特に、前者は axy が関わる内因性の起源であり、大きな axy を示す材料が探索されてい る。大きな axy を示す強磁性材料の候補として、Fe-Ga [3] や Co₂MnGa [4] 合金などが報告されている。しか し、これらは結晶磁気異方性 (Ku) の小さなソフトな材料であり、保磁力 (Hc) も小さいことから、デバイス への実応用にはあまり適していない。FePt や FePd などの L10規則合金は、高い Ku と大きな Hc を持ちつつ、 大きな axy を示すことから、有力な候補として考えられている [5,6]。CoPt も L10規則相を示すため、FePt 等と同様に大きな axy が期待されるが、L10-CoPt の ANE に関する実験はこれまでなされていない。そこで本 研究では、CoPt 組成傾斜薄膜を作製し、広い Pt 組成領域における L10-CoPt の axy を系統的に評価することを 目的とする。

実験方法

コンビナトリアルスパッタ装置を用いて、Co_{100-x}Pt_x組成傾斜薄膜を基板温度 500 ℃ で MgO(100)基板上に 成膜した。また、参照膜として、Co₄₈Pt₅₂均一膜を室温成膜し、600 ℃ でポストアニールした試料も作製した。 作製した薄膜の結晶構造と微細組織を X 線回折 (XRD) と透過型電子顕微鏡 (TEM) により評価した。フォ トリソグラフィと Ar イオンミリングにより、作製した薄膜をホールバー素子に加工した。PPMS 等を用いて、 加工したデバイスの ANE、AHE、縦抵抗率、ゼーベック効果を測定した。また、第一原理計算により、エネ ルギー依存 *a*_{xy} と、*L*10-CoPt の状態密度の Pt 組成依存性を得た。

実験結果

XRD 測定結果より、組成傾斜膜の Pt 濃度が増加するにしたがって、結晶構造が fcc Co, *A*1 不規則相 CoPt, *L*1₀-CoPt, *A*1-CoPt, fcc Pt へと変化することが確認された。*L*1₀規則化した領域のうち、Pt-rich 組成の Co₃₀Pt₇₀ において、 a_{xy} は 2.52 A m⁻¹ K⁻¹の最大値を示した。この値は、*L*1₀-Co₄₈Pt₅₂参照膜の 1.72 A m⁻¹ K⁻¹よりも大き かった。また、これらの値は、過去に報告されている *L*1₀-FePt (0.783 A m⁻¹ K⁻¹) と *L*1₀-FePd (0.321 A m⁻¹ K⁻¹) の a_{xy} の値よりも大きかった [6]。以上の測定結果より、CoPt 組成傾斜膜において、*L*1₀-CoPt の大きな a_{xy} を実験 的に観測した [7]。当日は、第一原理計算により得られたエネルギー依存 a_{xy} と、*L*1₀-CoPt の状態密度の Pt 組成依存性をもとに、Pt-rich 領域で a_{xy} の最大値が得られた理由について、その可能性を議論する。

- 1) K. Uchida et al., Appl. Phys. Lett. 118, 140504 (2021).
- 2) W. Zhou and Y. Sakuraba, Appl. Phys. Express 13, 043001 (2020).
- 3) H. Nakayama et al., Phys. Rev. Mater. 3, 114412 (2019).
- 4) K. Sumida et al., Commun. Mater. 1, 89 (2020).
- 5) K. Hasegawa et al., Appl. Phys. Lett. 106, 252405 (2015).
- 6) Z. Shi et al., Phys. Rev. Appl. 13, 054044 (2020).
- 7) R. Toyama, K. Masuda, K. Simalaotao, W. Zhou, V. K. Kushwaha, N. Suwannaharn, T. T. Sasaki, and Y. Sakuraba, *accepted in J. Phys. D: Appl. Phys.*

重金属元素置換 FeaN 薄膜における異常ネルンスト効果

伊藤啓太¹、関剛斎^{1,2} (東北大金研¹、東北大先端スピン研²) Anomalous Nernst effect in Fe₄N films substituted by heavy metal elements Keita Ito¹, Takeshi Seki^{1,2} (IMR, Tohoku Univ.¹, CSIS, Tohoku Univ.²)

【背景】

新たなエネルギーハーベスト技術として、強磁性体における異常ネルンスト効果(ANE)を利用した横型熱 電変換が注目されている。しかし、半導体におけるゼーベック効果(SE)を利用した熱電変換素子にエネルギ ー変換効率が大幅に及ばない点が課題となっており、大きな異常ネルンスト係数(SANE)を示す新たな強磁性材 料の開発が求められている。Fe4N は資源が豊富な元素から構成されるユビキタス強磁性材料であり、比較的 大きな SANE (1.4~2.2 µV/K)を示す^{1.2)}。加えて、Fe4N の Fe 原子を他の金属で置換することで、電子構造や磁 気特性を大幅に変調することが可能であり³⁾、元素の組み合わせによっては SANE が増大する可能性について 第一原理計算から予測されている^{4.5)}。本研究では、大きなスピン軌道相互作用を有する重金属元素によって Fe 原子を置換する効果を調べるために、過去に合成された報告例がある Fe4xRuxN[®]および Fe4yPtyN⁷⁾の薄膜を 作製し、SANE を評価した。

【実験方法】

分子線エピタキシー法により MgO(001)基板上に膜厚が 21 nm 程度の Fe₄N、Fe_{4-x}Ru_xN (x = 0.02, 0.10)、 Fe_{4-y}Pt_yN (y = 0.04, 0.13)薄膜を 450 °C で作製した。電子線蒸着銃により Fe、Ru、Pt、高周波ラジカル源により N を同時供給することで窒化物薄膜を成膜した。試料の構造は X 線回折(XRD)法により評価した。作製した 薄膜をホールバー素子に加工し、300 K において ANE、SE、異常ホール効果を測定した。熱電効果の測定で は熱勾配(∇T)を窒化物膜面内の[100]方向に印加し、外部磁場を膜面垂直方向に印加した。 ∇T の測定には、素 子上に形成した Pt オンチップ温度計を使用した²。

【結果】

XRD 測定の結果から、すべての試料について MgO(001)基板上へのエピタキシャル成長を確認した。 S_{ANE} の値は Fe₄N、Fe_{3.98}Ru_{0.02}N、Fe_{3.90}Ru_{0.10}N、Fe_{3.96}Pt_{0.04}N、および Fe_{3.87}Pt_{0.13}N 薄膜で、それぞれ 1.33、1.28、1.09、1.36、および 1.54 μ V/K となった。 S_{ANE} は Ru 置換により減少した一方で、Pt 置換量の増大に伴いわずかに増加したことから、Pt 置換が Fe₄N の S_{ANE} の増大に有効であることが示唆された。 S_{ANE} は ρ_{xx} を縦抵抗率、 a_{xy} を横熱電係数、 S_{SE} をゼーベック係数、 θ_{AHE} を異常ホール角とすると、 $S_{ANE} = \rho_{xx}a_{xy} - S_{SE}$ tan θ_{AHE} で表される。 実験で得られた S_{ANE} 、 ρ_{xx} 、 S_{SE} 、tan θ_{AHE} の値を用いて、 a_{xy} を見積もった。 a_{xy} の値は Fe₄N、Fe_{3.98}Ru_{0.02}N、Fe_{3.90}Ru_{0.10}N、Fe_{3.96}Pt_{0.04}N、および Fe_{3.87}Pt_{0.13}N 薄膜で、それぞれ 1.02、0.99、1.02、1.12、および 1.31 A/K·m となった。この結果より、Fe_{4-y}Pt_yN 薄膜における S_{ANE} の増大は主に a_{xy} の増大に起因することが明らかになった。講演ではFe_{4-z}Pd_zN 薄膜における S_{ANE} についても述べる。

参考文献

1) S. Isogami *et al.*, Appl. Phys. Express **10**, 073005 (2017). 2) K. Ito *et al.*, J. Appl. Phys. **132**, 133904 (2022). 3) K. Ito *et al.*, Nanotechnology **33**, 062001 (2022). 4) Y. Tsubowa *et al.*, JSAP Spring Meeting 23a-E205-5 (2022). 5) H. K. Singh *et al.*, Phys. Rev. Materials **6**, 045402 (2022). 5) D. Andriamandroso *et al.*, IEEE Trans. Magn. **29**, 2 (1993). 6) W. George *et al.*, J. Metals **7**, 360 (1955).

<u>謝辞</u>

本研究は JSPS 科研費(JP21K04859)、東北大学金属材料研究所先端エネルギー材料理工共創研究センター、 東北大学電気通信研究所共同プロジェクトの支援を受けた。

Co ポーラス薄膜における異常ネルンスト効果の変調

辻本卓哉, 宮町俊生, 水口将輝

(名古屋大学)

Anomalous Nernst effect in Co porous thin films

Tsujimoto Takuya, Toshio Miyamachi, Masaki Mizuguchi

(Nagoya Univ.)

はじめに新規熱電変換デバイスへの応用として異常ネルンスト効果 (anomalous Nernst effect: ANE) に注目が集まっている^[1]。一般的に ANE は温度勾配と磁化の外積方向に電圧が生じるた め、従来のゼーベック効果よりも自由度の高いデバイス設計が可能となる。一方で、ANE はそ の変換効率の低さが問題となっており、一般的な強磁性体である Fe や Co でのネルンスト係数 (*Sxy*) は 0.3 µ V/K 程度である。熱電変換などのデバイス化に向けてはおよそ 20 µ V/K 以上の変 換効率が必要とされており、近年では *Sxy* の大きな材料の探索や、ナノ構造の導入による低次 元化や熱伝導率の低下を実現し、ANE の実用化を目指す研究が盛んに行われている。我々はこ れまでに Co に MgO をドープしたグラニュラー薄膜^[2]や Co に Ge をドープしたコラムナー薄膜 ¹³において、ANE の増大を報告した。そこで本研究では、新たにポーラス構造に注目し、ポー ラス構造における ANE の変調を明らかにした。

<u>実験方法</u>気相脱合金法を用いてポーラス薄膜を作製した。 MgO(001)基板上にマグネトロンスパッタにより組成の異なる Co₁₋ _xZn_x薄膜を作製し、得られた薄膜を赤外線真空炉により適切な条件で瞬間加熱することにより薄膜中の Zn を選択的に脱合金化させ、Co ポーラス薄膜を得た。その後、走査型電子顕微鏡により ポーラス構造を観察し、物理特性測定システム (PPMS) を用いて ANE を含む磁気輸送特性を測定した。

実験結果 ポーラス化による構造変化の傾向として、加熱温度や加熱時間の増加に伴いポーラス孔が大きくなることが分かった。 650°C、10秒間加熱して作製した試料のポーラス孔は、図1に示すように約50 nm であったが、650°C、2分間加熱して作製した試料では 80 nm 以上となった。これらの試料について ANE の測定を行ったところ、ポーラス化により ANE は増大し、その変換効率は0.7 μ V/K 程度まで増大した(図2)。特にポーラス孔が小さい系で大きな ANE が生じた。今後、さらにポーラス孔の小さい試料を設計することでより大きな ANE の増大が期待できる。



Fig.1. SEM image of Co porous thin film.



Fig.2. ANE of Co porous thin films with different annealing conditions.

- [1] H. Sharma, M. Mizuguchi et al., Sci. Rep., 13, 4425 (2023).
- [2] P. Sheng, M. Mizuguchi et al., Appl. Phys. Lett., 116, 142403 (2020).
- [3] T. Tsujimoto, M. Mizuguchi, 11th International Symposium on Metallic Multilayers, (2023).

Fe を添加した SnSe 薄膜における異常ネルンスト効果

和田和己1、藤田武志2、宮町俊生1、水口将輝1 (¹名古屋大、²高知工科大)

Anomalous Nernst effect of Fe-doped SnSe thin films Kazuki Wada¹, Takeshi Fujita², Toshio Miyamachi¹, Masaki Mizuguchi¹ (¹Nagoya Univ., ²Kochi Univ. Tech.)

はじめに

異常ネルンスト効果 (ANE) は熱磁気効果の一つであり、起電力発生方向が熱流方向に垂直であるという 特徴をもつ。そのため、素子設計を工夫することにより、高性能な熱電発電素子への応用が期待されている 11。しかしながら、実用的な応用に結実した研究例はほとんど報告されていないため、新たなネルンスト材料 の開発が求められている。そこで本研究では、半導体である SnSe に磁性元素である Fe を添加した薄膜を 作製し、その ANE を調べた。SnSe の大きなゼーベック効果による電荷流が Fe によるスピン軌道相互作用や 不純物散乱などによって横方向に散乱されることにより、大きな ANE 電圧が生じることをねらいとした。

実験方法

スパッタリング法により、酸化被膜付き Si 基板上に Fe 元素を添加した SnSe 薄膜を成膜した。 Fe は DC マグネトロン方式で、 SnSe は RF マグネトロン方式で共スパッタを行い、成膜後にアニール処理を 施した。また、それぞれのカソード電力を調整することにより、Feの含有比率が 0~31.2at.% と異なる SnSe 薄膜を作製した。 X 線回折 (XRD) により各試料の結晶構造を、振動試料型磁力計 (VSM) により磁 気特性を測定した。物理特性測定システム (PPMS) により各試料のホール効果、ゼーベック効果、ネルン スト効果の測定を室温で行った。

実験結果

150℃ で1時間アニール処理を施した試料において ネルンスト効果の測定を行ったところ、Fe の含有比率 が 19~23.5% の条件で作製した試料において ANE の増大が見られた。そこで、Fe の含有比率 23.5% の 試料の断面のTEM - EDX マッピングを行ったところ、 Fe が薄膜内で層状に局在していることがわかった。続 いて Fe の含有比率が 23.5% の条件で異なるアニール 時間の試料を作製した。XRD 測定の結果を図1に示す。 アニール処理時間に依存して SnSe ピークの明確なシ フトが見られた。これらの結果より、SnSe 結晶に侵入 していた Fe 原子がアニール処理によって拡散移動し、 層状構造を形成したことが示唆された。また、作製した 薄膜の電子状態がアニール条件によって大きく異な り、ANE にも強く影響を与えることが考えられる。講



Fig.1 XRD patterns of Fe_{23.5}(SnSe)_{74.5} films with: (a) non-annealing, (b) 150°C, 1 hour annealing and (c) 150° C, 5 hour annealing.

演では、アニール条件と ANE の関係についても詳しく議論する。

参考文献

1) M. Mizuguchi and S. Nakatsuji, Sci. Technol. Adv. Mater., 20, 262 (2019).

電圧駆動 MRAM の反転電圧における形状磁気異方性の効果に関する シミュレーション研究

宮崎柊弥^{1,2}, 荒井礼子², 今村裕志^{2,1}, 安川雪子¹ (¹千葉工業大学, ²産業技術総合研究所)

Simulation study on the effect of shape anisotropy on switching voltage of voltage-controlled MRAM Shuya Miyazaki^{1,2}, Hiroko Arai², Hiroshi Imamura², Yukiko Yasukawa¹

(¹Chiba Institute of Technology, ²AIST)

<u>はじめに</u>

現在製品開発されている MRAM (Magnetoresistive Random Access Memory) は電流制御によって情報の書き 込みが行われるため、既存の揮発性メモリと比較して書き込み電力が大きいという問題を抱えている。この 問題を克服するために、電圧制御で書き込みを行う電圧駆動 MRAM (Voltage-controlled MRAM) が研究され ている。VC-MRAM ではパルス電圧印加によって記憶層の磁気異方性を小さくすることで磁化を反転させ情 報の書き込みを行う。従来の研究では反転電圧に対する形状磁気異方性の効果はあまり考慮されていなかっ たが、素子サイズを小さくすると記憶層のアスペクト比が小さくなり形状磁気異方性の効果が重要になると 考えられる。本研究ではマイクロマグネティクスシミュレーションを用いて素子の直径と反転電圧との関係 を調べたのでその結果について報告する。

<u>研究方法と結果</u>

マイクロマグネティクスシミュレーションは mumax3 [1] を用いて行なった。記憶層は円板形状とし、厚 さは 2 nm, 直径は 20 nm ~ 80 nm とした (Fig. 1)。飽和磁化 $M_s \varepsilon$ 1 MA/m, ダンピング定数 $\alpha \varepsilon$ 0.05, 交換 定数 $A \varepsilon$ 20 pJ/m とし、外部磁場 H_{ext} 0.04 T εx 軸方向に印加する [2]。初期状態をz軸方向とし、異方性定数 K_u が 0.4 MJ/m³ ~ 0.8 MJ/m³である場合の安定磁化状態を求め、 K_u に対する m_z の変化を調べた。結果を Fig. 2 に示す。 m_z が 0 の時は磁化は面内方向を、1 の時は面直方向を向いていることを表している。素子の直径 が小さくなるにつれて、磁化状態が面内方向から面直方向へ変わる K_u が小さくなっていることがわかる。こ れは素子の直径が小さくなるにつれてz軸方向の反磁場が小さくなるためであると考えられる。

次に、初期状態の K_u を2 MJ/m³として磁気構造を緩和させたのち、パルス電圧印加による変化を想定して K_u を0.4~0.7 MJ/m³の範囲で変えて磁化ダイナミクスの計算を行い、磁化反転が起こるか確認した。磁化反転は Fig. 2 中の星で示す K_u (= K_u^{sw})より小さい場合に起こることがわかった。初期状態の K_u から K_u^{sw} を引いた値が磁化反転に必要な異方性定数の変化(ΔK_u)であり、素子の直径に対するプロットを Fig. 3 に示す。素子の直径が小さくなるにつれて ΔK_u が大きくなる。このことから、素子の直径を小さくすると大きな反転電圧が必要になることがわかる。



Fig. 1 Schematic illustration of the free layer of a VC-MRAM.



unit vector for different diameters. Stars indicate K_u^{sw} .





- 1) Arne Vansteenkiste, et al., AIP Advances, <u>4</u>, 107133, (2014).
- 2) R. Matsumoto, S. Yuasa, and H. Imamura, Phys. Rev. Appl. <u>18</u>, 054069 (2022).

極薄 Ir キャップ層導入による電圧磁気異方性制御効率の改善

野﨑隆行, 一ノ瀬智浩, 山本竜也, 薬師寺啓, 湯浅新治 (産総研) Improvement of efficiency in voltage-controlled magnetic anisotropy effect by an introduction of an ultrathin Ir capping layer T. Nozaki, T. Ichinose, T. Yamamoto, K. Yakushiji, and S. Yuasa (AIST)

1 はじめに

強磁性超薄膜における電圧磁気異方性制御(VCMA: Voltage-controlled magnetic anisotropy)は従来の電流駆動 と比較して超省電力なスピン制御を可能とする基盤技術として注目を集めており、電圧駆動型(Voltagecontrolled)-MRAM などへの適用が期待されている。VC-MRAM のスケーラビリティー実証および低電圧書 き込みに向けては、多結晶磁気トンネル接合(MTJ)素子における VCMA 効率の増大が求められている。我々 はこれまでに低温ステージを有する量産スパッタ成膜装置(EXIM: 東京エレクトロン株式会社製)を用いて高 品質な MgO/CoFeB 界面の形成を試み、垂直磁気異方性(PMA)やトンネル磁気抵抗効果(TMR)、VCMA 効率 の改善効果について報告してきた¹⁻³)。本研究では MgO/CoFeB/極薄キャップ層 X/MgO をトップフリー層の 基本構造とする MTJ 素子において、様々な極薄キャップ層材料の導入が PMA、TMR、VCMA 特性に与え る影響を系統的に調べた。

2 実験方法と結果

熱酸化膜付き Φ 300mmSi ウェハー上に Ta(5 nm)/Pt (5 nm)/Ru(3 nm)/Ta₅₀B₅₀ (5 nm)/Co₄₀Fe₄₀B₂₀ (3 nm)/MgO(2.1 nm)/CoFeB(1 nm)/極薄キャップ層 X(0.2 nm)/MgO(1 nm)/Ru(2 nm)/Ta(3 nm)/Ru(10 nm)構造を作製 した。面内磁界印加下での TMR 測定から PMA および VCMA 特性評価を行うため、下部 CoFeB 層は面内磁 化参照層、上部 CoFeB 層は面直磁化フリー層の 90 度磁化配置型 MTJ となっ

ている。各 CoFeB 層は 100K での低温成長で形成した。極薄 キャップ層 X(0.2 nm)として Ir, Mo, TaB, Mg, Cr, Ti, Ta を導入 した。ポストアニールは温度範囲 200~350℃において無磁界 下で行った。

図1に各ポストアニール温度における VCMA 効率の極薄キャップ材料依存性を示す。極薄キャップ層無し

(MgO/CoFeB/MgO, 57 fJ/Vm)と比較してほとんどのキャップ材料は同等もしくは低い VCMA 効率を示すのに対して、Ir キャップ層を用いた場合は明瞭な増大が見られ、300℃アニール条件下にてキャップ層無しの約 1.8 倍の VCMA 効率(105 fJ/Vm)を示した。同条件下において、PMA 値も約 1.7 倍に増大した。ポストアニール温度の上昇とともに増大する傾向から、極薄キャップ層から MgO/CoFeB 界面への低濃度 Ir 拡散が PMA、VCMA 効率増大の起源であると考えられる。





本研究の一部は国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)の委託業務(JPNP16007)、 および JSPS 科研費(JP20H05666)助成の結果得られたものである。

- 1) T. Ichinose et al. ACS Appl. Electron. Mater. 5, 2178 (2023).
- 2) A. Sugihara et al. Appl. Phys. Exp. 16, 023003 (2023).
- 3) T. Nozaki et al. APL Mater. 11, 121106 (2023).

Pt/Cr₂O₃/V₂O₃/Pt 薄膜における反強磁性スピンの高効率変調と双方向反転

村山希1、鮫島寛生1、氏本翔1、豊木研太郎1.2.3、中谷亮一1.2.3、白土優1.2.3

(1大阪大学大学院工学研究科、2大阪大学先導的学際研究機構、3大阪大学 CSRN)

High efficiency modulation and bipolar switching of antiferromagnetic spin in Pt/Cr₂O₃ /V₂O₃/Pt epitaxial films Nozomi Murayama¹, H. Sameshima¹, K. Ujimoto¹, K. Toyoki^{1,2,3}, R. Nakatani^{1,2,3}, and Y. Shiratsuchi^{1,2,3} (1 Grad. Sch. Eng., Osaka univ., 2 OTRI, Osaka univ., 3 CSRN, Osaka univ.)

<u>はじめに</u>反強磁性体は、漏洩磁場がなく磁気共鳴周波数が THz帯にあることから超高密度・超高速通信デバイスへの応用が期待される。しかしながら、自発磁化を示さないため、磁気モーメントの検出・制御が困難である。我々は、反強磁性材料として、電気磁気効果を示す Cr₂O₃を用いて界面反強磁性スピンの検出・制御を進めており、ゲート電圧により界面スピンの反転磁場を変調できることを示してきた[1]。さらに、その変調効率が4T・nm/V以上の極めて大きくなることを報告してきた。また、この高い変調効率には、界面構造が強く影響するものと考えられている。本研究では、下地層として Cr₂O₃ と同じコランダム構造をもつ V₂O₃ を用いて、Pt/Cr₂O₃/V₂O₃/Pt 積層膜における反強磁性スピン反転について調査し、Cr₂O₃ バッファー層の反強磁性スピン反転磁場の変調効率への影響について検討した。

実験方法 Pt(2 nm)/Cr₂O₃(20 nm)/V₂O₃(20 nm)/Pt(20 nm)積層膜を α-Al₂O₃(0001)基板上に製膜した。製膜には、DC マグネトロンス パッタリング法を用いた。反射高速電子回折法 (RHEED)、逆格 子マッピングを用いて、作製した薄膜の成長方位を評価し、い ずれの層もエピタキシャル成長していることを確認した。ホー ル効果測定に際して、幅 5µm・長さ 25µm のホールデバイスを 作製した。微細加工には、フォトリソグラフィ法、Ar イオンミ リング法を用いた。磁場と電場の印加方向は、いずれも、膜面 直方向とした。

実験結果 Fig. 1 に、Pt/Cr₂O₃/V₂O₃/Pt エピタキシャル薄膜のホ ール効果曲線を示す。角型性の良いヒステリシスが観測され、 磁場により界面反強磁性スピンが反転していることが分かる。 また、ゲート電圧によりスピン反転磁場が変調することが分か る。ゼロ電圧付近でのスピン反転磁場の変調効率は 67.38 T・ nm/V となり、強磁性材料の VCMA による変調効率と比較して 約 1000 倍[2]となる。Fig. 2 に、ゲート電圧に対するスピン反転 磁場の変化を示す。強磁性材料では困難な電場による双方向反 転観測され、電気磁気効果による反強磁性スピンの超高効率か つ4象限アクセスを達成した。









[1] K. Ujimoto, Y. Shiratsuchi et al., NPG Asia Mater. 16, 20 (2024). [2] T. Nozaki et al., Sci. Rep. 11, 21448 (2021).

Pt/Cr₂O₃/Irエピタキシャル薄膜における反強磁性スピン反転磁場の

電場変調と電圧誘起双方向反転

鮫島寛生¹,村山希¹,氏本翔¹,豊木研太郎^{1,2,3},中谷亮一^{1,2,3},白土 優^{1,2,3} (1大阪大学大学院工学研究科,2大阪大学先導的学際研究機構,3大阪大学 CSRN)

E-field modulation of AFM spin reversal field and bipolar switching in Pt/Cr₂O₃/Ir epitaxial thin film Hiroki Sameshima¹, Nozomi Murayama¹, Kakeru Ujimoto¹, Kentaro Toyoki^{1,2,3}, Ryoichi Nakatani^{1,2,3}, and Yu Shiratsuchi^{1,2,3}

(1 Grad. Sch. Eng., Osaka Univ. 2 OTRI, Osaka Univ., 3 CSRN, Osaka Univ.)

はじめに 反強磁性体は,漏洩磁場がなく磁気共鳴周波数が THz 領域にあることから 超高密度・超高速駆動デバイスへの応用が期待される.しかしながら,反強磁性体はスピンが内部で補償されているため,スピンの検出と制御において強磁性体とは異なるアプローチが必要とされている.これまでに我々は,電気磁気効果を示す反強磁性体 Cr₂O₃を用いて, Pt/Cr₂O₃/Pt 積層膜における反強磁性スピン反転とスピン反転磁場の 電場変調について報告してきた[1].また,バルクとは異なる界面の電気磁気効果が発現することを示したが,この結果は,非磁性重金属材料の選択による界面構造の最適化により更なる高効率化が可能であることを示唆する.本研究では, Pt/ Cr₂O₃/Ir 3 層膜における電場による反強磁性スピンの反転について報告する.

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, Pt(2 nm)/Cr₂O₃(15 nm)/Ir(20 nm)//α-Al₂O₃(0001)薄膜を製膜 した.構造評価には,反射高速電子線回折法及び X 線回折法を 用いた.磁気特性評価には,ゲート電圧を印加しながら異常ホ ール効果を測定する手法を用いた.測定のために,作製した薄 膜はフォトリソグラフィ法及び Ar イオンミリング法を用いて, 幅 5 μm,長さ 25 μm のホール素子に微細加工した.測定時のゲ ート電圧及び磁場の印加方向は,膜面直方向とした.

実験結果図1に、275Kで測定したホール電圧のゲート電圧 依存性を示す.磁場は±0.5Tで固定し、電圧を0~-0.9Vで掃 引している.角形の明確なヒステリシスが観測され、両ヒステリ シスにおいて、-0.15V及び-0.80V付近で反強磁性スピンが 反転しており、正負の磁場によりヒステリシスの向きが反転し ていることが分かる.図2に、各磁場(電場)を固定して電場 (磁場)を掃引したときの反強磁性スピンが反転する電場(磁 場)のプロットを示す.電場・磁場のどちらを掃引した際も双 方向の反転が観測された.この4象限のプロットは、反強磁性 スピンの電場による変調が電気磁気効果由来であることを示唆 している.

本研究は、科学研究費補助金基盤研究(B)(課題番号 22H01757)および文部科学省「スピントロニクス学術研究基盤と 連携ネットワーク拠点(Spin-RNJ)」の支援を受けて行われました。

[1]. K. Ujimoto, Y. Shiratsuchi et al., NPG Asia Mater. 16, 20 (2024).



W/CoFeB 界面への Gd-CoFeB 合金挿入による ダンピングライクトルクの向上

○(M2)徳永 和彦¹, 黒川 雄一郎¹, 湯浅 裕美¹ (九州大学¹)

Improvement of dumping-like torque by inserting Gd-CoFeB alloy at the W/CoFeB interface OKazuhiko Tokunaga¹, Yuichiro Kurokawa¹, Hiromi Yuasa¹

(Kyushu Univ.¹)

背景

重金属/強磁性体界面で発生するスピンオービットトルク (SOT) は、電流による磁化制御方法として MRAM や磁壁、スキルミオンデバイスなどに応用が可能であり、注目されている。この SOT は、大きなスピン軌道 相互作用 (SOC) に由来するスピンホール効果 (SHE) によって誘起される。さらに近年、SOC の大きさによ らず軌道角運動量が偏極する軌道ホール効果 (OHE) が次世代の磁化制御方法として注目されてきた。しか し、OHE に基づく軌道流は強磁性体に直接トルクを与えることが難しいため、軌道流からスピン流への変換 過程が必要となる¹⁾。本研究では、SOC の大きいと予想される Gd を磁性層 CoFeB と合金化し、重金属と強 磁性体の界面に挿入することによって軌道流をスピン流に変換する。重金属での SHE によるスピン流と、Gd-CoFeB で OHE から変換されたスピン流の足し合わせでトルクの増強を目指し、ダンピングライクトルク の測定を行った。

実験方法

熱酸化 Si 基板上に、W (5 nm)/Gd₅₀(Co₂₀Fe₆₀B₂₀)₅₀ (*t*_{Gd-CFB} nm)/CoFeB (1.0 nm)/MgO (1.5 nm)/Ta (3 nm) (*t*_{Gd-CFB} =0, 0.3, 0.6)の多層膜をスパッタリングにより成膜した。今回、スピン流と軌道流の注入源としてWを使用した。 CoFeB に垂直磁気異方性を持たせるために、試料を 270℃で熱処理した。試料はフォトリソグラフィにより ホールバー状に加工した。ダンピングライクトルクは高調波ホール電圧測定によって求めた。印加した交流 電流と同方向に面内磁場を印加し、基本波および第二高調波を測定した。それらのフィッティング結果から ダンピングライクトルクによって生じる有効磁場を見積もり、実効ダンピングライクトルク係数 (ξ_{DL})を計算 した⁻²。

実験結果

Fig.1 は高調波ホール電圧測定より求めた ξ_{DL} を示している。結果として、Gd-CoFeB を挿入することによって ξ_{DL} が向上した。挿入層の膜厚の増加に対して ξ_{DL} は線形に増加することが分かった。これは、W から流れ

込むスピン流が Gd-CoFeB 中で減衰する可能 性も考えられるが、それに対して、Wから流 れ込む軌道流が Gd-CoFeB 中の Gd によってス ピン流へと変換される効果が支配的であるこ とを示唆する。その結果、最終的に Gd-CoFeB の挿入と厚膜化により、CoFeB の磁化に働くト ルクが増大したと考えられる。この結果は磁化 制御効率をさらに向上させる道筋を示すもの である。

参考文献

- 1) G. Sala and P. Gambardella Phys. Rev. Research 4, 033037 (2022)
- M. Hayashi, J. Kim, M. Yamanouchi, and H. Ohno Phys. Rev. B 89, 144425 (2014)



Fig.1 Dependence of effective damped-like torque efficiency (ξ_{DL}) on insertion layer thickness

垂直磁化 W/CoFeB/MgO における電流駆動磁壁移動機構の解析

梅津信之,カンサミカエル,橋本進,近藤剛,門昌輝 (キオクシア株式会社 先端技術研究所)

Analysis of current induced domain wall motion in perpendicularly magnetized W/CoFeB/MgO systems

N. Umetsu, M. A. Quinsat, S. Hashimoto, T. Kondo, M. Kado

(Frontier Technology Research and Development Institute, Kioxia Corporation)

<u>はじめに</u>

Racetrack memory¹) に代表される電流駆動磁壁移動現象を利用するデバイスの実現には、磁壁移動層 の磁気特性の調整による磁壁ダイナミクスの制御が要求される.垂直磁気異方性を有する W/CoFeB/MgO は spin orbit torque (SOT) 駆動の磁壁移動が生じる代表的な積層膜であるが、磁壁移動挙動の磁気特性依 存性は十分に調査されていない.我々はこの積層膜において、先行研究と一致する電流方向の磁壁移動 だけでなく²,電子流方向の磁壁移動も観測した.後者はSpin Hall angle とDzyaloshinskii-Moriya interaction

(DMI)の符号組合せ³⁾から予想される結果と矛盾しており,機構解明のためには実際の磁壁移動層の 磁気特性を反映したモデル構築が望まれる.本研究では,電流駆動磁壁移動に関与する磁気特性を系統 的に評価した結果,およびこれに基づいて磁壁移動特性をモデル計算した結果について報告する.

<u>解析方法</u>

飽和磁化,垂直磁気異方性は vibrating sample magnetometry 測定, DMI 磁場とデピニング磁場は磁区バ ブル拡大実験^{4,5)}, SOT 効率は harmonic Hall 電圧測定⁶⁾ により評価した.磁壁移動方向と磁壁移動しき い値電流密度は, 2um 幅の磁性細線に 20ns のパルスを印加する電流駆動磁壁移動実験において,磁壁位 置変化を磁気光学顕微鏡により測定することで取得した.磁壁移動特性の計算は磁壁ダイナミクスを磁 壁位置と磁壁磁化角度の2変数の時間発展で記述する1次元モデル^{7,8)}を用いて実施した.数値計算に は磁気特性の評価結果を反映したパラメータを用いた.ただし,直接的な測定手法が確立していない外 因性ピニング磁場にはデピニング磁場を代用した.

<u>結果</u>

Fig.1 に 5 つのサンプルの磁壁移動しきい値電流密度 の実験結果と計算結果の比較を示す(符号は磁壁移動方 向を表す).成膜アニール温度 300 (400) ℃のサンプル において磁壁移動方向が電子流(電流)方向となる実験 結果をモデル計算によって再現することに成功した.モ デル解析により磁壁速度と磁壁移動しきい値電流密度 の磁気特性依存性を定式化し,SOT,DMIの他にSTT や外因性ピンニングも磁壁移動方向の決定因子である ことを見出した.

参考文献

- 1) S. S. P. Parkin et al., Science **320**, 190 (2008).
- 2) J. Torrejon et al., Nat. Commun. 5, 4655 (2014).
- 3) M. Kim et al., J. Magn. Magn. Mater. 563, 169857 (2022).
- 4) R. Soucaille et al., Phys. Rev. B 94, 104431 (2016).
- 5) V. Jeudy et al., Phys. Rev. B 98, 054406 (2018).
- 6) M. Hayashi et al., Phys. Rev. B 89, 144425 (2014).
- 7) G. Tatara et al., Phys. Rep. 468, 213 (2008).
- 8) E. Martinez et al., J. Appl. Phys. 116, 023909 (2014).

Fig.1 Comparison of experiments and simulations on the threshold current density of domain wall motion (PHE: planar Hall effect, AHE: anomalous Hall effect)

探査機による惑星と宇宙空間の磁場観測

松岡彩子¹, 篠原 学², 田中良昌³, 藤本晶子⁴, 寺本万里子⁴, 野村麗子⁵, 村田直史⁵ (1 京大, 2 鹿児島高専, 3 極地研, 4 九工大, 5 JAXA)

Measurement of the magnetic fields at the planets and in the space by the spacecraft A. Matsuoka¹, M. Shinohara², Y. Tanaka³, A. Fujimoto⁴, M. Teramoto⁴, R. Nomura⁵, N. Murata⁵ (¹Kyoto Univ., ²Kagoshima Nat. Inst. Tech., ³NIPR, ⁴Kyushu Inst. Tech., ⁵JAXA)

<u>はじめに</u>

太陽からは常にプロトンと電子を主成分とする電離気体(プラズマ)である太陽風が放出され、太陽系内の 空間を満たしている。太陽風は惑星に吹き付け、相互作用を起こすことによって惑星の環境にも大きな影響 を与えている。宇宙空間に存在する最も普遍的な物質であるプラズマに起こる様々な現象は、その場に探査 機を送り込んで直接観測することによって研究されてきた。物理過程の解明には、プラズマそのものだけで なく、プラズマの挙動を決める磁場や電場を観測することが必須である。中でもフラックスゲート方式の磁

カ計を用いた直流から低周波の磁場の観測は、宇宙探査の黎明期である 1950 年代末に始まり¹⁾ 今日まで盛んに行われている。この間、フ ラックスゲート磁力計には様々な改良が重ねられ、現在も多くの探査 機に搭載されている。

<u>水星探査機 BepiColombo 「みお」とジオスペース探査衛星「あ らせ」</u>

宇宙における磁場、そしてプラズマの観測は、近年、より難易度の高 い領域へ踏み出しつつある。太陽に最も近い惑星である水星や、地球 の放射線帯は、放射線環境が極めて厳しく観測器や探査機を劣化させ るため、長い間探査が進まなかった。更に水星は、太陽からの輻射熱 が地球の場合の10倍の環境にあり、探査機は極端な高温および低温 環境にさらされる。このような高い放射線や極端な温度の環境の宇宙 領域を探査するために、我々は耐放射線性を高めた宇宙機搭載用の磁 力計を開発し、極端な温度環境における性能試験を行った²⁾。開発・ 試験した磁力計を、日欧共同の水星探査計画である BepiColombo「み お」衛星 (Fig. 1)と、地球の放射線帯の生成と消滅過程の解明を目指 したジオスペース探査衛星「あらせ」 (Fig. 2)に搭載した^{3),4)}。「あ らせ」衛星の磁力計は打ち上げ後7年以上経過した現在も順調に観測 を続け、多くの目覚ましい成果をあげている。「みお」衛星は 2018 年の打ち上げ以降、2025年12月に水星周回軌道に入るまで惑星間空 間を巡行中である。これまで水星とのフライバイを既に3回行い

(2024年6月時点)、内部太陽圏の高温・高放射線環境にさらされているが、磁力計は順調に動作している。本講演では、このように宇宙の特に厳しい環境における磁場観測を可能にした磁力計の開発と成果を紹介する。

<u>火星衛星探査計画 MMX と長周期彗星探査計画 Comet</u> Interceptor

磁場観測に限らず、宇宙機で挑戦的なミッションを実施する時、厳し い質量や電力の制約に直面する。我々は、従来の二次高調波による平

Fig. 1 水星探査計画 BepiColombo 「みお」衛星と搭 載磁力計センサ (衛星の図は JAXA 提供)

Fig. 2 ジオスペース探査衛星「あ らせ」 (提供:JAXA)

Fig. 3「あらせ」衛星に搭載した磁 力計⁴⁾。左:回路部、右:センサ部

行フラックスゲート方式よりも軽量・省電力を可能とする、宇宙機 搭載用の基本波型直交フラックスゲート磁力計 (FM-OFG) を開発 し、将来ミッションに搭載する計画を進めている。FM-OFG は、 極細のアモルファスワイヤをコアとして用いることにより、超軽量 のセンサを実現している。2026年に打ち上げて火星の衛星フォボ スの探査を行う Martian Moons Exploration (MMX)と、2029 年頃に 打ち上げて長周期彗星の探査を行う Comet Interceptor (CI) に FM-OFGを搭載する準備を行っている 5,6。MMX は火星衛星の成 因を解き明かすことを目的としたミッションであり、CI は太陽に よる変性を受けていない長周期衛星を調査し初期の太陽系につい ての情報を得ることを目指したミッションである。我々は磁場を測 定することによって、これらのミッションの達成に貢献する。本講

Fig. 4 FM-OFG センサ試験モデル 5)

演では、FM-OFGの特徴とそれにより可能となる将来の宇宙ミッションを紹介する。

- D. Gordon and R. Brown, IEEE Transactions on Magnetics, MAG-8, 1 (1972) 76. 1)
- 2) A. Matsuoka et al., An Introduction to Space Instrumentation, (2013) 217.
- 3) W. Baumjohann et al., Planetary and Space Science, 58 (2010) 279.
- A. Matsuoka et al., Earth, Planets and Space, (2018) 70:43. 4)
- S. Yokota et al., Earth, Planets and Space, 73 (2021) 216. 5)
- 6) G. Jones et al., Space Science Reviews (2024) 220:9.
磁気インピーダンスセンサーによる地磁気微小変動観測

能勢正仁 (名古屋市立大学データサイエンス学部)

Geomagnetic Field Measurements with Magneto-Impedance (MI) Sensor Masahito Nosé (Department of Data Science, Nagoya City University)

基礎実験

磁気インピーダンス(Magneto-Impedance, MI)効果は約30年前に発見され、この効果を利用したマイクロサ イズの磁気センサーが市販されている。こうした磁気センサーは、電子コンパス、食品工場での金属製異物 検知や駐車場での車体検知などに用いられており、自然の微小な磁場変動を計測する用途にはほとんど使わ れてこなかった。そこで、市販のMIセンサーにいくつかの改良を加え、地磁気のダイナミックレンジ (±50,000 nT)をカバーし、数秒~1日の時間スケールで1 nT~数10 nT程度の振幅を持つ微小地磁気変動を計測で きるセンサーを作製した。地磁気はベクトル量なので、その変動を表すには3つのMIセンサーが必要である が、それらの総コストは、改良費用を含めても3軸フラックスゲート磁力計(Fluxgate Magnetometer, FGM)セ ンサー標準価格の約1/3である。

2018年3月30日から4月27日の約1か月間、京都の北西約100 kmに位置する峰山観測所において、MIセンサ ー磁力計(MI Magnetometer, MIM)による地磁気変動のテスト観測を行った。MIMで得られたデータを、同観 測所のFGMで得られたデータと比較したところ、磁気嵐、太陽静穏時(Solar quiet, Sq)変動、低緯度湾型変 化、磁気嵐突発現象(SSC)、長周期地磁気脈動といった様々な自然現象について、MIMはFGMと同様に、微 小な変動をきちんと計測できることが明らかになった(Figure 1)。計測した地磁気変動のパワースペクトルに ついて両者を比較すると、0.1 mHz~30 mHzの広い周波数範囲でほぼ同じであった。これは、数十秒から数時 間の地磁気変動の測定において、MIMは安価であるのにも関わらず、その性能はFGMの性能に匹敵し、超 高層物理学や太陽地球物理学の研究に利用できることを示している。一方で、気温に対する安定性を調べた ところ、MIMの温度係数は10-18 nT/degとなり、FGMよりもかなり大きな温度ドリフトを持つため、温度計 測データによる補正が必要であることが分かった。

廉価な磁場観測システムの製作と関東-東北-北海道への稠密観測ネットワークの構築

上記の基礎実験では、A/Dコンバーター(ADC)やデータロガーなどは計測メーカー品を用いていたが、それらを一般電子部品やRaspberry Pi4を用いて自作し、データ収録プログラムもPythonで開発することで、廉価な自然磁場観測システムを製作することにした。センサー、ADC、ロガー、ケーブルなどを含めて一式約40万円に抑えることができ、これをMIM-Pi(MI Magnetometer using Raspberry Pi)と名付けている。これまでに、MIM-Piを4台製作し、2022年9月から川渡(宮城県大崎市)、2022年11月から白神(青森県西目屋村)、2023年6月からむつ(青森県むつ市)、2023年11月から苫小牧(北海道苫小牧市)にて観測を継続している。観測データは1日1度の頻度でクラウドサーバー上にアップロードされている。

これらの4観測所のMIM-Piによる地磁気変動データに加え、関東-東北-北海道地域に分散する9観測所では 気象庁、国土地理院、名古屋大学がフラックスゲート磁力計による地磁気変動データを取得しており、最大 13観測所からの地磁気同時観測データが利用可能になっている(Figure 2)。緯度方向に展開した観測ネットワ ークとしては、世界でも類を見ないほど稠密なものであり、これらのデータを使って地磁気脈動の性質を調 べれば、宇宙空間プラズマの質量密度の微細構造を可視化できると期待している。

科学観測ロケットへの搭載と電離圏での磁場変動観測

MIセンサーの飛翔体上での機能実証を目的の一つとして、2022年3月5日に米国アラスカ州のPoker Flat Research Range上空で、世界で初めて科学観測ロケットに搭載したMIセンサーによる地磁気の観測を行っ

た。こロケットは、明滅するオーロラとそれを発光させる電子を計測することを目的としたLAMP (Loss through Auroral Microburst Pulsations)ロケットと呼ばれるもので、高度約430 kmの電離圏に到達するような放物線軌道で飛翔した。約10分間の飛翔中、搭載したMIセンサーは継続して地磁気データを取得できた。

データを解析したところ、明滅オーロラの輝度上昇時には15-25 nT程度の磁場変動が現れていた(Figure 3)。モデル計算との比較から、明滅オーロラの小区画(パッチ)に伴う沿磁力線電流の構造、すなわち小区画の端に電流が流れており、その向きは高緯度側で下向き、低緯度側で上向きであることが明らかになった。





- 1) <u>Nosé, M.</u>, T. Kawano, and H. Aoyama, Application of magneto-impedance (MI) sensor to geomagnetic field measurements, *Journal of Geophysical Research*, *127*, 2022. doi:10.1029/2022JA030809
- 2) <u>Nosé, M.</u>, K. Hosokawa, R. Nomura, M. Teramoto, K. Asamura, Y. Miyoshi, T. Mitani, T. Sakanoi, T. Namekawa, T. Kawano, Y. Iwanaga, S. Tatematsu, M. Hirahara, A. Halford, M. Shumko, M. R. Lessard, K. Lynch, N. Paschalidis, A. N. Jaynes, and M. G. McHarg, Field-aligned currents associated with pulsating auroral patches: Observation with Magneto-Impedance Magnetometer (MIM) onboard Loss through Auroral Microburst Pulsations (LAMP) sounding rocket, *Journal of Geophysical Research*, *129*, 2024. doi:10.1029/2023JA032232

地球惑星科学における磁気センシング技術

空中・海上・海中探査と微小領域分析の現状と将来可能性

小田啓邦 (産総研 地質調査総合センター)

Magnetic sensing technologies in Earth Sciences: Current status and future prospects on explorations in air, on sea-surface and under-water, and microanalyses of geological samples

H. Oda

(Geological Survey of Japan, AIST)

本講演では、地球惑星科学における磁気センシング技術、その現状と将来可能性について紹介と解説をさ せていただく。最初に、空中・海上・海中における磁気探査(本講演では講演者が専門とする静磁場のみ) を紹介させていただき、次に微小領域における磁気分析について紹介をさせていただく。また、これらに先 だって、考え方の基礎となる知識を解説させていただく。

地球惑星科学において、それぞれの地域に分布する地質体を構成する岩石・鉱物・物質を知るには、地表 面に露出している物質や構造を観察し、試料を採取して必要な分析を行うことが調査の出発点となる。地質 調査総合センターでは、これら情報を空間的・時間的に統合解釈し、地質図幅を作成するとともに、地質発 達史の復元と解説を試みる。現代では、人工衛星や航空機などから電磁波を用いたリモートセンシングによ って、地表面や海面・海中の様々な情報を得ることも可能であり、広範囲にわたる地質体の効率的な情報収 集も可能となってきた。また、地下の情報を得るために様々な物理探査手法が開発されてきたが、特に弾性 波(地震波あるいは音波)探査・磁気探査・重力探査は伝統的かつ主要な手法である。これら手法はある地 域の地質体に同時に用いることによって補完的に地質体の情報を有効に引き出すことが可能となる。

本講演では、特に磁気センシング技術を用いた磁気探査に注目をするが、その上で、現在と過去の地球磁 場および岩石の磁気特性について理解をすることは重要である。地球磁場は地球の中心に置かれた磁気双極 子で近似されるが、地表の各観測点における磁場強度と方位は、刻一刻と変化している(地磁気永年変化)。 この変化しつつある地磁気の標準値と予測値が国際標準地球磁場(IGRF)であり、専門家によって5年に一 度決定される(IGRF-13; Alken et al., 2021¹¹)。各地点で実際に観測される地磁気から国際標準地球磁場を差し 引いた値が磁気異常となる。この磁気異常のうち長波長成分を世界的にとりまとめたものが世界デジタル磁 気異常図(WDMAM v2.1; Choi et al., 2023²²)である。人工衛星のデータなどによって精度が上がってきてい るが、陸域から遠い海域などの精度にはまだ改善の余地がある(小田, 2022³¹)。磁気異常には全磁力異常と三 成分磁気異常が存在するが、周波数計測に基づく光ポンピング磁力計などが高精度であることもあり、地球 惑星科学分野では全磁力異常値を用いる場合が多い。また、岩石の磁気異常成分には常に地磁気方向を向く 誘導磁化とそうでない残留磁化がある。残留磁化には正帯磁と逆帯磁(現在の地磁気と逆方向)があるため、 これらの解釈も重要となる。空中・海面・海中での磁気探査では、電磁ノイズのみならず、移動体が静磁場 を発生するため、これらの低減や補正も重要となる。さらに本講演では、講演者達が開発した走査型 SQUID 磁気顕微鏡(Oda et al., 2016⁴¹)の紹介と、海底鉄マンガンクラスト試料などへの応用研究事例を紹介する。

参考文献

1)Alken, P., et al. (2021) International Geomagnetic Reference Field: 13th generation. *Earth Planets Space*, **73**, 49. 2)Choi, Y., et al. (2023) World Digital Magnetic Anomaly Map version 2.1, map available at https://www.wdmam.org/. 3)小田啓邦 (2022) 世界磁気異常図と日本の貢献, *GSJ 地質ニュース*, **11**, 31-41.

4)Oda, H., et al. (2016), Scanning SQUID microscope system for geological samples: system integration and initial evaluation, *Earth Planets Space*, 68, **179**.

海洋における磁気センサの利用と今後の期待

西村直喜 (株)島津製作所 産業機械事業部 ジオサイエンス部 Use of magnetic sensors in the ocean and future prospects N.Nishimura Shimadzu Corporation Geoscience Department Industrial Machinery Division

はじめに

近年、場としての海洋領域が、地政学的リスク、地球温暖化等で注目されている。そこで、地球科学的 観点からこれまで海洋で利用されてきた磁気センサを整理し、企業側から見た、地磁気環境下で利用可能な 磁気センサについて、これからの使われ方と新しい技術によるセンサに期待する機能、性能を当社の事例を 交えながら、研究サイドへの要望も含めて解説してみたい。

<u>海洋等の地磁気下における磁気計測</u>

磁気センサを地磁気環境下で使う場合、ご承知の通り測定対象物の磁気+地磁気がセンサに入力される。 そのため必要なダイナミックレンジは地磁気より広くなければ、センサ出力は飽和するため、測定対象物の磁気は測 定できない。地磁気は連続的に、国土地理院、気象庁で測定されており、日本近辺での全磁力の値は、45,000nT ~51,000nT とされている (図 1)。



図1. 磁気センサの種類,および,地表の磁場強度分布図1)

地磁気の観測にはこれまで、プロトン磁力計(全磁力)およびフラックスゲート三軸磁力計(地磁気の三成分)を 用いて測定されることが多かったが、水中環境下において、特に感度、大きさ、消費電力の課題があった。 課題解決のためには、SQUIDの感度に迫りかつ、小型低消費電力な磁気センサが必要であり、最近開発が進 んでいる量子磁気センサへの期待が大きい。本講演では、当社で販売している従来磁気センサ(フラックスゲート 三軸磁力計)を用いた海中等の地磁気環境下での磁気計測に関する結果とその課題、新規磁気センサおよび センシング技術への期待について述べる。

<u>参考文献</u>

1) 気象庁 地磁気観測所 HP より

27aC - 5

海中における電磁波センシング 高橋 応明 (千葉大学) Sensing using RF signals under the sea Masaharu Takahashi (Chiba University)

近年,我が国では海洋の様々な利用方法が検討され始め、新たな海洋産業の創出を支えるための技術開発が進ん できている。従来、海洋における無線通信では一般的に音波が利用されてきた。これは音波が電波や光波に比べて 海水中における減衰が小さく、遠方での通信に適しているためである。しかし、音波の海水中における伝搬速度は約 1.5 km/s であり、海中の電磁波伝搬速度に比べて 20 万分の1 程度とかなり低速である。また、海面や海底などからの 多重反射の影響も大きく、海水温度や塩分濃度、深度による回折の影響も考慮すべき問題である¹⁾。最近は光波に 関する研究も盛んであるが、海水中の濁りによる散乱減衰が大きく、通信速度の不安定性といった観点から限定的な 仕様に限られている。電波は海水中での減衰が大きいことから、海水中の通信は困難だと考えられていた。しかしな がら、昨今は国内外における海中電磁界応用に関する研究は、精力的に行われている。これは、デバイスや通信技 術、解析技術の進展により、測定や解析のダイナミックレンジを十分に確保することが可能になったことが大きい。

我々は、海水の減衰量の大きさを逆手にとり、近距離ではあるが海水中の反射波や回折波の影響が少なく音波より は高速な通信が可能と判断し、海水中、特に浅海におけるにおける電磁波利用を考えている²⁾。海水中における電 波利用の1 つとして、インフラの点検や水難救助の補助などへの適用を考えており、ダイバーや AUV(Autonomous Underwater Vehicle)との通信や位置推定に有用と考える。

海中の電磁波伝搬は、河川とは大きく異なる。海水の電気定数は $\epsilon_r = 80, \sigma = 4.0 \text{ S/m}$ 、淡水では $\epsilon_r = 80, \sigma = 11.15 \text{ mS/m}$ 程度となっており、比誘電率が非常に高いだけではなく、海水では導電率つまり伝搬損が桁違いに大きい。最近の測定器のダイナミックレンジを 100dB とすると、電磁波の伝搬距離と周波数の関係は図1のようになる。30mの距離を伝送するためには、河川では 3MHz、海中では 10kHz 以下の電波を使用する必要がある。また、海水の伝搬損が大きいため、図2に示すように、海中を直接伝わる直接波と、海面まで直上に伝わり海面を伝搬するラテラル波が存在し、深度に応じてこの割合が変化する。

電磁波を送受信するアンテナが必要となるが、kHz帯の電磁波の波長は海水の波長短縮を考慮しても数km となるため、AUVや人に装備するためには電気的に極微小アンテナとなり、受信効率が悪くなる。そのため、 電磁波を検出する小形で高感度な電界もしくは磁界センサが望まれるが、透磁率が空気中と変わらない磁気 センサの方が有望と考える。



図1 海中と河川での100dB 減衰の伝搬距離



図2 微小ダイポールアンテナ間の伝搬

- 大浜俊樹, 滝沢賢一, 井家上哲史, "海中における電磁波利用無線通信に関する一検討", 電子情報通信 学会技術研究報告, vol.113, no275, WBS2013-32, pp.k65-70, Oct. 2013.
- Ryosuke Kato, Masaharu Takahashi, Nozomu Ishii, Qiang Chen and Hiroshi Yoshida, "Investigation of a 3D undersea positioning system using electromagnetic waves", IEEE Transaction on Antennas and Propagation, vol.69, no.8, pp.4967-4974, Jan. 2021.

EV 社会におけるワイヤレス電力伝送技術と磁気技術

藤崎 敬介 (豊田工業大学)

Wireless Electric Power Transmission Technology and Magnetics in EV Society Keisuke Fujisaki (Toyota Technological Institute)

EV の構成要素

環境負荷低減技術として EV 社会の実現が期待されており,現時点の現実解としてハイブリッド EV 車が普及している.図1は、従来のガソリン車から、HEV 車、BEV 車、走行充電 EV 車、超電導リニアまでの構成の変遷を示したものである.機械工学から電気工学への主要技術の変遷、および車両技術から地上(インフラ)技術への変遷といった潮流がうかがえる.これらの中で経済原理的に実用化するのは、最初のエンジン車と建設中の超電導リニアと言え、部品点数の少なさからいって納得できる^{1,2}.

車両は移動体で,エネルギーを供給し続ける必要があり,エンジン車ではガソリンなどを車に搭載して移動しているが,超電導リニアでは地上のインフラ設備より車両に電気エネルギーを供給して駆動している. ガソリンなどはエネルギー密度が高いので,車の搭載は可能であるが,現行のバッテリーのエネルギー密度の低さを考えると,バッテリーのみ駆動は現時点では難しいところがある.

ワイヤレス電力伝送と磁気技術

電気エネルギーのエネルギー伝達方法は、電磁場を介しての非接触作用で、モータがその例といえる.移動体へのエネルギー供給を機械的な接触で行うと、アークの発生や摩耗が発生し、メンテ、大きさ、安全性の点で望ましくない. DC モータから AC モータへの実質的な推移は DC-M のもつブラシの存在である. このため、地上にある電気エネルギーを車両に供給する方法は、電磁場を介しての非接触作用、つまり非接触充電(ワイヤレス電力伝送)が電気工学の本質的な動向といえる.非接触の充電ができれば、走行充電も実現可能であり、超電導リニアは地上からのエネルギーー供給を電磁力付与にしたものといえる.

ワイヤレス伝送では、電磁場現象ではあるが、高周波とは言えそこではモータ同様に「磁気」を介しての エネルギー伝送であり、大きな磁束密度を得、漏れ磁場を少なく集中させるためには、強磁性体の使用が期 待される.

しかしここでも動作周波数が MHz 程度と極めて大きく,高周 波磁気の問題がパワエレ磁気同 様に生じてしまう.本シンポジウ ムを磁気学会にて開催する意義 はそこにあり,多くの研究者への 期待がかかっている.

- 藤崎敬介編著「モータ駆動シス テムのための磁性材料活用技 術」コロナ社, 2018.9.
- Editor: Keisuke Fujisaki, "Magnetic Material for Motor Drive System", Springer-Nature, 2019.12.



(車両とインフラの形態,主要な要素技術)

温故知新-SDGs ワイヤレス給電の未来への道程

松木英敏、佐藤文博* (東北大、*東北学院大) New insights through old experiences: sustainable future of WPT H. Matsuki and F. Sato* (Tohoku Univ., *Tohoku Gakuin Univ.)

はじめに

スマートフォンへの WPT が身近に大きな市場を形成し、機械的接触・電気的非接触が主流になっている。 WPT のさらなる進展のためには改めてワイヤレスの持つ特質を振り返ることも必要かもしれない。それはや はり「電波」ではなく「場」による機械的非接触 WPT の実現であり、交通分野を例に紹介する。

非接触給電と交通システムとの相性

いわゆる EV に対する給電目的は、電車とは異な り、電動力への給電ではなく搭載蓄電池への充電で ある。したがって WPT による走行中給電目的は搭 載蓄電池の蓄電容量維持とみなすのが適当である。

まず一人乗り EV(以後モビリティと称する)を 対象とし、走行中給電区間通過前後で蓄電容量が変 化しない条件を求める(Fig. 1)。単位距離走行時の 消費電力量 S_{uk} を定義し、給電区間通過時に消費 する電力量を走行中 WPT 充電電力で補償したと すればその値 P_c はFig.1中に示すようにモビリテ ィ速度vに比例する値となり、走行中給電区間長 Lには依存しない値となる。

給電区間を走行する速度を設定速度 vc とすれ ば、その速度前後で蓄電容量の維持状態を制御で きることになる。このことを示すのが Fig. 2 であ る。モビリティ速度 v が設定速度 vc よりも速けれ ば電池残量は減少するが、反対に遅ければ電池残 量は増加し「満タン」状態に向かうこととなる。 したがって制御のための設定値は vc となる。

Fig. 2 では供給電源を太陽光パネル(ソーラー) とした。ソーラーは電流源であるため、その制御にはもともと蓄電池が必須であり、 走行中給電をオフグリッドで構成できる 長所がある。

Fig.3はそのことを実証するための予備 試験結果である。給電区間一カ所を有する 走行路を設定し、モビリティによる往復走 行を繰り返した結果、給電区間のない場合 に比べ往復回数が2往復分増加したことが 認められた。



Fig.2 Driving power-consumption compensation utilizing WPT.



Fig.3 Power consumption compensation effect by the WPT repetition charge.

イノベーションに向かう先進磁気応用の磁界共鳴ワイヤレス給電

細谷 達也 (株式会社村田製作所,名古屋大学)

Magnetic field resonance wireless power transfer using advanced magnetic applications for innovation Tatsuya Hosotani

(Murata Manufacturing Co., Ltd., Nagoya University)

<u>はじめに</u>

近年、ワイヤレス給電(WPT, wireless power transfer)の研究開発は活発化している。電気接続なしに電力を 供給するワイヤレス給電の機能は、様々な製品や用途に展開できる。これまでにない製品や新しいビジネス、 そして新産業を期待する。革新的な技術や発想により新たな価値を生み出して社会に大きな変化をもた らすイノベーションにより、未来社会や産業の発展に貢献することを目指す。

本稿では、イノベーションを志向するワイヤレス給電テクノロジーの概要を示し、磁気応用による先進的な磁界共鳴ワイヤレス給電の開発事例を解説する。

ワイヤレス給電テクノロジーと新しい事業開発

ワイヤレス給電による新しい事業開発では、提供技術による顧客価値の創造が必要である。商品やサービスによる付加価値と収益とを整合させ、社会価値と経済価値の好循環を生み出す。用途開拓では、多くの場合、利便性だけでは経済合理性の成立は難しい。有線給電は、①電力効率、②シンプルさ、③コストにおいてワイヤレス給電よりも圧倒的に優れる。イノベーションを目指す新規事業開発では、市場や顧客のニーズよりも強いペインポイントが必要である。ペインポイントは、「お金を払ってでも解決したいポイント」と定義できる。新しい事業開発では、1.テクノロジーの進化、2.ペインポイントを捉えた課題設定、3.複数企業が協働して新しい価値を創る共創事業の3つが成功の鍵となる。開発プロセスでは、①優れた課題発見、②課題の深い理解、③技術開発と試作評価のサイクルを回し、仮説検証による軌道修正を繰り返して成功に導く。

ワイヤレス給電テクノロジーをFig.1に示す。事業展開に向けて技術は進化している。筆者らは、ワイヤレス給電の開拓者として、世界に先駆けて、1994年に磁界共鳴技術、1995年に電界共鳴技術を開発し、2011年には産業発展を目的に、磁界・電界共鳴技術の実用化に必要な基本的な特許を出願して登録している。ペインポイントを捉えた技術開発により社会課題の解決を目指す。ワイヤレス給電分野では、現在までに国内外300件以上の特許を登録し、新たに特許ライセンサー事業なども進めている。

磁界共鳴ワイヤレスの先進開発

磁界共鳴ワイヤレス給電技術の先進開発の事例①、②を解説する。 事例①では、「紙の電子化」、「カード多機能化」を狙う。厚さ0.75mmの カードに受電ユニットを搭載し、例えば、指紋認証電子機能により本人の みが使用できる。高度セキュリティの社会課題を解決する。二次電池あり となしの両方を開発している。送電では、既存の誘導式読み書き装置(NFC, Near Field Communication)を利用できる。送電装置の用意は不要である。

事例②では、世界に先駆けて、BMI(Brain Machine Interface) 脳波計装 置の開発と、筋萎縮性側索硬化症(ALS)患者に向けた臨床試験の準備を 進めている。頭蓋骨内インプラントワイヤレス給電によりQOL(Quality of life)を向上させ、有線給電における感染症問題の社会課題を解決する。

先進磁気応用により、事例①は、NFC装置がつくる磁束を利用し、距離 40mmの電力伝送に成功している。事例②は、電磁界共鳴の形成により生 体適合金属チタン筐体内への給電に成功。解析と実験より、電磁誘導技術 と比較して、①脳波計の体積70%以上低減、②金属チタン筐体での電力損 失90%以上低減、③温度上昇2℃以内を達成する画期的な成果を得ている。



Fig.1 WPT technology



Fig.2 WPT Electronic card



Fig.3 WPT BMI system

走行中ワイヤレス給電の課題と実現可能性についての紹介

居村 岳広 (東京理科大学) Introduction to the Challenges and Feasibility of Dynamic Wireless Power Transfer Takehiro Imura (Tokyo University of Science)

はじめに

走行中ワイヤレス給電(DWPT: Dynamic Wireless Power Transfer)の実現可能性について、経済成立性、 DWPT用高速独立協調制御、電気特性と機械特性を両立したコイル埋設技術について紹介する。

経済成立性

高速道路に DWPT を導入するに当たって必要な費用算出は DWPT 実現において非常に重要である。透明 性のある合理的な情報に基づいた算出を行った結果、現在の技術において約3億円/km程度の見通しを立て ることが可能となった。コストの内訳からコイル価格の重要性が示唆される。そして、コイル構成を変更す るコスト低減効果が高いことも分かった。

高速独立協調制御

DWPT は 100km/h の高速走行をしながら走行中ワイヤレス給電を行う。1m のコイルの場合、100km/h で は 36ms でコイル上を通過する。この間に送電側システムは車両側の受電コイルを検出して電力を送り、受 電側は受電電力を制御し、更に車が過ぎ去ったら送電側は電力供給を終えないといけない。これらを通信を 基に行うことは安全面、技術面から難易度が高いため、強調しつつお互い独立制御をしなければならない。 待機電力を大幅に低減できる速度推定を用いた電力供給技術を開発した。

電気と機械特性を考慮したコイル埋設技術

道路面は走行安全性を担保するため、DWPT はコイルをアスファルト下に埋設する必要がある。停車中ワ イヤレス充電はコイルは地面上に設置するために、伝送距離は短く出来るが、DWPT に関しては停車中ワイ ヤレス充電より必然的に伝送距離がのびるため、効率の低下が生じる。また、道路の影響でコイルの電気特 性は悪化する。そのため、効率を向上させ DWPT に必要な電力供給が可能なシステム開発が必要である。 一方で、機械特性の観点から最低 10 年以上使える道路設計が必要であり、道路の耐久性についても考慮す る必要がある。この電気特性と機械特性の両立が重要となり、20 年を超えるコイルとその埋設方法を開発 した。

まとめ

DWPTを実現するに当たって重要な3つの課題は、経済成立性、DWPT用高速独立協調制御、電気特性と 機械特性を両立したコイル埋設技術である。これらに対する研究開発の成果について紹介した。

- Kanta Kobayashi, Takehiro Imura and Yoichi Hori, "A Method for Reducing Standby Losses by Vehicle Detection and Switching Control in a System Configuration for Multiple Vehicles in Dynamic Wireless Power Transfer", IEEE Wireless Power Technology Conference and Expo 2023(WPTCE), San Diego CA USA, June. 2023.
- 2) Naoya Sasa, Takahiro Yamahara, Seho Kim, Takehiro Imura, Grant Covic, Yoichi Hori, Hiroyuki Mashito, Hiroki Tanaka, "Thermal Modelling of IPT Coil Embedded in Resin for the Roadway", 2024 IEEE WIRELESS POWER TECHNOLOGY CONFERENCE AND EXPO (WPTCE2024), Kyoto, Japan, May. 2024.

MHz帯WPTにおけるコイル設計例

関屋 大雄 (千葉大学大学院情報学研究院) Design example of coupling coils for WPT at MHz band Hiroo Sekiya (Graduate School of Informatics, Chiba University)

はじめに

6.78MHz, 13.56MHz 等は ISM (Industrial Scientific and Medical Band) バンドと呼ばれる。この周波数帯は パワーエレクトロニクス(以降、パワエレ)においては高周波帯に分類され、したがって、無線電力伝送 (Wireless Power Transfer: WPT)においても高周波パワエレの技術を適用することが重要である。高周波帯 パワエレ回路において、もっとも重要なのはスイッチング損失を低減することであり、磁性素子設計はソフ トスイッチング条件に拘束される。一方で、結合コイルはそれ自身の損失を最小化することも求められ、高 周波 WPT のコイル設計にはこの両面からの条件を満足する最適化が必要である。本稿では、それを実現する ための一方法を示し、設計例によりその妥当性を示す。

高周波 WPT

図1にWPTの回路モデル例を示す。WPTに おいて、結合コイルは自己インダクタンス、 結合係数、等価直列抵抗でモデル化される。 ISM バンドWPTにおいては、磁界共鳴方式 を採用し、結合コイルは空芯となる。磁界共 鳴方式は受電側で結合コイルの自己インダ クタンスと完全共振を取ることにより、送電



図1:WPT 回路構成例[1]

側から見た受電回路の等価抵抗 R_rを大きくする。この等価抵抗 R_rと送電コイルの等価直列抵抗 r_tは直列関係 となり、かつ、同じ送電電流が流れることから、この抵抗の比が効率を決める。このとき R_r、r_tはともに結合 コイルパラメータの関数で表されるため、最適なコイル設計パラメータが存在する。さらに送電コイルの自 己インダクタンスはスイッチング損失を低減するための条件を満足しなければならない。

設計例と実装

例えば結合コイルをソレノイド型とする場合、自己インダクタン スは長岡係数を用いた近似式、結合係数(相互インダクタンス)は Neumannの式、そして、等価直列抵抗は Dowell の式でモデル化す ることにより、コイルの物理パラメータ(コイル径、コイル長、線 径、巻数)から電気パラメータに変換できる。これにより、結合コ イルと回路の最適設計を同時に行える。設計仕様として、入 力電圧 80V、出力電圧 16.8V、送電周波数 6.78MHz、コイルの許 容サイズ直径 50mm、高さ 16mm 中で電力伝送効率を最大化する 最適化を行った。その結果表 1 の最適設計値を得た。図2に実装 回路を示す。実験波形は理論予測と良好な一致を見せ、実験検証 により、最適設計が行えていることが確認できる[1]。



図2:実装回路

表1:最適コイル設計値

N_t	N_r	d_{wt}	d_{wr}
6	6	$1.22 \mathrm{~mm}$	$1.02 \mathrm{mm}$

 Y. Komiyama, et. Al. "Analysis and Design of High-Frequency WPT System Using Load-Independent Inverter With Robustness Against Load Variations and Coil Misalignment," *IEEE Access, Jan. 2024.*

ワイドバンドギャップ半導体パワーデバイスの開発動向と 新たな磁気デバイスへの期待

須田 淳(名古屋大)

Current status of wide-bandgap semiconductor power devices and expectation of new magnetic devices J. Suda

(Nagoya Univ.)

1947年のトランジスタの発明以降、半導体デバイスはさまざまな発展を遂げたが、その一つに、大電流、 高電圧を制御するパワーデバイスがある。パワーデバイス材料として使用されてきたのはシリコン(Si)である。 スイッチング素子としては、50Hz/60Hzの交流の制御用にサイリスタ(当時は Silicon Controlled Rectifier, SCR と呼ばれていた)が登場し、出力調整器などに使われた。その後、ベース電流でオン/オフを制御する高耐圧バ イポーラトランジスター(パワーBJT)が台頭し、それを用いたインバータやコンバータが普及した。パワーエ レクトロニクスの誕生である。半導体集積回路の微細加工技術が大きく進展すると、その技術を応用したパ ワーMOSFET が開発された。高速スイッチング性、電圧制御の容易さから広く普及するようになる。

Si の絶縁破壊電界強度は 300 kV/cm 程度であり、高耐圧素子を作製するためには、耐圧維持層のドーピン グを下げ、厚みを増やす必要がある。この耐圧維持層はデバイスがオン時には直列抵抗になるため、耐圧を 向上させると導通損失(オン抵抗)の増大(耐圧の2乗に比例)となってしまう。そのため、Si パワーMOSFET の 適用範囲はせいぜい 400 V 程度とされており、より高耐圧の素子については、スイッチング速度は遅いもの のキャリア注入による伝導度変調による低オン抵抗化ができるサイリスタが使われていた。その後、伝導度 変調と電圧駆動の利点を併せ持つ、絶縁ゲート型バイポーラトランジスタ(IGBT)が開発され、1980 年代後半 以降は 400 V までは Si MOSFET、600 V 以上は Si IGBT がパワーエレクトロニクスを支えるようになった。IGBT はバイポーラ素子であり、スイッチング速度が遅いため、スイッチング損失が大きい。そのためスイッチン グ周波数は 5~10 kHz 程度の設定される場合が多く、電気自動車や鉄道車両からキーンという音がするのはこ のスイッチング周波数に起因している。

パワーデバイスの損失を根本的に低減するために、絶縁破壊電界強度の高い半導体材料の開発が進められた。ワイドバンドギャップ(WBG)半導体の炭化珪素(SiC)や窒化ガリウム(GaN)である。オン抵抗は絶縁破壊 電界強度の3乗に反比例する。SiC や GaN は Si の 10 倍の絶縁破壊電界強度を持つので、損失は 1/1000 となる。これにより、従来 Si IGBT が担当していた 600 V~3.3 kV のデバイスを、SiC MOSFET で対応できるよう になった。MOSFET はユニポーラデバイスでありスイッチング損失が IGBT に比べ圧倒的に少なく、スイッ チング周波数の高周波化が可能となった。可聴周波数を超える 20kHz~数百 kHz が利用可能となった。また、 WBG 半導体は高温でもリーク電流が少ないという特性があり、Si では 150℃程度が動作限界であるが、SiC では 300℃付近でも動作可能となる。SiC パワーデバイスの開発が進むと、周辺の受動素子の問題が顕在化した。高温、高周波に対応できる受動素子がなく、せっかくの WBG 半導体の高温動作、高周波動作が活用で きないのである。

GaNはSiCと似た特性を持つが、GaNのMOSFETの場合は、高い電子チャネル移動度に起因してSiC MOSFETよりさらに高い周波数に対応可能となり数~十数 MHzのスイッチングが視野に入る。また、Al_xGa_{1-x}N/GaN界面に誘起される二次元電子ガスを用いた高電子移動度トランジスタ(HEMT)構造を採用すれば、このデバイスは数百 MHzのスイッチングさえも可能となる。

本講演では、半導体パワーデバイスの歴史を振り返り、最近のWBG半導体パワーデバイスの技術の進展 や開発動向について紹介する。発表者は磁気デバイスについては全くの門外漢であるが、パワーデバイス研 究者の立場から、磁気デバイスへの期待についてお話したいと考えている。

文部科学省 INNOPEL 事業と受動素子ロードマップ活動の紹介

山口正洋

(INNOPEL プログラムオフィサー・東北大学)

Introduction to MEXT INNOPEL Project and Passive Components Roadmap Activities

Masahiro Yamaguchi

(Program Officer of INNOPEL • Tohoku University)

1. 文部科学省 革新的パワーエレクトロニス創出基盤技術開発事業 (INNOPEL)¹⁾

本事業では、世界に先駆けた超省エネ・高性能なパワーエレクトロニクス(以下、パワエレと略す)機器 を早期に創出し、2050年カーボンニュートラルの実現と世界市場獲得への貢献を目指している。そのために、 GaN等の優れた材料特性を実現できるパワーデバイスやその特性を最大限活かすことのできるパワエレ回路 システム、その回路動作に対応できる受動素子等を創出することを目的としている。高周波・小中容量電力 (1kW 以下~100 kW)を扱うパワエレ機器をターゲットとして、パワエレ回路システム領域、パワーデバイ ス領域、受動素子領域、次々世代・周辺技術領域の4領域を設け、これらの異分野の要素技術を垂直統合し て「まとめあげる」ことを特徴としている。事業期間は2020~2025年度で、事業名の英訳 Innovative Power Electronics Technologies から、略称を INNOPEL としている。

2. 磁気素子に関する開発研究

磁気素子に関する主要な課題は、素子の温度上昇の低減である。GaN や SiC 等の高速パワーデバイスの開発により、パワエレ回路の高速スイッチング化とスイッチング周波数の高周波化が同時に促進され、より小型で高電力密度のパワエレ機器の社会実装が期待される。これを実現するための最大のボトルネックが磁気素子の温度上昇である。その解決には、「高飽和磁化低損失軟磁性材料」の開発に留まらず、パワエレの真の要求を明確化しそれに応えることが肝要である。これらを踏まえて、磁気異方性軟磁性材料を用いた高周波・電力変換用トランス・インダクタの開発(研究代表者:信州大 水野勉教授)、革新的パワーエレクトロニクスのための超低損失磁性材料の創成(同:物材機構・東北大 岡本聡教授)、次々世代パワエレ用高飽和磁束密度窒化鉄の研究(同:東北大 斉藤伸教授)が 2021 年度から開始された。主な成果を列挙しよう。

水野チームでは、~1kW, ~MHz の小容量磁気素子を対象として、18 µm 厚 Co-Pd 置換 FINEMET 組成ナ ノ結晶合金異方性薄帯リボンにより、100 kHz~1 MHz の広い周波数範囲で FINEMET の 60%減の鉄損を達 成した。岡本チームでは、~100 kW, ~100 kHz, $B_s \ge 1.5$ T (磁心として)の中容量磁気素子を対象として、 NANOMET ベース薄帯、NANOMET ダストコア等を開発して、FINEMET に迫る低ロス化 (89 kW/m³ @100 kHz, 0.1 T)と Fe 系アモルファスを上回る高 B_s (1.6 T)を実現し、マルチスケール解析、モデリングを活用 して学理の構築にも成果を挙げている。斉藤チームでは、a"-Fe₁₆(C, N)₂ 粒子を合成して保磁力を $H_c = 86$ Oe まで減少させ、バルク a"窒化鉄系材料として初めてコアを試作し鉄損を計測できた。

3. 受動素子ロードマップ活動

開発研究の実施者を中心にして外部有識者も加わり、PD・PO も参画して受動素子技術ロードマップ WG を構築している。まずパワーエレクトロニクス回路およびシステムが真に必要とする受動素子の要件と現状 を磁気素子とコンデンサについて明確にする。次に、それに応える受動素子技術の現状を、前項の成果を含 めてまとめる。パワーデバイス技術も要約して記述する。最後に将来動向を記す。2025年度中に発行見込。 目的とするロードマップの内容が一部未確定のため、以下、一部私見を交えて記す。まずインダクタとト ランスでは磁性材料への要件が異なることを知ろう。材料から磁心成型へそして巻線と機器実装を経てパワ エレ回路素子へ「まとめあげる」過程では応力や未知の損失への新しい挑戦がある。温度上昇の低減のため には、高飽和磁化が不要な場合もある。高周波化は手段であり、目的ではない。はじめに電力、インダクタ ンス(主たる電気的指標の意)、寸法、効率がある。一方、パワエレ分野では、中長期的にみて「高飽和磁化 低損失軟磁性材料」への期待は根強い。さて、未利用のミクロ・マクロ計測解析技術が使える。LLG 方程式 はもとより有用だが、kW 級素子の全体を解くのは計算時間が非現実的に長い。磁気的な素過程から回路設計 まで様々な段階のモデリングを確立し、それらを連携してパワエレ技術者が使いやすい設計技術に「まとめ あげる」ことで、先端材料や革新的設計法を短時間で確実に社会実装できる。そこでは、機械学習を端緒と したパワエレのためのデータ科学を創り、活用したい。これらは大きな意義のある挑戦と思う。パワエレは 日本が強い領域であり、今後 AI を遊び心で捉えるような若い技術者が大いに活躍し、更に発展するだろう。 本研究は文部科学省革新的パワーエレクトロニクス創出基板技術研究開発事業 JPJ009777 の助成による。

参考文献 1) 例えば、INNOPEL シンポジウム 2023, https://www.mri.co.jp/seminar/20240228.html

Fe 基アモルファスおよびナノ結晶合金薄帯の

開発動向と実用化ボトルネック

太田 元基

((株) プロテリアル、島根大学)

Development trends and practical bottlenecks of Fe-based amorphous and nanocrystalline alloy ribbons

Motoki Ohta

(PROTERIAL Ltd., Shimane University)

背景

Fe 基アモルファスおよび Fe 基ナノ結晶合金薄帯がコア材料として実用化され始めてから 30 年以上が経 過している。ランダム系ゆえに長周期構造を有さない性質により、構造に起因した磁気異方性が低く、良好 な軟磁気特性が得られる。これらの合金薄帯は高温の溶融金属を急冷して作製され、その際に冷却速度の制 約から板厚は 30 µm 以下で製造されることが一般的である。Fe 基アモルファス合金薄帯は、飽和磁歪が約 30×10⁶と軟磁性体の中では大きい部類であり、このことがコア製造に制約を与えていたが、課題が解決さ れ商用のトランスに用いられるようになり、特に低待機電力特性に優れた性能を有する。他方、Fe 基ナノ 結晶合金薄帯は、飽和磁歪を 1×10⁶以下で飽和磁束密度 *B*₅ が 1.2 T 以上あり、かつてパーマロイやソフト フェライト等が使われていた数十キロヘルツ以上の周波数帯でトランス、インダクタ、ノイズフィルターや 電磁波シールド等に用いられるようになっている。SiC や GaN などのパワー半導体が多く用いられるように なり、モータを駆動させるような数キロヘルツオーダーでも高い次元での軟磁気特性と高 *B*₅の両立が求め られるようになり、このナノ結晶化の技術を用いて、高 *B*₅ナノ結晶合金薄帯の開発も進められた。

Fe 基アモルファスリボンにおける磁歪対策

Fe 基アモルファス合金薄帯における磁歪の性質は物質の構造と組成で決まる物質固有の性質であるため、磁歪の低減は難しく、影響を少なくする対策が取られてきた。磁路方向と磁化容易軸方向がずれていると B-H ループの飽和性に影響を与えるだけでなく、磁化回転に伴い磁歪が発生し、交流磁場下では騒音の発生原因になる。換言すれば、トランスやインダクタのコアのように磁路方向が決まっていれば、その方向に磁化容易軸が向くように形状やひずみをコントロールすることで、磁歪の影響を少なくすることができる。当初は、磁場中熱処理を施すことで、B-H ループの形状を制御し、低騒音のアモルファストランスが生産されていた。しかしながら、磁場中熱処理を施したアモルファス薄帯は脆化し、切断加工等を後工程で入れるのが困難になる。そこで、張力をかけながら高速昇温を行い応力誘起の磁気異方性を付与する方法が開発された¹⁾。通常の磁場中熱処理も高温短時間の熱処理を施すことで、脆化を抑えつつ B-H ループの形状を制御が可能となり、平積み型のトランスコア等でも利用が可能となった。

高ペナノ結晶合金粉末の開発

Fe 基ナノ結晶合金はアモルファス相を得たのちに熱処理を施すことで、平均結晶粒径が 10~20 nm 程度の ナノ結晶粒がアモルファス相中に高密度で析出した組織を有する。初期のアモルファス相の Fe 量を増加させ ることで高 B_s 化を目指したわけだが、その分アモルファス相の形成を助ける効果がある元素 Nb や B の総 含有量を抑える必要がある。そのため、結晶化の際に結晶粒成長を抑制する役割を担う残留アモルファス相 の熱的安定性が低下して、結晶粒の粗大化が起きやすくなり、良好な軟磁気特性が得られにくくなる。Fe-Cu-Si-B アモルファス合金薄帯を結晶化温度以上に高速昇温することで、ナノ結晶組織が得られ、B_sが 1.8 T 以 上、10 kHz におけるロスが電磁後半の 1/3 以下の高 B_sナノ結晶合金薄帯が開発された。さらに、この技術を 応用し、直径 20 μm 程度の粉末においてもナノ結晶相が得られている²。

<u>参考文献</u>

- 1) D. Azuma, N. Ito, M. Ohta: J. Magn. Magn. Mater., 501 (2020) 166373.
- 2) M. Ohta, N. Chiwata: J. Magn. Magn. Mater., 509 (2020) 166838.

拡張型ランダウ自由エネルギーモデルによる鉄損解析

小嗣真人 (東京理科大学) Iron loss analysis by extended Landau free energy model Masato Kotsugi (Tokyo University of Science)

次世代パワーエレクトロニクスの実現に向けて、軟磁性材料の機能設計に高い注目が集まっている。その 中でも、低鉄損の軟磁性材料の実現は急務であり、鉄損メカニズムの解明が求められている。鉄損における 未解決問題のひとつとして異常渦損があり、その理解は応用上喫緊の課題と言われている。既存の Steinmetz 式は高速磁化反転を取り扱える一方で、空間不均一性や異常渦損を正確に取り扱うことが困難であった。特に、 急激な磁区構造変化に伴う損失エネルギーの解析手法が無いのが現状である。このような高速磁化反転は非 平衡な磁化反転過程を取るとされており、その理解は基礎的にも十分に整備されていない。そのため、次世 代軟磁性材料の設計戦略は未だ定まっていないのが現状である。

近年我々は、磁気物理と情報科学を融合した「拡張型自由エネルギーモデル」を開発し、鉄損のメカニズ ム解析に取り組んでいる。本モデルは、鉄損の背後にある自由エネルギー地形をデータ空間で解析するもの で、マクロ機能とミクロ構造を階層を超えて接続することができる。特徴量は物理に根差したホワイトボッ クス型で設計するため、損失メカニズムの因果解析を実行でき、その原因を元の磁区構造に遡って可視化で きる。講演では、モデルの簡単な原理説明と様々な軟磁性材料での解析結果を報告する。



- R. Nagaoka, K. Masuzawa, M. Taniwaki, A. L. Foggiatto, T. Yamazaki, I. Obayashi, Y. Hiraoka, C. Mitsumata, M. Kotsugi*, IEEE Transaction on Magnetics, (2024) accepted
- A. L. Foggiatto, R. Nagaoka, M. Taniwaki, T. Yamazaki, T. Ogasawara, I. Obayashi, Y. Hiraoka, C. Mitsumata, M. Kotsugi, IEEE Transaction on Magnetics, (2024) accepted
- 3) S. Kunii, K. Masuzawa, A. L. Fogiatto, C. Mitsumata & M. Kotsugi*, Sci. Rep. 12, 19892 (2022)
- 4) A. L. Foggiatto, S. Kunii, C. Mitsumata & M. Kotsugi, Communications Physics 5, 277 (2022)
- 5) S. Kunii, A. L. Foggiatto, C. Mitsumata & M. Kotsugi*, Sci. Tech. and Adv. Mater. Methods, 2 445-459 (2022)

LLG/Maxwell 疑似連成シミュレーションによる単磁区モデルの

動的磁化反転および動的損失解析

大石恭輔,齋藤鴻志,佐藤敏郎,曽根原誠,南澤俊孝 (信州大学)

Dynamic magnetization reversal and dynamic loss analyses for single domain model

by means of LLG/Maxwell pseudo-coupled simulation

Kyosuke Oishi, Koshi Saito, Toshiro Sato, Makoto Sonehara, Toshitaka Minamisawa

(Shinshu University)

<u>1. はじめに</u>

高周波駆動のパワーエレクトロニク ス回路に用いる磁気素子の設計に有用 な磁気素子モデルの作成を目的に,一 軸磁気異方性を持つ単磁区軟磁性材料 モデルを対象としてトランスおよびイ ンダクタの動作を模擬した解析を行っ たのでその結果について報告する. LLG マイクロマグネティクスシミュレ ーションより得られた動的磁化特性を

Maxwell 解析の材料 intrinsic パラメータに適用すること により LLG/Maxwell 疑似連成解析を行った.以下は正 弦波交流励磁トランス動作を模擬した結果である.

2. LLG 磁化ダイナミクスの解析

Fig.1 に示した単磁区磁性体モデルを用いて LLG 磁化 ダイナミクスの解析を行った。材料特性としては、飽和

磁化 M_s; 1.0 T, 異方性磁界 H_k; 800 A/m,ダンピング定数 α; 0.1, 飽和磁化と異方性磁界から見積もられる 強磁性共鳴周波数 f; 30MHz を設定し,困難軸方向に高周波磁界(100 kHz~10 MHz)を印加した. Fig.2 は 磁界振幅 H_m;400 A/m の場合の動的 M-H マイナーループを示すものであり,共鳴周波数より十分に近い

1MHz では線形ループであるが、共鳴周波数に近い 10MHz では M-H マイナーループに非線形性が現れることが明らかとなった.

3.磁化の動的損失の解析

Fig.3 に二次元 Maxwell 非線形磁界解析の薄帯モデルを示す.薄帯 の長手方向(磁化困難軸方向)の磁化特性として LLG 解析による動 的 *M-H* ループを指定し,薄帯の電気抵抗率 ρ; 1.2 μΩ・m,薄帯厚 さ;18µmとした. Fig.4は外部から困難軸方向に交流磁界を印加し, 薄帯の厚さ方向で平均化した磁束密度振幅 Bm をパラメータとしたと きの動的エネルギー損失 W [J/m³]の周波数特性である.ここで計算さ れる動的損失には磁化回転よるダンピング損失とうず電流損失が含 まれるが、1 MHz 以下の動的損失は古典論によるうず電流損失と良く 一致し、共鳴周波数に近づくにつれて古典論とのずれが大きくなっ た. インダクタの動作を考慮した直流バイアス磁界下での解析につ いては学術講演会当日に報告する.



Fig. 2 Dynamic M-H loop obtained from LLG analysis.

400



Fig.3 Ribbon model for Maxwell simulation.



Fig.1 Dynamic loss vs. frequency obtained from LLG/ Maxwell simulation.

Effect of nanostructure on the core loss of soft magnetic materials

H. Sepehri-Amin¹, R. Gautam¹, S. Hiramoto², A. Bolyachkin¹, N. Kulesh¹, H. Mamiya¹, S. Okamoto²,

T. Ohkubo¹

¹National Institute for Materials Science, Tsukuba, Japan ²Tohoku University, Sendai, Japan

Soft magnets are important components in high-frequency power electronic devices, significantly contributing to efficient energy conversion. They are commonly utilized in transformers, inductors, and magnetic cores within high-frequency power converters. However, cutting-edge power electronics technologies demand soft magnets with minimal core loss at high frequencies. This study demonstrates that high-frequency core losses in Fe-based soft magnetic ribbons can be reduced through nanostructure engineering. We present the optimal microstructure designed to minimize core losses in the 10-20 kHz frequency range.

Amorphous Fe-based ribbons with different compositions were prepared by rapid solidification. The amorphous ribbons were annealed at a varied temperature range and time to realize different microstructural features. The microstructure studies were carried out using XRD, TEM, and APT. Magnetic domain observations were conducted by magneto-optical Kerr effect (MOKE) and Lorentz microscopy. Saturation magnetization and coercivity were evaluated by LakeShore VSM 740 vibration sample magnetometer up to an applied magnetic field of 2.0 T. Core losses were measured using B-H analyzer under a magnetic flux density of 1-1.5 T and a frequency range of 0.1-20 kHz.

Figure 1(a) shows the total core loss of the Fe-based soft magnetic ribbons obtained under 1.0 T at 10 kHz as a function of the volume fraction of α -Fe crystals of ribbons with different annealing backgrounds. The total core losses at 10 kHz decreased from 165 W/kg in an amorphous state to a value of 75 W/kg as the volume fraction of α -Fe crystals increased to 5.1 vol% in an amorphous matrix, and then increased again as the crystalline volume fraction increased. Detailed analysis of the core losses showed that the contribution of hysteresis and classical eddy current losses to the obtained results is small and the observed core loss dependence on the volume fraction of α -Fe crystals is due to excess losses. According to the microstructure and magnetic domain observation (Fig. 1(b)), it was found that reduction of core loss is due to change in the magnetic domain shape and their movement under an ac magnetic field. Based on detailed microstructural characterizations and magnetic domain observations, the underlying mechanism is discussed. Moreover, we will present how this concept is universal among many different types of soft magnetic materials. In addition, other nanostructural factors which are influential to the core losses of soft magnetic materials will be introduced.



Fig. 1. (a) Total core loss measured under 1 T at 10 kHz from Fe-based soft magnetic ribbons as a function of volume fraction of α -Fe crystals, and (b) BF-TEM images, selected area electron diffraction patterns, and magnetic domain configuration in the remanence state obtained from samples i and ii marked in (b).

軟磁性材料における過剰損失発生機構の解明

塚原宙^{1,3}、H. Huang²、鈴木清策²、小野寛太³、岡本聡¹ (¹東北大,²モナッシュ大学,³大阪大学)

Origin of excess losses in soft magnetic materials H. Tsukahara^{1,3}, H. Huang², K. Suzuki², K. Ono³, S. Okamoto¹ (¹Tohoku Univ., ²Monash Univ., & ³Osaka Univ.)

はじめに

軟磁性材料のエネルギー損失は Steinmetz の方程式により説明されてきた。この方程式はヒステリシス損失、 古典渦損失および過剰損失により構成される。ヒステリシス損失の原因は保磁力であり磁気異方性が高いと 大きくなる。これに対して古典渦損失と過剰損失の原因は磁化運動による渦電流であると説明されてきた。そ のため低い保磁力と高い電気抵抗が軟磁性材料の設計指針とされてきたが、近年電気抵抗と関係を持たない 過剰損失が報告された [1]。この過剰損失は磁歪定数と相関を持ち、先行研究において我々は磁壁による局所 的な歪が過剰損失の原因になりうる事を証明した [2]。磁歪によるエネルギー損失は渦電流によるエネルギー 損失と同じ周波数依存性を示し実験結果を定性的に説明したが [3,4]、渦電流と磁歪どちらが支配的であるか 定量的な議論には至らなかった。本研究において我々は磁壁運動における渦電流と磁歪効果を正確に定式化 し、Steinmetz の方程式を拡張することで定量的な比較を可能にし、軟磁性材料の過剰損失発生機構を明ら かにした。

結果および考察

図 1(a) に示される単純なストライプ磁区モデルを用いて過剰損失の定式化を行った。磁区は *x* 方向のみに存在し、 外部磁場により磁壁もまた *x* 方向に移動する。磁壁が移動すると局所的に渦電流と歪みが発生し、それぞれ電気 抵抗および材料の粘性により抵抗力 β*x* を発生する。ここに β は粘性係数である。この抵抗力を含めた磁壁の運動 方程式からエネルギー損失の定式化をおこない以下の方程式

-312-

$$P_{\rm exc} = \sqrt{(\beta_{\rm eddy} + \beta_{\rm ma})I_s L V_0} [(I_p/I_s)f]^{\frac{3}{2}}$$
(1)

を得た。ここに I_s は飽和磁束密度、L は系の長さ、 V_0 は 磁壁の増加率、 I_p は最大磁束密度であり f は外部磁場の周 波数である。また β_{eddy} と β_{ma} はそれぞれ渦電流と磁歪に よる粘性係数を表し

$$\beta_{\text{eddy}} = 4\sigma G dI_s^2, \quad \beta_{\text{ma}} = \frac{2I_s \lambda_s^2 D}{\gamma \delta_w}$$
 (2)

と表される。ここに σ は電気伝導率、G = 0.1356、dは磁性体の厚み、 λ_s は磁歪定数、Dは材料の粘性を表す定数、 γ は磁気回転比であり δ_w は磁壁厚みである。この定式化を用いることで、大まかにではあるが、図1に示すように過剰損失の実験結果を解析計算により再現することができ、磁歪定数が10 ppmを超えると磁歪による効果が支配的になることを理論的に明らかにした。

 Parsons, R. et al. J. Magn. Magn. Mater. 476, 142 (2019).

[2] H. Tsukahara, et al. NPG Asia Mater. ${\bf 14}$ 44 (2022).

[3] H. Huang, et al. Phys. Rev. B **109**, 104408 (2024).

[4] H. Tsukahara, et al. NPG Asia Mater. **16** 19 (2024). 謝辞

本研究は国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発 機構(NEDO)の委託業務(JPNP14004)で実施された。


Fig 1: (a) Simple stripe domain mode for our formulation. (b) Excess losses obtained by experimentals and theoretical calculations.

正弦波/三角波励磁によるトロイダルコアの損失測定

上原裕二、岡本聡*、佐藤佑樹**,谷口卓也*

(磁気デバイス研究所、東北大学*、青山学院大学**)

Magnetic core loss measurements of toroidal cores under sinusoidal and triangle waveform

Y. Uehara, S. Okamoto*, Y. Sato**, T. Taniguchi*

(Magnetic Device Laboratory Ltd., Tohoku Univ. *, Aoyama Gakuin univ. **)

はじめに

磁性材料の損失評価はその簡便さから正弦波励磁で 行われることが多い。一方、実際のインダクタ等のデバ イスは三角波励磁で使用されることが多い。このため、 正弦波/三角波励磁での損失についての理論的および実 測による検討が行われている。Bertotti らは Fig.1 に示す ようにコア損失をヒステリシス損失と渦電流損失に分け て考え、ヒステリシス損失は励磁波形に依存せず、渦電 流損失のみが励磁波形に依存するとして励磁波形による 損失の差を論じている(1)。この考え方によると、ヒステ リシス損失が支配的な材料ではコア損失は励磁波形に依 らないことになり、渦電流損失が支配的な材料において は三角波励磁でのコア損失は正弦波励磁の約80%の損失 になることが示されている。この考え方と実測の関係を 論じた報告はほとんどなされていないため、本発表では 正弦波/三角波励磁によるコア損失を精度良く測定し、上 記モデルとの比較を行った。

コア損失の測定方法

コア損失の測定は Inductive Cancellation 法によって行った⁽²⁾。この方法は Fig.2 に示すように測定サンプルと空心トランスを直列接続し、2 次側で空心トランスの極性を逆にすることで測定サンプルのインダクタンス成分をキャンセルし、測定回路に流れる電流と測定サンプルに誘起される電圧の位相差を小さくすることで損失の測定誤差を抑えることができる優れた手法である。

測定には、渦電流損失がほとんどない高抵抗材料と して Ni-Zn フェライト(Fire Rite 社製 FT50-67)を、渦電流 損失がある材料としてセンダスト粉からなる圧粉コア (トーキン製)を用いた。サンプルの比透磁率は 100 kHz でそれぞれ 45、32 である。正弦波/三角波励磁の比較は 2 kHz から 100 kHz の周波数で行った。

Fig.3 には、センダスト圧粉コアの正弦波励磁における損失の周波数依存性を示す。測定時の最大磁束密度 Bmは10mTとした。100kHz以下の周波数ではコア損失 はほぼ一定となっており、この周波数領域ではヒステリ シス損失が支配的であることが分かる。センダスト圧粉 コアは渦電流損失のある材料として選択したが、今回は ヒステリシス損失が支配的な条件での検討となる。



Fig.1 Hysteresis loop shape ⁽¹⁾



Fig.2 Inductive Cancellation Method



Fig.3 Frequency dependance of core loss of Sendust dust core



Fig.4 Comparison between sinusoidal and triangle waveform excitation. The measurement frequencies are 2 kHz to 100 kHz. (a) Ferrite core and (b) Sendust dust core.

測定結果と考察

Fig.4 にフェライトおよびセンダスト圧粉コアの正弦波/三 角波励磁におけるコア損失の測定結果を示す。測定周波数は2 kHz, 10 kHz および 100 kHz である。Bertotti らの考え方によれ ばいずれのサンプルにおいても励磁波形による損失差はない はずであるが、フェライトコアでは 100 kHz、9 mT 以上の磁束 密度において励磁波形に依存する結果が得られた。一方、セン ダスト圧粉コアの場合はいずれの周波数、磁束密度においても 励磁波形による差がみられ、三角波励磁でのコア損失は正弦波 励磁の約 95 %となっている。これらの結果は磁気余効による 可能性があるため、それぞれの材料の磁化緩和の測定を行った。 測定は Fig.5(a)に示すような三角波電流に t1 のピーク保持時間 を追加した台形状の電流波形を印加して行った(3)。磁化緩和は Fig.5(b)に示すように、フェライトコアでは数 µs、センダスト 圧粉コアでは数10 μs で起こっており、サンプル間で大きく異 なる結果となった。これらの結果から、フェライトコアでは低 い周波数で磁化の緩和が十分に進み励磁波形による損失差が なくなるが、センダスト圧粉コアでは磁化緩和に時間がかかる ため低い周波数でも損失差がみられていると考えられる。



Fig.5 (a) Trapezoidal current waveform for measuring magnetic relaxation. (b) Measurement results of magnetic relaxation.

謝辞

センダスト圧粉コアは(株)トーキン様より提供頂いた。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。

- 1) Bertotti: "Hysteresis in Magnetism," Academic Press (2008).
- 2) D. Hou, M. Mu, F. C. Lee, and Q. Li: IEEE Trans. Power Electron., 32, 2987 (2017).
- 3) J. Mühlethaler, J. Biela, J. W. Walter, and A. Ecklebe: *IEEE Trans. Power Electron.*, 27, 964 (2012).

PWM インバータ用 AC フィルタインダクタにおける

損失最小設計時の励磁条件検証

山口 太勢、松盛 裕明 (名古屋工業大学)

Operating conditions for minimized loss design of AC filter inductors used in PWM inverters. T. Yamaguchi, and H. Matsumori (Nagoya Institute of Technology)

はじめに

ICT 技術の需要はクラウドや AI の発展に伴い急増しており、データセンタの消費電力削減が急務となっている。データセンタ向けの電力変換器は従来の Si デバイスから SiC や GaN といったワイドギャップ半導体デバイスへの置き換えにより、効率の向上と体積の削減が実現されてきた。しかし、データセンタ向けのなどに代表される電力変換器の実動作状態においては、損失の大部分を占めるのが磁性体部品であることが報告されている¹⁾。本研究では無停電電源装置にも使用される PWM インバータ用 AC フィルタインダクタについて損失が最小となる設計をセンダストや鉄粉といった様々な磁性体材料に対して行い、このときの磁性体の励磁条件について検討をしたので報告を行う。

研究目的および手法

磁性部品の設計においては、一般的に鉄損と銅損の割合 が1:1となる点が経験則として最適とされている。しか し、PWM インバータ用の AC フィルタインダクタの場 合、後述するが、鉄損には出力電流の正弦波(メジャール ープ)と半導体のスイッチング成分(マイナーループ)に 起因するものが含まれている。特にマイナーループに起因 する鉄損は電力変換器の動作条件やインダクタの設計(磁 性体材料・巻数・コア体積)により複雑に変化する。その ため、経験則である銅損と鉄損の割合が1:1となる点が必 ずしも最適でないことが予想される。また、マイナールー プに起因する鉄損については磁性材料メーカからのデータ 提供がないため、正確な鉄損予測が困難であった。ただ し、先行研究により、マイナーループに起因する鉄損はロ スマップ2)の使用により計算可能になった。本研究では AC フィルタインダクタの損失(鉄損・銅損の合計)が最 小となる設計をセンダストや鉄粉材料といった様々な磁性 体材料に対して行う。PWM インバータの仕様は Fig.1 およ び Table 1 に記載する。





Input voltage V_{in}	DC 200 V
Output power Pout	350 W
Output frequency f_{out}	50 Hz
Switching frequency f_{sw}	20 kHz
Modulation rate m	0.707
AC filter inductance L	1 mH
AC filter capacitance C	10 µF
Output resistance R	28.5 Ω

AC フィルタインダクタの最適設計結果

Fig.1に示す単相 PWM インバータにおいて、磁性体材

料(材料組成・透磁率)とコア体積を変更し損失が最小となる設計を行った結果の一例を Fig. 2 に示す。 BH 波形にはマイナーループが含んでいることがわかる。インダクタの損失と体積のバランスが最も良いコ アをベストケース、検討対象のコアにおいてインダクタ損失および体積が最大のコアをそれぞれワーストケ ース(1)および(2)とする。ベストケースと2つのワーストケースを比較すると、ベストケースのインダ クタ損失はワーストケース(1)よりも55.7%(2.37W)、体積はワーストケース(2)よりも69.3%(35.9 cm³)小さいことが分かる。磁性体材料の適切な選択によりインダクタ損失と体積を大幅に削減できることが示されている。また、ベストケースにおける損失割合はほぼ均等になっているのに対し、ワーストケース(2)のように体積が大きくても低損失な設計では損失割合が異なる結果も得られている。さらに、BH曲線に注目すると全てのインダクタは飽和磁束密度に対して50%以下の領域を利用している。PWMインバータ用ACフィルタインダクタのマイナーループ鉄損はインバータの励磁条件によって複雑に変化するので一概には言えないが、少なくとも今回のPWMインバータの動作条件では、ACフィルタインダクタの設計において飽和磁束密度から十分に余裕を持たせた領域で動作させればインダクタ損失が低減する。



Fig. 2 Example of optimal design results for AC filter inductor

むすび

本研究では、単相 PWM インバータ励磁下における AC フィルタインダクタついて、センダストや鉄粉と いった様々な磁性体材料に対してインダクタ損失が最小となる設計を行い、設計したインダクタの中でイン ダクタ損失と体積のバランスが最適な条件を抽出した。材料の違いにより損失は最大 55.7%、体積は最大 69.3%の違いがあり、適切な磁性体材料の選定がACフィルタインダクタの設計に重要であることがわかっ た。さらに、各種材料の AC フィルタインダクタの動作点を確認したところ、すべてのインダクタにおい て、飽和磁束密度に対して 50%以下の領域で動作していた。PWM インバータ用 AC フィルタインダクタの マイナーループ鉄損はインバータの励磁条件によって複雑に変化するので、一概には言えないが、今回の条 件に限っては磁性体を飽和磁束密度に対して低い領域で動作させれば、インダクタ全体で低損失となる結果 が得られた。今回の様に電力変換器を指定し動作条件が決まっていれば、アプリケーション毎の磁性体材料 の開発方向を示すことは可能である。

- Jonathan G. Koomey, "GROWTH IN DATA CENTER ELECTRICITY USE 2005 TO 2010 Analytics Press", Analytics Press, Aug.2011
- Hiroaki Matsumori, Taisei Yamaguchi, Toshihisa Shimizu, Takashi Kosaka, Nobuyuki Matsui; Iron loss evaluation method for SiFe sheet material under PWM inverter excitation. AIP Advances 1 February 2023; 13 (2): 025302. https://doi.org/10.1063/9.0000537

金属磁性コアにおけるインピーダンス透磁率の周波数依存性

富田祐也、高林宏之、入山恭彦 (大同特殊鋼株式会社) Frequency dependence of impedance permeability in magnetic metal core Y. Tomita, H. Takabayashi, T. Iriyama

(Daido Steel Co., Ltd.)

<u>背景・目的</u>

インダクタやチョークコイルに用いる磁性コアにおいては kHz 帯でのインピーダンス透磁率µrが重要な特性指標となるが、その磁化機構には不明な点が多い。本研究では、1kHz-1MHz における磁化機構を明らかにするため、µrの周波数依存性について磁壁の運動方程式に基づいた解析を実施し、実測値と比較した。

<u>実験方法及び解析方法</u>

単ロール超急冷法により得られた厚み約 20 µm の Fe 基金属急冷薄帯を巻回し外径 21.5 mm、内径 20 mm、 高さ 5 mm のトロイダルコアを作製し、真空雰囲気下、843 K で 1.8 ks 保持したコアを供した。 μ_r はキーサイ ト製インピーダンスアナライザーE4990A により磁場強度 $H_m = 0.05$ A/m の条件で測定した。磁壁枚数の周波 数特性は岩崎通信機製交流 BH アナライザーSY8218 により測定した 2 次コイル電圧 V_m 及び保磁力 H_c の周波 数特性を基に Sakaki の提案した手法¹⁾ により推定した。

透磁率解析には磁壁の運動方程式より得られる磁壁緩和の式(1)を用いた。式(1)における f_r は緩和周波数と呼ばれ、磁壁枚数nに比例する定数である。(i) 磁壁枚数nが一定であるという仮定の下で、 f_r は μ "のピーク 周波数 f_p と一致するため、 $f_r = f_p$ とした。ところが、磁壁枚数nの周波数特性は Haller²⁾ や Sakaki¹⁾によって $f^{1/2}$ に比例することが報告されている。そこで(ii) 磁壁枚数nの周波数依存性を考慮して修正した式(3)によ る計算も実施した。

$$\mu_r = \mu_{DC} \cdot \frac{1}{\sqrt{1 + (f/f_r)^2}} \qquad \cdots \qquad (1) \qquad \mu_r = \mu_{DC} \cdot \frac{1}{\sqrt{1 + (f/f_p)^2}} \qquad \cdots (2) \qquad \mu_r = \mu_{DC} \cdot \frac{1}{\sqrt{1 + A(f/f_p)}} \qquad \cdots (3)$$

結果

Fig. 1 に相対磁壁枚数 $n(f)/n_{10 \text{ kHz}}$ の周波数依存性を示す。f > 100 kHzにおいて磁壁枚数 $n \text{ lt} f^{1/4}$ に比例して 増加することが確認された。またf < 10 kHz未満の周波数帯での磁壁枚数は装置制約により評価ができなか った。そこで上述の結果を基に (iii) f_r が $f^{1/4}$ に比例すると仮定して修正した式(4)についても計算を行い、実 測値との比較を行った。

$$\mu_r = \mu_{DC} \cdot \frac{1}{\sqrt{1 + A(f/f_p)^{2/2}}} \qquad \dots (4)$$

Fig. 2 に μ_r の実測値及び式(2)、(3)、(4)による計算値を示す。式中 μ_{DC} 及び f_p にはそれぞれ 100 Hz における μ_r の実測値 $\mu_{r, 100 Hz}$ = 76,000 及び f_p = 20.9 kHz を用いた。f < 10 kHz の低周波域では式(3)、f > 100 kHz の高周波域では式(4)が実験値をよく再現することが確認され、磁壁枚数 n は低周波域では $f^{1/2}$ に、高周波域では $f^{1/4}$ に比例して増加することが示唆された。

<u>参考文献</u>

- Y. Sakaki, *IEEE Trans. Magn.*, 16(4), 569-572, 1980
- K. Haller, J. J. Kramer, J. Appl. Phys., 41(3), 1036-1037, 1970





Fig. 2 Frequency dependence of permeability.

磁界中熱処理 Co-Pd 置換 FINEMET 組成薄帯の磁気特性評価

橋本竜大,寺西英治,襲田朗成,南澤俊孝,曽根原誠,佐藤敏郎 (信州大学)

Evaluation of Magnetic properties of Co-Pd Substituted FINEMET Composition Ribbon

After Magnetic Field Annealing

Tatsuhiro Hashimoto, Eiji Teranishi, Akinari Osoda, Toshitaka Minamisawa, Makoto Sonehara, Toshiro Sato

(Shinshu University)

1. はじめに

SiC や GaN などのワイドバンドギャップ半導体を用いたパワーデバイスによって電力変換装置の動作周波 数の高周波化が可能となり、トランスなどの磁気部品の小型化が期待されている.現在、絶縁型スイッチン グ電源用トランスには 0.5 T 程度の飽和磁束密度を持つ Mn-Zn 系フェライト磁心が多用されており、トラン スのさらなる小型化のためにはトランス用磁心のさらなる低鉄損化と高飽和磁束密度化が求められる.

筆者らのグループでは、1.2 T 級の飽和磁束密度と数 A/m の低保磁力を有する FINEMET 組成薄帯を出発 に、回転磁化過程の導入によって高周波で問題となるうず電流損失を低減するトランス用異方性薄帯の開発 を進めている⁽¹⁾.本稿では FINEMET 組成の Fe の一部を Co-Pd に置換し、磁界中熱処理による原子対の方向 性規則配列によって磁気異方性を誘導した Co-Pd 置換 FINEMET 組成薄帯の磁気特性評価の結果を示す.

2. 実験方法

FINEMET の Fe の一部を Pd: Co=1:3 の割合で置換し た Fe_{73. 5-x-y} Pd_x Co_y Si_{16. 5} B₆ Nb₃ Cu₁ (at.%) 組成のアモルファ ス薄帯を溶湯急冷装置を用いて作製した後, 0.2 T の直流磁 界,アルゴンガス雰囲気中 530°C-1h でナノ結晶化磁界中熱 処理して約 18 μ m 厚の Co-Pd 置換 FINEMET 組成薄帯を得 た.磁気特性評価として縦 Kerr 効果顕微鏡(ネオアーク, Neomagnesia)による磁区観察, インピーダンスアナライザ による透磁率の周波数特性, B-H アナライザ (岩通, SY-8218) による鉄損評価を行った.

3. 磁区観察

5 mm 角に切り出した薄帯小片に対して薄帯長手方向と 幅方向に磁界を加えてナノ結晶化熱処理した二つの試料を 用意し,それぞれに対し直交する二方向に磁界を印加して 磁区の変化を観察した.Fig.1(a)は薄帯長手方向に磁界を加 えてナノ結晶化熱処理した場合の直交する二方向の磁区画 像のコントラスト比と典型的な磁区画像を示すものであ る.ナノ結晶化熱処理の磁界印加方向に 180° 磁区に近い 磁区構造が観察され,それと直交する方向では明瞭な磁区 は観察されない.薄帯幅方向に磁界を加えてナノ結晶化熱 処理した場合も(Fig.1(b)) ほぼ同様であり,ナノ結晶化熱 処理時の磁界の印加方向が磁化容易軸,それと直交する方 向が磁化困難軸になっているものと推察される.

学術講演会では、薄帯幅方向に磁化容易軸を誘導した巻 磁心の透磁率や鉄損の測定結果についても報告する.

(1) T. Sato et al., INTERMAG2023, SF-05, Sendai, Japan, 2023.



(a) In case of annealing under applying magnetic field aligned in longitudinal direction of ribbon



 (b) In case of annealing under applying magnetic field aligned in width direction of ribbon
Fig.1 Magnetic domain observation.

FINEMET 板状粉末圧粉磁心における加圧方法による特性変化

藤田裕介,太田涼介,小川碧斗,曽根原誠,佐藤敏郎 (信州大学)

Characteristic Changes Deu to Pressing Method in FINEMET Plate-shape Powder Cores

Yusuke Fujita, Ryosuke Ota, Aoto Ogawa

Makoto Sonehara, Toshiro Sato

(Shinshu University)

<u>1. はじめに</u>

本研究は鉄系ナノ結晶粉末圧粉磁心のさらなる低保磁力化と,磁気 異方性を誘導してうず電流損失の低減に有効な回転磁化の利用が可 能となる圧粉磁心の実現を最終ゴールとして検討したものである.ア トマイズ法球形粉末に代えて,本研究ではアトマイズ粉末よりも低保 磁力が期待できるロール急冷薄帯を出発とする板状粉末を採用し,板 状粉末に対して面内異方性の誘導が可能となる板状粉末の水平配向 /垂直積層構造(Fig.1参照)の実現について検討した。



Fig. 1 Schematic cross-section of plateshape powder core with horizontally aligned and vertically stacked plate-shape powders.

異方性板状粉末圧粉磁心の前段階として,ナノ結晶化前のロール急冷

FINEMET 組成アモルファス薄帯を採用し, 脆化熱処理したアモルファス薄帯を振動ミル粉砕して得られる板 状粉末⁽¹⁾を用いた FINEMET 板状粉末圧粉磁心を作製した。ここでは FINEMET 板状粉末の水平配向/垂直 方向積層構造を実現する粉末加圧法として片軸プレス法と両軸プレス法について検討した結果を示す。

2. FINEMET 板状粉末圧粉磁心の作製方法

厚さ18 μm のロール急冷 FINEMET 組成アモルファス薄帯を400℃脆化熱処理した後、振動ミルで粉砕し、 100~150 μm フットプリントで分級した FINEMET アモルファス板状粉末を大気中 300℃・3 時間の熱酸化に よって絶縁被膜を形成した. FINEMET 板状粉末をエポキシバインダ造粒し、造粒後の粉末を片軸ならびに両 軸プレス法で加圧成形し、不活性ガス中でナノ結晶化熱処理を522℃15 分間行った. 高温ナノ結晶化熱処理 中にエポキシ樹脂が分解して生じる磁心内空隙を埋めるためにシリコ ーン樹脂で減圧含浸、硬化して圧粉磁心を得た.

3. 加圧方法による粉末の配向状態と磁心の特性変化

Fig.2 に片軸加圧した場合と両軸加圧した場合の圧粉磁心の断面を 示す.両軸加圧法はは金型ダイをフローティングさせて上下方向から 圧力を加えることで成形中の粉末の動きに応じてダイが上下に動き、 上下の密度差(圧力ムラ)を小さくできる.Fig.2に示すように,両軸 加圧した板状粉末圧粉磁心の方が板状粉末の水平配向と垂直積層が優 勢になっているものと考えられる.

さらに、造粒粉末の金型への投入の方法によっても粉末の配向、磁 心特性に影響を及ぼすことが明らかとなった。例えば、板状粉末を一 度に金型に投入して1回の加圧で成形する一括法と、粉末を複数回に 分けて金型に入れ、粉末を入れるたび加圧する分割法の2種類を検討 した。学術講演会では、上記2つの方法で作製した磁心の保磁力、飽 和磁化、透磁率、鉄損についても報告する。

(1) 長澤 永, 他, 電学研資, MAG-23-107, 2023 年 11 月.



(a) in case of using one side axis press



(b) in case of both side axes press Fig.2 Cross-section of FINEMET composition plate-shaped powder cores.

磁化過程に基づく鉄損要因解析と統計モデルの比較

○小野 暢久¹、上原 裕二²、大沼 智幸¹、谷口卓也¹、岡本 聡^{1,3,4}
(東北大多元研¹、磁気デバイス研究所²、東北大 CSIS³、NIMS⁴)

Relationship between iron loss analysis based on magnetization processes and statistic model

ONobuhisa Ono¹, Yuji Uehara², Tomoyuki Onuma¹, Takuya Taniguchi¹, Satoshi Okamoto^{1, 3, 4}

(IMRAM, Tohoku Univ.¹, Magnetic Device Laboratory², CSIS, Tohoku Univ.³, NIMS⁴)

はじめに

近年、パワーエレクロニクス素子の小型化・高効率化実現に向けて、高周波 帯域における磁性受動素子の低損失化への要求が高まっている。そのためには、 高周波領域における鉄損の物理的メカニズムを明らかにする必要がある。この 課題に対して、我々はセンダスト圧粉磁心に対して広帯域鉄損計測を行い、過 去に提案された磁化過程に基づく 2 種のモデル(磁化過程分離モデル[1]、実効 磁壁モデル[2])を用いて解析を行った。その結果、低周波帯域では磁壁移動が、 高周波帯域では磁化回転が主たる鉄損要因となっていることを明らかにした [3]。本発表では、本手法を磁気特性と電気特性が全く異なる他の磁性コアに展 開し、さらに過剰損の理論として広く用いられている Bertotti の統計モデル[4] による解析結果との相関を調査した結果について説明する。

実験方法

トロイダル形状(外径 13 mm、内径 8 mm、厚み 5 mm)のセンダスト圧粉コア (透磁率 μ_r = 30, 飽和磁東密度 B_s =1.0 T)、Mn-Zn フェライトコア(μ_r = 2,900, B_s = 0.51 T)、および FINEMET 巻回コア(μ_r = 50,000, B_s = 0.90 T)に対し、2 コイル法 及び共振法を用いて 10 Hz から 55 MHz の範囲での広帯域鉄損計測を行った。 そして、得られた鉄損データに対して磁化過程分離モデル、実効磁壁モデルお よび統計モデルを用いて解析を行い、各解析結果を比較した。

実験結果

各磁性素子において得られた一周期当たりの鉄損 W の測定結果と各解析結 果を Fig.1 に示す。磁化過程分離モデルによって得られた磁壁移動および磁化 回転による鉄損成分を黒色線と灰色線で、統計モデル解析によって得られた過 剰損とヒステリシス損の和を赤線で、AC 抵抗率測定から得られた古典渦電流 損を青線でそれぞれ表している。磁性コアに関係なく、低周波領域では磁壁移 動による損失が、高周波領域で磁化回転による損失が支配的になる一方で、磁 化過程の遷移周波数は磁性コアに大きく依存する結果となった。そして各モデ ル同士を比較することで、磁壁移動による損失はヒステリシス損および過剰損 に、磁化回転による損失は古典渦電流損に対応づけられることが分かった。

また、Fig.2 に実効磁壁モデル解析によって得られた、実効磁壁枚数を磁壁ダンピングで割った値 $n_{\text{eff}}\beta$ の周波数特性(丸マーク)と、統計モデル解析によって得られた、活性化 Magnetic Object(MO)の実効数 n'_{MO} の周波数特性(三角マーク)を示す。実効磁壁枚数は周波数とともに増加し、この挙動は統計モデルで概念的パラメータとして導入された活性化 MO の実効数とよく一致した。

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。

[1] C.Beatice, et al., J. Magn. Magn. Mater. 429, 129 (2017), [2] Y. Sakaki, IEEE Trans. Magn., 16, 569 (1980),

[3] N. Ono et.al., IEEE Trans. Magn., 59, 6301305 (2023). [4] G. Bertotti, J. Appl. Phys. 57, 2110 (1985).



Fig.1 Iron loss per cycle obtained by experiments (marks) and analysis (lines) of (a) Mn-Zn ferrite sintered, (b) FINEMET wound, and (c) Sendust powder cores.



Fig.2 Effective domain wall number over the domain wall damping n_{eff}/β (circle) and effective active MOs number n'_{MO} (triangle) of (a) Mn-Zn ferrite sintered, (b) FINEMET wound, and (c) Sendust powder cores for $B_{\text{m}} = 1 \text{ mT}$ (blue), 10 mT (red), and 100 mT (black) as a function of frequency.

Sinc パルスを用いた広帯域鉄損機構の調査

谷口卓也¹、上原裕二²、佐藤佑樹³、塚原宙¹、岡本聡^{1,4,5} (¹東北大、²磁気デバイス研究所、³青学大、⁴東北大 CSIS、⁵NIMS)

Mechanism of wide-band iron loss using Sinc pulse measurement

(Tohoku Univ., Magnetic Device Laboratory Ltd., Aoyama Gakuin Univ., Tohoku Univ. CSIS, NIMS)

背景・目的

パワーエレクトロニクス(パワエレ)における半導体技術は電力変換効率の向上を目指して近年躍進してい るが、2019年の Google Little Box Challenge で最先端サーバー用コンバータ回路として設計されたデバイスに おける全エネルギー損失の約40%が磁性受動素子に起因すると報告されているように[1]、磁性受動素子が次 世代パワエレ技術開発のボトルネックとなっている。磁性受動素子の開発が遅れている原因の一つは、40年 近く前の鉄損の物理的理解を現在のパワエレ回路駆動周波数帯である kHz – MHz 帯で用いていることにあ り、鉄損の物理的機構を見直し理論を再構築することが次世代磁性受動素子開発に求められている。

本研究では、インバータ回路の一種であるパルス幅変調(PWM)に対する鉄損機構を調査するため、Sinc パルスを用いた鉄損測定手法の開発に取り組む。Sinc パルスは広帯域の交流磁場を混合した信号であるため、 多様なパルス幅が入力される PWM における鉄損測定およびその物理的機構の理解に適した入力信号である と考えた。

<u>測定手法</u>

Ni-Zn フェライトとセンダストの2種類のトロイダルコアを用意し、Inductive Cancellation 法によって鉄損 測定を行った [2]。Inductive Cancellation 法の特徴は、一次コイルへの入力電流(*I*_{in})と二次コイルからの出力電 圧(*V*_{out})の位相差を小さくすることで測定誤差を低減できることであり、本実験では2kHzの正弦波電流を用 いて位相差が0となるように校正した。同測定回路に、*I*_{in}として Sinc パルスを0.5 ミリ秒間印加し、その際 の*V*_{out}をオシロスコープで測定した。

測定結果

Sinc パルスの帯域幅を 40 kHz とした時の I_{in} および V_{out} を Fig. 1 (a), (b)に示す。 I_{in} はフェライトとセンダス ト共にきれいな Sinc 波形をとっており、これは Fig. 1 (c)に示すフーリエ変換後の周波数依存性が帯域範囲内 において一定値を取っていることからも判る。その一方で、 V_{out} は Sinc 波形をとらず、周波数に依存した振 幅を有していることが判る(Fig.1 (d))。加えて、 I_{in} およびの V_{out} の位相 (θ 、 θ_{t})の各周波数成分を Fig.1 (e)お よび(f)に示す。 θ は設定された帯域幅(< 40 kHz) においてほぼゼロ値を取るのに対して、 θ_{t} は周波数に大き く依存し、その依存性も物質によって異なることが判る。本講演では、Sinc パルスの帯域幅を変化させた結 果や正弦波実験の結果、モデル計算結果を含めて混合波における磁化応答機構を議論する。

<u>謝辞</u>

センダスト圧粉コアは(株)トーキンより提供頂いた。また、本研究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 の支援の下で行われた。

27pD - 9



Fig.1 (a, b) Measured (a) I_{in} and (b) V_{out} . (c-e) Fourier transformed results of the measured I_{in} and V_{out} . Black and red lines indicate the results of Sendust and Ni-Zn ferrite, respectively.

- 1) D. Neumayr et al., CPSS Trans. Power Electro. Appl. 5, 251 (2020).
- 2) D. Hou, M. Mu, F. C. Lee, Q. Li, IEEE Trans. Power Electron. 32, 2987 (2017).

各種磁性コアの直流バイアス特性と B-H カーブ形状の相関

○大沼智幸¹,小野暢久¹,岡本聡^{1,2} 東北大多元研¹,東北大 CSIS²

Correlation between DC bias characteristics and *B-H* curve shape of various magnetic cores

○Tomoyuki Onuma¹, Nobuhisa Ono¹, Satoshi Okamoto^{1, 2}

IMRAM, Tohoku Univ.¹, CSIS, Tohoku Univ.²

はじめに

近年、パワーエレクトロニクス用電力変換器に使用されるトランスやインダ クタなどの磁性デバイスの損失低減が求められており、特に損失の多くを占め る鉄損のメカニズム解明が待たれている。インダクタは直流バイアス磁界を印 加して使用されることが多く、バイアス印加時の鉄損の挙動は重要な性能指標 である。我々はバイアス印加時の鉄損挙動を鉄損測定時の B-H カーブの形状 の変化と関連付けて考察し、主成分分析 (PCA)を用いることで、B-H カーブ の非線形な形状の変化を定量的に捉える手法の検討を進めてきた¹⁾。本研究で は材料ならびに比透磁率 µrの異なる各種磁性コアについて鉄損のバイアス特 性と B-H カーブ形状の関係を調べ、バイアス印加時の鉄損挙動のメカニズム を考察した。

(a)

200 PC1 p = 0.9920

-200

10

-10

-20<u>L.</u> -0.02

H(A/m)

-0.02

(b)

B(T)

PC2 p = 0.0079

0.00

B(T)

0.02

H(A/m)



Fig. 1. Bias dependence of iron loss of Mo permalloy with different μ_{r} .

 $H_{\rm p}(kA/m)$

26

1

W(0) W(H_B)

0.42

0.39

0.36

- 0.32

0.29

0.20

0.22

2

Wmax

 $\triangleleft W(0)$

Wmin

 (J/m^3) (%)

実験方法および試料

鉄損は2コイル法で測定し、直流バイ アス磁界は3次コイルを用いて印加した。 鉄損測定時の磁束密度 ΔB は40 mT,周 波数fは100 kHzに固定した。試料とし て Magnetics 社製センダスト(Kool Mµ®)、 Fe-Si (XFlux®)、Moパーマロイ (MPP) 圧粉コアおよびトーキン製 MnZn フェラ イトコアの材料の異なる4種類の磁性 コアならびに μ_r の異なる5種類の Moパ ーマロイ (MPP) 圧粉コアを用いた。

結果

図1に様々な μ rをもつMoパーマロイ 圧粉コアの鉄損のバイアス特性を示す。 μ r = 26の試料では鉄損はバイアスに対 Fig. 2. PCA results for magnetic score with different magnetic permeability. (a) Principal component PC1, (b) Principal component PC2, (c) Principal component score of PC1 and PC2. Note: Wmin = 80, Wmax = 120 at μ_r = 26, 60, 125 and 300. Wmax = 500 at μ_r = 550 (Only Wmax is defined).

0

Component score of PC1

(c)

3

2

0

300 125

-1

Component score of PC2

し単調に減少する。μrが大きくなるにつれて鉄損のバイアス特性は増加傾向に転じる。μr = 550の試料では鉄損はバイア スに対し大幅に増加する。図2に PCA による B-H カーブ形状解析の結果を示す。第1主成分 PC1 は B-H カーブの傾き、 第2主成分 PC2 は B-H カーブの曲率の変化が特徴量として抽出された。PC1、PC2 それぞれの主成分スコアの分布から、 磁性コアのμrの違いが B-H カーブの傾き(実効透磁率)や曲率に影響を及ぼし、バイアス印加時の鉄損挙動を変化させ ていることが分かった。

<u>謝辞</u>

本研究は文部科学省 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 およびデータ創出・活用型 マテリアル研究開発プロジェクト事業(データ創出・活用型磁性材料研究拠点)JPMXP1122715503 の助成を受けたもので す。また本研究では PCA ツールとしてトヨタ自動車㈱の材料解析クラウドサービス WAVEBASE を使用しました。

参考文献

1) T. Onuma, Z. Li and S. Okamoto, IEEE Trans. Magn., doi: 10.1109/TMAG.2023.3281548.

FeCoNi 系単結晶薄膜における結晶磁気異方性定数 K1の組成依存性

○上野 智也、中野 貴文、角田 匡清、大兼 幹彦

(東北大学大学院工学研究科〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-05)

Composition dependence of magneto-crystalline anisotropy constant K_1 in FeCoNi-alloy epitaxial thin films

T. Ueno, T. Nakano, M. Tsunoda, and M. Oogane

(Graduate School of Engineering, Tohoku University)

1. はじめに 磁気トンネル接合を用いた磁気センサの感度向上のためには結晶磁気異方性定数(K_1)が小さい軟磁性材料が求められる。しかし、 K_1 が小さい材料を実験的に探索するための指針は必ずしも明らかでない。例えば、 K_1 がともに負のNiとCoを合金化するとNi₈₀Co₂₀付近の組成において K_1 >0となり^[1]、また、 K_1 >0のNiCo合金に K_1 >0のFeを加えると一部組成において K_1 <0となる^[2]。これらの K_1 の符号が変わる領域で K_1 =0が実現可能と考えられるが、それがどのような理由で実現するかは必ずしも明らかでない。本研究は、MgO(001)基板上に単結晶FeCoNi系合金薄膜を作製し、その K_1 の組成依存性の起源を明らかにすることを目的としている。本発表では、FeCoNi系(NiCo2元、FeCoNi3元)合金薄膜に着目し、 K_1 の組成依存性について調べた結果を報告する。

2. 実験方法 試料の作製には RF マグネトロンスパッタリング装置を用いた。Ni、Co、Fe およびその合

金を同時スパッタすることによって 50 nm の膜厚の FeCoNi 系合金薄膜を成膜した。組成は K_1 の符号が変化する範囲を 成膜した。結晶性向上のため 400 °C, 1 時間の熱処理をした。 その後、酸化防止膜として Cr を 1 nm 成膜した。結晶性の評 価には X 線回折装置、磁気特性の評価には振動試料型磁力計 を用いた。 K_1 の評価には面内強磁性共鳴(IP-FMR)を用い た。試料面内で印加磁場を回転させ共鳴磁場の面内角度依存 性を解析することによって K_1 を算出した。

3.結果 Ni 薄膜における共鳴磁場 (H_R)の磁場印加角度 (ϕ_H) 依存性を例として図 1 に示す。立方晶の 4 回対称性を反映し た結果が得られ、フィッティングにより K_1 を評価した。 NiCo 合金薄膜では、先行研究と同様に NisoCo₂₀の組成付近 で K_1 が正となる振る舞いが見られた (図 2)。当日は FeCoNi 系単結晶合金薄膜の K_1 の組成依存性のほかに磁歪、 格子ひずみの K_1 への影響についても発表する予定である。 謝辞 本研究は、SIP プロジェクト、SCOPE プロジェクト、 X-nics プロジェクト、東北大学先端スピントロニクス研究開 発センター、および、東北大学国際集積エレクトロニクス研 究開発センターの支援を受けて行われた。

<u>参考文献</u> [1] S. J. Xu *et.al.* Phys. Rev. B **100** 024403 (2019). [2] L. W. McKeehan, Phys. Rev. **51** 136-139 (1937). [3] 近角 聰信 著 「強磁性体の物理(下)」.



Fig1: In-plane angular dependence of $H_{\rm R}$ in Ni thin film



Fig2: Composition dependence of K_1 in NiCo alloy thin films

カット面の異なる LiNbO3 単結晶基板にスパッタ成膜した Co薄膜の面内一軸磁気異方性の評価

鹿野早希¹,阿部拓真¹,小野頌太²,島村一利³,山口明啓⁴,嶋睦宏¹,山田啓介¹ (岐阜大院自¹,室蘭工大²,金沢大³,東洋大⁴)

Evaluation of in-plane uniaxial magnetic anisotropy in Co thin films sputtered on

LiNbO₃ single crystal substrates with various cut planes

S. Shikano¹, T. Abe¹, S. Ono², K. Shimamura³, A. Yamaguchi⁴, M. Shima¹, and K. Yamada¹ (Gifu Univ.¹, Muroran Inst. Tech.², Kanazawa Univ.³, Toyo Univ⁴)

【緒言】近年、機械的ひずみを加えることで二次元材料の特性を変化 させることを誘発し、電気的または光学的な特性の変化をもたらす 「Straintronics (歪み電子工学)」の研究が盛んに行われている¹¹¹。磁 性材料において、このような機械的ひずみによる磁気特性の変化は

「磁歪」としてよく知られている。以前の報告において 128°Y-cut LiNbO₃ (LNO) 基板上に Co 薄膜をスパッタ成膜すると、強磁性薄膜の 面内方向に大きな面内一軸磁気異方性 (K_u) が誘起されることが確認 された ^[2,3]。これは、LNO 単結晶基板のカット面が Co 薄膜内に作り 出す引張応力によって、hcp-Co (112)配向することが関係している。 そこで本研究では、LNO 単結晶基板のカット面に注目し、64°&41° Y-cut LNO 基板、42°Y-cut LiTaO₃ (LTO)基板、112.2°X-cut LTO 基板 上にスパッタ成膜した Co 薄膜の膜厚(t)と K_u の相関を調べることを目 的とした。

【実験方法】マグネトロンスパッタリングを使用して、1 cm×1 cm のそれぞれの LNO 基板、LTO 基板、Si 基板上に、ベース真空度 4.5 ×10⁴ Pa、成膜速度 2.0×10⁻¹ nm/s の条件下で膜厚(*t*) 6.2~25 nm の Co 薄膜試料を作製した。VSM により磁気特性を調べ、XRD により結晶 構造を評価した。

【結果と考察】図1にt=8.5 nm, As depo.(~30 °C) の 64°Y-cut LNO 基板/Coにおける磁化曲線の面内磁場の印加方向(χ)依存性を示した。 64°Y-cut LNO 基板上の(01.2)が容易軸となり、Co薄膜の面内方向に 異方性が誘起されていることが確認できた。図2は図1の磁化曲線の 解析結果から求めた K_u の膜厚依存性について示した結果である。膜 厚が 5.0~10 nm の間で K_u が最大値をとることが確認された。図3に 64°Y-cut LNO 基板上の Co薄膜(t=7.0 nm)における XRD の測定結果 を示す。hcp-Co (002)に配向した薄膜が成膜されていることが分かっ た。この配向は、64°Y-cut LNO 基板のカット面に依存した格子歪み が起因していると考えられる。hcp-Co (002)配向によって、大きな K_u が得られた結果を得ることができた。

参考文献

[1] W. Hou et. al., Nat. Nano-technol. 14, 668-673 (2019).

[2] S. Shikano et. al., Intermag 2023, XPA-03.

[3] 鹿野早希,他 第47回 日本磁気学会学術講演会,27pC-16 (2023).



Fig. 1 Magnetic hysteresis loops of Co film with t = 8.5 nm on 64° Y-cut LNO substrate at various the applied magnetic field directions χ .



Fig. 3 XRD patterns for Co films with t = 7.0 nm on 64° Y-cut LNO sub. Green, red and blue lines are the results of Si substrate, LNO sub. (X-ray \perp OF direction), LNO sub. (X-ray//OF direction).

MgO(111)基板上にエピタキシャル成長させた ε-Fe₂₋₃N 単結晶薄膜の構造と磁気特性

今村光佑・大竹 充 (横浜国大)

Structural and Magnetic Properties of Single-Crystal &-Fe2-3N Thin Films Epitaxially Grown on MgO(111) Substrates

Kosuke Imamura and Mitsuru Ohtake

(Yokohama Nat. Univ.)

はじめに 鉄を窒化させると、窒素(N)が鉄(Fe)の結晶中に一定程度の秩序をもって入り、格子が膨張した 侵入型化合物相を形成する. 強磁性相としては, α'-(Fe,N), α"-Fe₁₆N₂, γ'-Fe₄N, ε-Fe₂₋₃N が知られており, α"相 では大きな飽和磁化¹⁾, γ'相では負に大きいスピン偏極率^{2,3)}や大きな磁歪⁴⁾,といったユニークな特性が発現す る. 一方, ε相に関する研究は多くないのが現状であり, 把握できていない特性が存在することが考えられる. また,窒化鉄の特性は同じ結晶相でも,Νの固溶量の差異により繊細に変化することが α"やγ相の場合で報告 されている.このような材料の基本特性を調べるためには、単結晶試料の活用が有効であるが、バルクではそ の形成,および,N 組成を系統的に変化させた試料の作製が容易ではない.そこで,エピタキシャル単結晶薄 膜の活用が候補となる.昨年度の学術講演会では ⁵,反応性マグネトロン・スパッタリング法により N₂分圧比 を変えることにより MgO(001)基板上に Fe-N 膜を形成し、N2分圧比の増加に伴い、結晶相が $\alpha \rightarrow \gamma' \rightarrow \gamma''$ と 変化し, ε相は形成されないことが分かった.これは, MgO(001)表面と ε相の格子整合度が悪く,対称性も異 なるためであった.そこで、本研究では、MgO(111)基板上に膜形成を行うことにより、ε相の形成を試みた. そして、その詳細な構造と磁気特性を調べた.

実験方法 製膜には超高真空 RF マグネトロン・スパッタリング装置を用いた. 全圧を 0.67 Pa に調整した Ar と N2の混合ガスの下で N2分圧比を 0~100%の間で変化させ、Fe ターゲットをスパッタすることにより、400 ℃ に加熱した MgO(111) 基板上に, Fe-N 膜を形成した. このとき, 投入電力を 62 W, スパッタ時間を 2000 s で一 定とした.構造解析には RHEED, XRD, XPS, AFM, 磁気特性測定には VSM, RSM を用いた.

実験結果 N₂分圧比 0~100%の条件下で形成した膜に対して観察した RHEED パターンを Fig. 1(a)に,また, 面外および面内の XRD パターンを, Fig. 2(a)および(b)にそれぞれ示す. いずれの N2 分圧比で形成した膜にお いても, RHEED パターンにスポットおよびストリーク状の反射が認められ, エピタキシャル成長していること を確認できる. XRD パターンも合わせて解析することで, № 分圧比に応じて成長した結晶と基板との方位関係 を決定した. N₂分圧比 0%では, α-Fe(110)結晶が, MgO(111)面に対して 3 組の Nishiyama-Wassermann (NW) および 6 組の Kurdjumov-Sachs (KS)の関係をとり複数バリアントで成長している. 2.5%では、同様の α(110) 結晶に加え, γ'(111)結晶が γ'(111)[110] || MgO(111)[110] (A) と γ'(111)[110] || MgO(111)[110] (B) の方位関係を もつ双晶として成長している.5%まで増加すると、γ(111)結晶に加え,ε-Fe2-3N(0001)結晶も、ε(0001)[1100] ||

MgO(111)[110]の方位関係で, c 面配 向して成長している. 10~100%まで の広い範囲では、単相の ε-Fe₂₋ 3N(0001)単結晶が形成されている.ま た, N₂分圧比の増加とともに面内 XRD パターンの 3300 反射が低角側 にシフトする. ε相の固溶範囲が広い ことを反映しての,面内格子定数が増 大していることを示唆している.当 日は, ε相の構造と磁気特性の関係に ついても議論する.

- 1) Y. Sugita et al.: J. Appl. Phys., 70, 5977 (1991).
- 2) A. Narahara et al.: Appl. Phys. Lett., A. Narahara et al.: Appl. Phys. Lett., 94, 202502 (2009).
 S. Isogami et al.: Adv. Electron. Mater., 9 2200515 (2022).
 Y. Maeda et al.: J. Magn. Magn. Mater., 585, 170942 (2023).
 今村光佑ら: 第 47 回日本磁気学 会学術講演概要集, 27pC-2 (2023).
 H. A. Wriedt et al.: Bull. Alloy Phase Diagr. 8 355 (1987).

- Diagr., 8, 355 (1987).



Fig. 1 RHEED patterns of Fe-N films prepared on MgO(111) substrates.

pressure ratio, PPR_{N2}

partial

ź

Fig. 2 (a-1)–(e-1) Out-of-plane and (a-2)–(e-2) in-plane XRD patterns measured for Fe-N films prepared on MgO(111) substrates.

Y 添加した Fe-Ga 薄膜の構造と磁気特性に関する検討

阿加 賽見¹, 西名 竜哉¹, 宮崎 孝道², 室賀 翔¹, 遠藤 恭^{1,3} (¹東北大院工学研究科, ²東北大工学部, ³東北大先端スピントロニクス研究開発センター) Influence of Yttrium addition on structural and magnetic properties of (Fe₇₁Ga₂₉)_{1-x}Y_x thin film Saijian Ajia¹, Ryuya Nishina¹, Takamichi Miyazaki², Sho Muroga¹, Yasushi Endo^{1,3} (¹Grad. Sch. Eng. Tohoku Univ., ²Sch. Eng. Tohoku Univ., ³CSIS, Tohoku Univ.)

はじめに Fe-Ga 合金は巨大な磁歪と比較的高い飽和磁化を有し、Fe-Ga バルク合金は磁歪アクチュエータや 変換機器への応用として盛んに行われてきた。一方、Fe-Ga 薄膜合金の磁歪特性と高周波磁気特性の関係か ら、高速・エネルギー高効率な高周波磁気デバイスへの応用が期待されている¹⁾。これまでに我々のグループ を含め、Fe-Ga 薄膜に関する知見が報告され²⁻⁴⁾、高周波磁気デバイスへ応用するには、Fe-Ga 薄膜の軟磁性 化とダンピング定数の改善が必要であることが示された。そこで、我々は第三元素として B を添加すること によって、保磁力とダンピング定数をともに減少させることに成功した⁵⁾。一方、第3元素として希土類元 素を添加した(Fe₇₅Ga₂₅)1-x</sub> La_x 薄膜の動的磁気特性が、La 添加によって改善傾向を示した⁶⁾。本研究では、新 たに希土類元素である Y を添加した(Fe₇₁Ga₂₉)1-x</sub>Y_x 薄膜の構造と磁気特性について検討し、異なる希土類元素 の添加効果について議論する。

実験方法 50 nm 厚の(Fe71Ga29)1-xYx (x = 1.5-10.5)薄膜をガラス基板上に DC マグネトロンスパッタリング法 を用いて製膜した。各薄膜の Y 組成分析は EDX を用いた。作製した薄膜における結晶構造は XRD を、静的 磁気特性は VSM と光てこ法を、また高周波磁気特性はブロード

バンド FMR(B-FMR)測定法を用いて評価した。

結果および考察 Fig. 1 は(Fer1Ga29)1-xYx 薄膜における静的磁気 特性を表す保磁力 Hc と動的磁気特性を表すダンピング定数 α の Y 組成依存性である。Y 添加前 (x=0 at.%) の Fer1Ga29 多結晶薄 膜は Hc = 59.3 Oe (Hex(0°)), α = 0.0228 であった。膜面に対する印 加した外部磁場の方向に依存せず、Hc は Y 添加量にしたがっ て、x = 9.9 at.%において最小値の 17.3 Oe (Hex(0°))になり、その 後再び増加した。一方、ダンピング定数 α は Y 組成の増加とと もに増加し、x = 9.9 at.%に最大となり、その後は減少した。Hc 低 減の原因は、飽和磁歪が Y 添加量増加によって減少したことに 加え、磁気的構造の変化と結晶化度合に起因しているものと考 えられる。一方、 α に関しては、Y 添加量増加によって磁気的な 不均一性が生じたことが α に影響を与えていると推察できる。 この結果から Y 添加は Fer1Ga29 合金薄膜の軟磁気特性を改善で きることを表している。一方で、高周波磁気特性の改善は見られ



Fig. 1(a) the coercivity $H_{\rm C}$ in two directions of external filed $H_{\rm ex}$ applied parallel to the film plane, and (b) the damping constant, depending on the Y composition of the 50 nm-(Fe₇₁Ga₂₉)_{1-x}Y_x thin films.

ないことがわかった。なお、当日は先行研究であるLaを添加した(Fe75Ga25)1-xLax薄膜の特性と比較し、希土 類元素の添加効果について議論する。

謝辞 本研究の一部は文部科学省次世代 X-nics 半導体創生拠点形成事業 JP011438 の助成を受けた。また、本研究の一部は、東北大学 CSIS、東北大学 CSRN、東北大学 CIES および ASRC の支援のもとに行われた。

<u>参考文献</u> 1) B. K. Kuanr et al., J. Appl. Phys., **115**, 17C112 (2014). 2) W. Jahjah, *et.al.*, *Phys. Rev. Appl.*, **12**, 024020 (2019). 3) Y. Kawabe, *et.al.*, T. Magn. Soc. Jpn., (Special Issues) **3**, 34 (2019). 4) Y. Endo, *et.al.*, Materia Japan, **59**, 26 (2020) (in Japanese). 5) S. Muramatsu, *et.al.*, AIP Advances, **11**, 025114 (2021). 6) R. Nishina, *et.al.*, T. Magn. Soc. Jpn., (Special Issues) **8**, 10 (2024).

鉄酸フッ化ビスマス単結晶薄膜の作製と 室温マルチフェロイック特性

近松彰、上垣外明子、佐野瑞歩、¹重松圭、²出村郷志、³片山 司、⁴廣瀬靖 (お茶大理、¹東工大フロンティア研、²日大理工、³北大電子研、⁴都立大理)

> Preparation of bismuth oxyfluoride single crystal thin films and their room temperature multiferroic properties

A. Chikamatsu, A. Kamigaito, M. Sano, ¹K. Shigematsu, ²S. Demura, ³T. Katayama, ⁴Y. Hirose (Ochanomizu Univ., ¹MSL, Tokyo Tech., ²CST, Nihon Univ., ³Hokkaido Univ., ⁴Tokyo Metropolitan Univ.)

<u>はじめに</u>

近年、極性正方晶歪み構造を持つ鉄酸フッ化物の多結晶体が合成され、酸素の一部をフッ素に置換した酸フッ化物でもマルチフェロイック特性を示す可能性が示唆された[1,2]。酸フッ化物は、酸素とフッ素2種類のアニオンがカチオンに配位するため、酸化物単体と比べて局所的な対称性が低下する。すなわち、強誘電性に必要な極性構造を取りやすくなる。また、フッ化により電子状態が変化し、相転移温度やバンドギャップも変化する。このように、酸フッ化物は室温マルチフェロイック特性のポテンシャルを秘めているが、誘電特性の測定に耐えうるリークのない酸フッ化物の単結晶あるいは単結晶薄膜が得られていなかったため、実証には至っていなかった。本研究では、トポケミカルフッ化反応により Bi_{0.8}Ba_{0.2}FeO_{2.9.4}F_y単結晶薄膜を作製し、作製した単結晶薄膜の室温マルチフェロイック特性の検証を行った。

<u>実験方法</u>

Bi_{0.8}Ba_{0.2}FeO_{2.9-x}Fy単結晶薄膜は、まず前駆体である Bi_{0.8}Ba_{0.2}FeO_{2.9}単結晶薄膜を Nb0.5%ドープ SrTiO₃ (100) 基板上にパルスレーザー堆積法で作製し、これをポリフッ化ビニリデンとともに Ar 雰囲気の下 200 ℃およ び 350 ℃、12 時間トポケミカル反応させて作製した。作製した薄膜の結晶構造は X 線回折(XRD)、化学組成 は X 線光電子分光(XPS)、エネルギー分散型 X 線分析(EDS)、強誘電性は強誘電テスター、磁気特性は超伝導 量子干渉磁束計によりそれぞれ測定した。

<u>結果と考察</u>

XRD 測定から、 $Bi_{0.8}Ba_{0.2}FeO_{2.9}$ 薄膜を 200 ℃でフッ化した薄膜はペロブスカイト構造を保ったまま c 軸長 が伸長すること、350 ℃では c 軸長が大きく伸長し蛍石構造になることが明らかになった。XPS および EDS

の結果から、200 ℃でフッ化した薄膜の化学組成は Bi_{0.8}Ba_{0.2}FeO_{2.8}F_{0.2}、 350 ℃でフッ化した薄膜は Bi_{0.8}Ba_{0.2}FeO_{1.6}F_{2.1}と同定された。

図1に20 kHz、300 K で測定した $Bi_{0.8}Ba_{0.2}FeO_{2.8}F_{0.2}$ 薄膜の分極-電場(P-E)曲線および電流-電場(I-E)曲 線を示す。薄膜が室温で残留分極~9 μ C/cm² の強誘電 性を示すことが明らかになった。さらに、300 K での 磁化率測定において強磁性を示すヒステリシスが観 測された。これらの結果から、 $Bi_{0.8}Ba_{0.2}FeO_{2.8}F_{0.2}$ が室 温マルチフェロイック特性をもつことが示された。

<u>参考文献</u>

- 1) O. Clemens *et al.*, Inorg. Chem. **53**, 12572 (2014).
- 2) S. Rahimi et al., Phys. Rev. B 106, 115205 (2022).



Fig. 1. P-E and I-E curves for the Bi_{0.8}Ba_{0.2}FeO_{2.8}F_{0.2} film acquired at 20 kHz and 300 K.

27aE - 6

トンネル型スピンフィルター素子に向けた Pt 層上の

バリウムフェライト垂直磁化薄膜の作製

田中 雅章, 足立 亮太, 小見山 遥*, 小野 輝男*, 日原 岳彦, 壬生 攻 (名工大工, *京大化研)

Preparation of perpendicularly magnetized barium ferrite films on Pt layers for spin-filtering junctions Masaaki A. Tanaka, Ryota Adachi, Haruka Komiyama*, Teruo Ono*, Takehiko Hihara, and Ko Mibu (Nagoya Inst. Tech., *Kyoto Univ.)

はじめに

マグネトプランバイト型構造のバリウムフェライト(BaM)はキュリー温度が高い強磁性絶縁体として知られている。BaMはc軸方向に大きな結晶磁気異方性をもつため、c軸配向させたBaM薄膜は高い垂直磁気異方性を示すことが期待される¹⁾。一方、薄い強磁性絶縁体薄膜をトンネル伝導する電子には、電子のスピンに依存した障壁の高さを反映した透過率の差が生じる。この現象はトンネル型スピンフィルター効果と呼ばれ、強磁性金属とは異なるスピン偏極電子源として利用できる²⁾。本研究では、BaM垂直磁化薄膜を用いたトンネル型スピンフィルター効果の観測のためにPt層上への薄いBaM垂直磁化薄膜の作製と、トンネルバリア特性の評価を行った。

実験方法

 α -Al₂O₃(0001)基板上に膜厚 20 nm の Pt を成膜した後に、YAG 2 倍波レーザーを用いたパルスレーザー堆 積法でシャドウマスクを用いて基板温度を 300℃としてアルゴン雰囲気中で膜厚 7 nm の BaM 薄膜を作製し た。作製した薄膜は真空中で赤外線ランプを用いて 900℃で t_a =3~180 分間のアニール処理を行った。X 線回 折装置で結晶構造と格子歪みの評価、原子間力顕微鏡観察で表面平坦性の評価、SQUID 磁束計を用いて磁化 測定を行った。また、BaM (7 nm)を絶縁層とする Pt/BaM/MgO 構造の多層膜を作製して、フォトリソグラフ ィーと Ar イオンミリングを用いて直径が数 µm の接合素子を作製した。接合素子に対して電流電圧測定を行 い、バリア特性を評価した。

実験結果

X線回折から Pt 層上の BaM 薄膜はアニール処理を行うことで(0001)方向にエピタキシャル成長することがわかった。図1に $t_a=10$ min.及び 90 min.の試料の膜面垂直方向の磁化測定の結果を示す。アニール時間が長くなることで飽和磁化が大きくなり、 $t_a=90$ min.の試料では飽和磁化が 500 kA/m になることがわかった。一方でアニール処理時間を長くすると表面平坦性が悪く

なり、ta>120 min.の試料では Pt 原子の移動によると考 えられる非常に荒れた表面になることがわかった。ta= 90 min.のアニール処理を行った接合素子の多層膜は平 均表面粗さが 0.5 nm と良いため、この条件の接合素子 の電流電圧特性を評価した。発表では接合素子のトン ネル伝導の結果についても議論する。

本研究は公益財団法人天野工業技術研究所の助成を 受けたものである。

- 1) A. Morisako et al., J. Magn. Soc. Jpn. 23, 1217 (1999).
- 2) J. S. Moodera et al, Phys. Rev. Lett. 61, 637 (1988).



Fig. 1 Out of plane hysteresis loops of BaM films (*t*_a=10 min. and 90 min.) at 300 K

基板の構造相転移により誘起される La_{0.5}Sr_{0.5}MnO₃ 薄膜の 新たな強磁性相

荒川椋大朗、小野木拓麻、小森祥央、谷山智康 (名大理)

Unusual ferromagnetic phase induced by structural phase transition of substrate in epitaxial La_{0.5}Sr_{0.5}MnO₃

thin films

R. Arakawa, T. Onogi, S. Komori, T. Taniyama

(Nagoya University)

はじめに

マンガン磁性酸化物 La_{1-x}Sr_xMnO₃ (LSMO) のエピタキシャル薄膜は超巨大磁気抵抗効果 (CMR)、ハーフメ タリック伝導、金属-絶縁体転移等の多彩な物性を示し、これらの物性は強い電子相関のためにキャリア密度 や格子歪みに大きく依存する。最近、我々は LSMO/BaTiO₃ (100)へテロ構造において強誘電体 BaTiO₃ 基板の 構造相転移に伴う磁気弾性効果が、強磁性-反強磁性領域境界に当たる x = 0.5 の組成において顕著に増大す ることを示した¹⁾。今回、強誘電体ではない Nb ドープ及びノンドープの SrTiO₃ (100) 基板の構造相転移にお いても顕著な磁気弾性効果を見出したのでこれを報告する。

実験方法

Nb (0.5 wt%) ドープされた SrTiO₃ (100)基板上に、膜厚の異なる複数 の La_{0.5}Sr_{0.5}MnO₃ エピタキシャル薄膜を Nd:YAG レーザーを用いたパ ルスレーザー堆積(PLD)法により成膜した。これらの試料に対して、 500 Oe の磁場下、2-350 K の温度範囲で磁化の温度依存性を測定した。 また、コプレーナ導波路とネットワークアナライザーを用いて、0-12 kOe の静磁場下、0-44 GHz のマイクロ波印加下で、2-300 K の温度範 囲における強磁性共鳴を測定した。

実験結果

Fig. 1 に Nb:SrTiO₃ 基板上に成膜した膜厚 d の La_{0.5}Sr_{0.5}MnO₃ 薄膜の 磁化の温度依存性を示す。全ての試料に対して温度の低下に伴って磁 化が増大し、d=28, 38, 70 nm の試料では 118 K より低温において磁化 のさらなる増大が見られる。この現象は膜厚の増大とともにより顕在 化することがわかる。また、ドープされていない SrTiO₃ 基板上の La_{0.5}Sr_{0.5}MnO₃ 薄膜においても、約 105 K 以下において同様の磁化の増 大が確認された。この磁化が増大する温度は基板の構造相転移温度と ほぼ一致している²)。Fig. 2 に d=38 nm の薄膜に対する強磁性共鳴吸 収の温度依存性を示す。125 K 以下において、125 K 以上の温度での吸 収に加えて低磁場側に小さなディップが確認されることから、基板の 構造相転移により新たな強磁性相が発現し、これが磁化の増大に寄与 していると推測される。講演では、詳細な物理起源について議論する。

本研究の一部は、JST CREST JPMJCR18J1, JST FOREST JPMJFR212V, JSPS 科研費 JP24H00380, JP23KK0086, JP21H04614 の支援を受けたものである。

参考文献

1) K. Imura et al., Appl. Phys. Lett. 122, 202402 (2023).

2) Z. Zhang et al., Sci. Rep. 12, 2499 (2022).



Fig. 1 Temperature dependence of magnetization of $La_{0.5}Sr_{0.5}MnO_3/Nb$:STO.



Fig. 2 Temperature dependence of FMR spectra of La_{0.5}Sr_{0.5}MnO₃/Nb:STO (d = 38 nm) at 30 GHz.

Co/Ru/Co/PMN-PT 構造の磁化過程における電界変調

久田優一*, 小森祥央*, 井村敬一郎**, 谷山智康* (*名大理, **名大教養)

Electric-field modulation of magnetization process in Co/Ru/Co/PMN-PT heterostructures

*Y. Hisada, *S. Komori, **K. Imura, *T. Taniyama

(* Dept. Phys., Nagoya Univ., ** ILAS, Nagoya Univ.)

<u>はじめに</u>

最近、反強磁性層間結合を示す強磁性体/非磁性体/強磁性体へテロ構造(人工反強磁性体(SAF))において、 電界により誘起されるイオン伝導効果を利用した磁化配向の180°スイッチングが実証され注目を集めてい る¹⁾。一方、我々はこれまでに、Co/Ru/Co SAF と強誘電体 Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃-PbTiO₃ (PMN-PT)からなるヘテ ロ構造において、PMN-PTの逆圧電歪みに起因する SAFの層間磁気結合の電界変調について報告してきた²⁾。 本講演では、実験と micromagnetic simulationの双方から、層間磁気結合の電界変調のメカニズムを精査した 結果について報告する。

実験結果

分子線エピタキシー法により、Ru (3 nm)/Co (4 nm)/Ru ($t_{Ru} = 1.2$ -1.4 nm)/Co (3 nm)/Ru (20 nm)を強誘電体 PMN-PT(011)上に作製した。ここで t_{Ru} は、反強磁性結 合から強磁性結合に切り替わる境界近傍の膜厚を選ん でいる。作製したすべての試料において、磁場とともに 磁化が急激に増大するメタ磁性転移挙動が確認され た。これらの試料に対して minor loop 測定を行うと、図 1 (a)に示すように二つのスイッチング磁場 H_{c1} および H_{c3} が得られ、すべての試料において($H_{c1} + H_{c3}$)/2 が電界 により変調されることが確認された。Koplak らの研究 によると³⁾、($H_{c1} + H_{c3}$)/2 と層間磁気結合定数 J(erg/cm²) とは比例関係にあり、今回実験で見出された ($H_{c1} + H_{c3}$)/2 の電界変調は、層間磁気結合定数の電界効果によ るものと理解される。

次に、micromagnetic simulation により得られた異なる Jに対する minor loop を図1 (b) に示す。層間磁気結合 を増加させることで、 $H_{c1} \ge H_{c3}$ がともに高磁場側へシ フトしており、 $(H_{c1} + H_{c3})/2$ が層間磁気結合の指標であ るとする Koplak らの報告と定性的に一致している。一



Fig. 1 (a) Schematic illustration of major and minor hysteresis loops in SAFs with a metamagnetic transition. (b) Minor hysteresis loops for different *J* values obtained from micromagnetic simulation. (c)-(d) Experimental results of the minor hysteresis loops of Co/Ru/Co/PMN-PT with $t_{Ru} = 1.2$ nm near H_{c1} and H_{c3} under electric fields of 6 kV/cm and -1.6 kV/cm.

方、Jの値を変化させた際の H_{c1} と H_{c3} の変化量は図1(b)のようにそれぞれで異なり、図1(c)-(d)に示す実験 結果をよく再現している。以上の結果は、実験で見出された Co/Ru/Co/PMN-PT 構造の磁化過程における電界 効果が、層間磁気結合の電界変調に起因することを裏付けていると言える。講演では、Co/Ru/Co/PMN-PT へ テロ構造における層間磁気結合の電界効果を、micromagnetic simulation と実験の両面から詳細に議論する。

本研究の一部は、JST CREST JPMJCR18J1, JST FOREST JPMJFR212V, JSPS 科研費 JP24H00380, JP23KK0086, JP21H04614, JP24KJ1306 の支援を受けたものです。

<u>参考文献</u>

1) A. E. Kossak et al., Sci. Adv. 9, eadd0548 (2023). 2) 第 47 回日本磁気学会学術講演会, 27aC-12.

3) O. Koplak, et al., J. Magn. Magn. Mater. 433, 91 (2017).
窒素サーファクタントエピタキシーにより作製した FeCo規則合金薄膜界面の構造安定性

宮町俊生^{1,2},梅田佳孝¹,小野広喜¹,山本航平³,石山修³,岩山洋士³,中村永研³, 横山利彦³,水口将輝^{1,2} (¹名大院工,²名大未来研,³分子研)

Interfacial stability in FeCo ordered alloy thin films fabricated by nitrogen surfactant epitaxy T. Miyamachi^{1,2}, Y. Umeda¹, H. Ono¹, K. Yamamoto³, O. Ishiyama³, H. Iwayama, E. Nakamura³, T. Yokoyama³, and M. Mizuguchi^{1,2}

(¹Sch. Eng. Nagoya Univ., ²IMaSS. Nagoya Univ., ³IMS)

はじめに

二種類の原子層が交互に積層し、L10型の結晶構造を持つ規則合金薄膜は高い垂直結晶磁気異方性を示す ことが理論的に予測されており、次世代磁気材料として期待されている。中でも、L1o-FeNi規則合金薄膜や L1o-FeCo規則合金薄膜はレアアースフリーの高機能新規磁性材料として、近年、材料分野を中心に精力的に 研究が行われている [1]。しかし、L1o-FeCoは非平衡構造なため接合界面における原子レベルでの構造乱れ に起因して規則度が低く、面直磁化はこれまでに実現されていない。この規則度低下の問題を解決するため、 近年我々は窒化物単原子層の窒素サーファクタント効果を利用した L1o型規則合金薄膜の高品質化に取り組 み(窒素サーファクタントエピタキシー)、FeNi規則合金薄膜においては世界で初めて垂直磁化を実現する 等、原子レベルで高品質な界面を作製することの重要性を明らかにしてきた [2]。この手法では窒化物単原子 層の高い表面格子安定性および接合異種界面における相互拡散を効果的に抑制する窒素サーファクタントに より原子レベルで平坦で均一な界面をもつ L1o型規則合金薄膜の作製が期待できる。そこで、本研究では 窒素サーファクタントエピタキシーを用いて FeCo 合金超薄膜を作製し、走査トンネル顕微鏡(STM)観察 およびX線吸収分光/X線磁気円二色性(XAS/XMCD)測定によりFe/Co界面の構造安定性と磁気特性の相関 を原子レベルで明らかにすることを目的とした。

実験方法

本研究では窒素サーファクタントエピタキシーを用いた高品質な FeCo 合金薄膜作製の初期成長段階で ある、Cu(001)表面上の Fe4N の組成を持つ窒化鉄原子層に Co 約1原子層を約150 K で低温成長した系を作製 した。そして、その Fe/Co 界面の構造と電子・磁気状態の加熱温度依存性を STM 観察(測定温度:80 K) および XAS/XMCD 測定により調べた [3]。XAS/XMCD 測定は分子科学研究所 UVSOR BL4B にて行った (測定温度:6.6 K、印加磁場:0-5 T)。

実験結果

STM による原子分解能構造観察の結果、窒素サーファクタント効果によって系の構造が変化して最表面に は CoN が現れ、さらに、470 K までの試料加熱では界面相互拡散を抑えながら CoN の規則度が向上すること がわかった。低速電子線回折(LEED)によるマクロ構造評価も行い、試料加熱に伴い CoN 由来の c(2×2) LEED スポットがシャープになったことから大面積で Fe/Co 界面の高品質化が促進されていることを確認した。 XAS/XMCD 測定の結果、窒化鉄原子層は強い面内磁気異方性を示したが、Co 積層およびその後の加熱処理 により面直磁化が増大することがわかった。窒素サーファクタント効果によって Fe/Co 接合界面における 相互拡散が効果的に抑制されて原子レベルで平坦な表面・界面が形成され、L10-FeCo の本質的な磁気特性 (面直磁気異方性)が現れたと解釈できる。

- [1] T. Kojima et al., J. Phys.: Condens. Matter 26, 064207 (2014).
- [2] K. Kawaguchi et al., Phys. Rev. Mater. 4, 1054403 (2020)., Jpn. J. Appl. Phys. 61, SL1001 (2022).
- [3] Y. Umeda et al., Jpn. J. Appl. Phys. 63, 04SP80 (2024).

Fe-Co-V-N 薄膜の一軸磁気異方性に対する 正方晶化とN 添加の寄与

村上知優(院生), 長谷川崇 (秋田大理工)

Role of tetragonal distortion and N addition on Fe-Co-V-N films with high uniaxial magnetic anisotropy.

C. Murakami, T. Hasegawa

(Akita Univ.)

はじめに

Fe-Co は、高い飽和磁化を有しており、正方晶(bct)化による一軸磁気異方性(K_u)の向上が報告されている[1]。また Fe-Co に対して V-N を複合添加すると、結晶構造が bct 化して高 K_u 化することが報告されている[2]。さて、ここで V-N 添加で発現した K_u には、bct 化の寄与分と N 添加の寄与分が存在すると考えられる。しかしこの観点からの研究報告はまだない。そこで本研究では、bct 化していて N 未添加の試料(Rh/Fe-Co-V)、bct 化していない N 添加の試料(Rh/Fe-Co-N)、bct 化かつ N 添加した試料(Rh/Fe-Co-V-N)の3種を作製し、発現した K_u に対する bct 化と N 添加のそれぞれの寄与分を考察した。

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~10⁻⁷ Pa)を用いた。MgO (100)基板上に基板加熱温度 300℃で下地層 Rh、次いで基板加熱温度 200℃で磁性層 Fe-Co-V-N、 最後に室温で酸化防止層 SiO₂を成膜した。ここで磁性層の組成は、 ((Fe_{0.5}Co_{0.5})_{1-y}V_y)_{100-x}N_x(x=0)(bct 化:〇, N 添加:×)、(Fe_{0.5}Co_{0.5})_{100-x}N_x (bct 化:×, N 添加:〇)、((Fe_{0.5}Co_{0.5})_{0.8}V_{0.2})_{100-x}N_x(bct 化:〇, N 添 加:〇)とした。V 添加量(y)は投入電力で、N 添加量(x)は、 Ar と N₂の全ガス圧を 0.3 Pa とし、N₂のガス圧を 0—0.05 Pa と変化 させて制御した。組成分析には EPMA および XPS、結晶構造解析 には In-plane XRD および Out of plane XRD、磁気特性評価には VSM

を用いた。

実験結果

Fig. 1 は、bct 化のみによって発現する K_u を調べた結果である。 V 添加量 y = 0.2 (かつ N 添加量 x = 0) において、軸比 (c/a) は 1.25 であり、bct 化の寄与のみで $K_u = 0.61 \times 10^7$ erg/cm³ が発現して いる。Fig. 2 は、N 添加のみで発現する K_u と、bct 化と N 添加の両 方の寄与によって発現する K_u を調べた結果である。(x, y) = (5.8, 0) の試料では、c/a = 1.02 であり、立方晶であるにもかかわらず、N 添加の寄与のみで $K_u = 0.52 \times 10^7$ erg/cm³ が発現している。次に(x, y) = (5.7, 0.2)の試料では、c/a = 1.25 であり、bct 化と N 添加の両方の 寄与で 1.29×10⁷ erg/cm³ の K_u が発現している。この K_u 値は、先述の bct 化のみの寄与分 (0.61×10^7 erg/cm³) と N 添加のみの寄与分

(0.52×10⁷ erg/cm³) の合算値(1.13×10⁷ erg/cm³) とほぼ一致する。
以上より、Fe-Co に対する V-N 複合添加で発現する K_uには、bct 化の寄与分と N 添加の寄与分が個々に存在することが分かった。
参考文献 [1] T. Burkert *et al.*, Phys. Rev. Lett. 93 (2004) 027203.
[2] T. Hasegawa *et al.*, Sci. Rep. 9 (2019) 5248.

この研究は科研費基盤 B (JP20H02832)の支援を受けた。



Figure 1. V content (y)-dependence of K_u of the MgO sub./Rh (t = 20 nm)/ ((Fe_{0.5}Co_{0.5})_{1-y}V_y)_{100-x}N_{x (x = 0)} (t = 20nm)/SiO₂ (t = 5 nm) films.



Figure 2. N concentration (*x*)- dependence of K_u of the MgO sub./Rh (t = 20 nm)/ ((Fe_{0.5}Co_{0.5})_{1-y}V_y)_{100-x}N_x (t = 20 nm)/SiO₂ (t = 5 nm) films.

FeCo 薄膜への置換型元素 X と侵入型元素 Nの

複合添加による bct 構造の安定化

佐藤翼(院生),長谷川崇

(秋田大理工) bct structure and uniaxial magnetic anisotropy of Fe-Co-X-N films T. Sato, T. Hasegawa (Akita Univ.)

はじめに

一般的に FeCo は、遷移金属合金の中で最も高い飽和磁化(*M*_s)をもつが、結晶構造が bcc 構造であるため 一軸磁気異方性(*K*_u)が極めて小さい。そのような中で先行研究において、FeCo に対して置換型元素 V と侵 入型元素 N の複合添加により、bct 構造に変態して高 *K*_u 化する事が報告されている[1]。そこで本研究では、 理論計算を用いて bct 構造を安定化する添加元素 X を探索し、実験結果との比較を行った。

実験方法

成膜には超高真空多元マグネトロンスパッタ装置を用いた。まず MgO(100)基板上に基板加熱温度 300°Cで Rh (*t* = 20 nm)を成膜し、次に基板加熱温度 200°Cで(Fe0.5C00.5)100-xNx, (Fe0.4C00.4V0.2)100-xNx, (Fe0.35C00.35V0.2Zr0.1)100-xNx, (Fe0.35C00.35V0.2Zr0.1)100-xNx (*t* = 20 nm)を成膜し、キャップ層として SiO₂ (*t* = 5 nm)を室温で成膜した。ここでは Ar と N₂の混合ガス圧を 0.3 Pa とし、N₂のガス圧を 0 - 0.051 Pa で変化させた。試料の組成分析には EPMA、結晶構造解析には In-plane XRD およびOut of plane XRD を用いた。理論計算には Advance 社のバンド計算ソフト PHASE を用いた。

実験結果

Fig.1 は、理論計算の結果である。横軸に添加元素 X の原 子番号、縦軸に Fe-Co-X の bcc 構造と fcc 構造の形成エネル ギーの差 ($\Delta E_{\text{fcc-bcc}}$)をプロットしたものである。解釈として は、 $\Delta E_{\text{fcc-bcc}}$ が小さいほど、bcc と fcc のエネルギーが拮抗する、 すなわち軸比 c/aが変化しやすいと推測される。グラフ中で $\Delta E_{\text{fcc-bcc}}$ が最大なのは FeCo であり、FeCo に対して X (X = V, V-Zr, V-Ta)を複合添加したものは全て $\Delta E_{\text{fcc-bcc}}$ が減少している。

Fig.2 は、N 添加された Fe-Co と Fe-Co-X (X = V, V-Zr, V-Ta) 薄膜の c/a の N₂添加量依存性である。N 添加された Fe-Co で は、c/a = 1.0 (bcc) または 1.4 (fcc) のどちらかが安定に存在 し、中間の軸比は存在していない。それに対し、Fe-Co に X (X = V, V-Zr, V-Ta)を添加した試料では、bcc と fcc の中間の軸比 (1.0 < c/a < 1.4)を有する bct 構造が形成しており、この傾向 は理論計算の結果 (ΔE (Fe-Co) > ΔE (Fe-Co-X))と定性的に 一致する。

参考文献

[1] T. Hasegawa et al., Sci. Rep. 9 (2019) 5248. この研究は科研費(JP20H02832)の支援を受けた。



Figure 1. Calculated formation energies of Fe-Co-X. Difference (ΔE) between the bcc and fcc structures were calculated.



Figure 2. Experimental results. N pressure dependences of c/a.

Fe-Co-V 薄膜への酸素 O 添加による正方晶化と

一軸磁気異方性の発現

竹村拓巳(院生)、長谷川崇

(秋田大理工)

Tetragonal crystal structure and uniaxial magnetic anisotropy on Fe-Co-V-O films

T. Takemura, T. Hasegawa

(Akita Univ.)

はじめに

現在実用化されている高性能磁石のほとんど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 と侵入型元素 N を複合添加すると bct 構造が安定化し、磁気異方性が向上することが分かっている[1]。本研究では、添加元素 V, N を特徴の近い元素と入れ替えることで、さらに優れた特性をもつ組み合わせが得られるのではないかと考え、N を O に変えた際の結晶構造と磁気特性について調べた。

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~10⁻⁷ Pa)を用いた。まずSTO(100)基板上に基板加熱温度200°Cで(Fe₄₀Co₄₀V₂₀)-O(0 \leq P₀₂ \leq 0.04 Pa)(t=20 nm)を成膜し、次に室温でキャップ層SiO₂(t=5 nm)を成膜した。V組成は20 at.%とし、O添加量を変化させた。ここではArとO₂の混合ガス圧を0.3 Paとし、O₂のガス分圧(P₀₂)を0-0.04 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 は、FeCo に対して V を 20 at.%添加した試料を酸素分 圧 $0 \le P_{02} \le 0.01$ Pa で成膜した STO sub./ (Fe₄₀Co₄₀V₂₀)-O 薄 膜の XRD パターンである。少量の酸素を添加した際に、a 軸 は縮み、c 軸は伸びて、軸比は c/a = 1.00 から 1.04 まで増加し ている。Fig.2 は、(a) $P_{02} = 0$ Pa、(b) $P_{02} = 0.005$ Pa の試料の *M*-H 曲線である。磁気異方性 K_u は $P_{02} = 0$ Pa で~0 erg/cm³、 P_{02} = 0.005 Pa で 3.4×10^5 erg/cm³ となり、酸素添加により軸比 c/aが増加するとともに K_u も増加している。

以上より、N 以外の侵入型元素の添加でも、V との複合添加によって FeCoを bet 化する効果があることが分かった。

参考文献

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



XRD patterns for STO sub./(Fe₄₀Co₄₀V₂₀)-O (P_{O2}) (t = 20 nm)/SiO₂(t = 5 nm) continuous films.



基板加熱温度を変えて成膜した正方晶 Fe-Co 薄膜への V-Al-N 添加効果

佐山康輔(院生), 長谷川崇 (秋田大理工)

Effect of V-Al-N addition to bct Fe-Co films deposited at different substrate temperatures

K. Sayama, T. Hasegawa

(Akita Univ.)

はじめに

永久磁石の高性能化のためには、高い飽和磁化(M_s)と一軸磁気異方性(K_u)が必要である。一般的な Fe-Coは、bcc構造をとり、遷移金属合金中で最大の M_s を有するが、 K_u が極めて低い。そのような中で本研 究室ではこれまでに、Fe-CoへのV,N複合添加によって、軸比(c/a)が約1.2のbct構造をとること、それ に伴い K_u が上昇すること、加えてAl添加と熱処理によってFe-Coの規則化が促進され、それに伴い M_s と K_u が増加することを報告している[1]。そこで本研究では、bct化と規則化の同時促進を狙い、Fe-Co薄膜に 対するV,Al,Nの複合添加を行った。

実験方法

成膜には超高真空多元マグネトロンスパッタリング装置(達真空度~10⁻⁷ Pa)を用いた。まず STO 基板を基 板加熱温度(*T*_{sub.}) 400℃で予備加熱し、次に *T*_{sub.} = 25~600℃で変化させて(Fe_{0.4}Co_{0.4}V_{0.2})_{93.3}N_{6.7} 及び (Fe_{0.35}Co_{0.35}V_{0.2}Al_{0.1})_{93.8}N_{6.2} (*t* = 20 nm)を成膜し、最後に室温でキャップ層 SiO₂ (*t* = 5 nm)を成膜した。ここで、 V と Al の添加量は先行研究を元に各々20 at.%、10 at.%とした。また、N 添加量は成膜時の Ar と N₂ガスの 分圧で制御した。結晶構造解析には XRD、磁気特性評価には VSM を用いた。

実験結果

Fig. 1(a)は、Fe-Co-V-NにAI添加していない試料と添加した試料の、軸比 *c/a*の*T*_{sub}.依存性である。両試料ともに、*T*_{sub}.の上昇に伴い*c/a*が 1.4(fcc)から 1.0(bcc)に変化している。これは加熱による膜中のNの脱離が原因と考えられる。Fig. 1(b)は、Fe-Co-V-NにAI添加していない試料と添加した試料の、*M*_sの*T*_{sub}.依存性である。両試料ともに*T*_{sub}.の上昇に伴って*M*_sが最大で 300 emu/cm³程度増加している。これは、*T*_{sub}.上昇による規則化の進行に伴う*M*_sの上昇が要因と考えられる。一般的にFe-Coは、規則化すると磁気モーメントが 3%程度増加することが知られる[2]。ここで、非磁性元素の含有量に注目すると、Fe-Co-V-AI-Nでは非磁性 V-AI-N の合計は 30 at.%であり、これはAI未添加のFe-Co-V-N よりも 10 at.%多い。それにもかかわらず、*M*_sを比較すると、両者の値は同等である。これは、AI添加による規則化と*M*_s上昇の効果に起因すると考えられる。Fig. 1(c)は、*K*_uの*T*_{sub}.依存性である。*T*_{sub}. = 200~400℃のときに、両者ともに 10⁷ erg/cm³オーダーの高い*K*_uが得られている。



 $(Fe_{0.4}Co_{0.4}V_{0.2})g_{3.3}N_{6.7}$ and $(Fe_{0.35}Co_{0.35}V_{0.2}Al_{0.1})g_{3.8}N_{6.2}$ (t = 20 nm).

参考文献 [1] 武政友佑他 日本磁気学会論文特集号 4 (2020) 9-13. [2] 志賀正幸 日本金属学会会報 17 (1978) 582-588.

正方晶 FeCo 薄膜への Al 添加による規則化と ナノスケール微細加工による保磁力変化

小野寺瞭(院生),長谷川崇 (秋田大理工)

Coercivity of microfabricated bct Fe-Co-Al films with ordered structure R. Onodera, T. Hasegawa (Akita Univ.)

はじめに

永久磁石の高性能化には、高い飽和磁化(M_s)、一軸磁気異方性(K_u)、保磁力(H_c)が必要とされる。一般的な Fe-Co は、bcc 構造をとり、全遷移金属合金中で最大の M_s を有するが、 K_u が極めて低いため、 H_c はほぼ 0 となる。そのような中で本研究室ではこれまでに、Rh下地と Fe-Co の格子不整合を利用して軸比(c/a) を 1.2 付近にすることで、 K_u が向上することを報告している[1]。また、Al を添加し熱処理することで、原子 配列の規則化に伴う K_u の向上が期待される[1,2]。ここで、一般的に磁性体の H_c にはサイズ効果がみられ、連続膜状態では H_c が極めて低いが、微細加工すると高 H_c 化するケースが多々報告されている[1]。そこで本研究では、FeCo 薄膜に対する Al 添加とナノスケール微細加工が、 H_c に与える影響について調べた。

実験方法

成膜には超高真空多元マグネトロンスパッタリング装置(到達真空度~10⁻⁷ Pa)を用いた。MgO(100)基板 上に成膜された Rh 下地上に、Fe₅₀Co₅₀ (1 nm) (*T*_{sub.} = 200℃)、Fe₄₅Co₄₅Al₁₀ (1 nm) (*T*_{sub.} = 200℃)、Fe₃₅Co₃₅Al₃₀ (1.5 nm) (*T*_{sub.} = 400℃)を成膜した。その後、電子ビーム描画装置と Ar イオンミリング装置を用いて、ドッ ト径 (*D*) = 300, 100, 80, 60, 50, 30 nm に微細加工した。磁気特性評価には極カー効果顕微鏡を用いた。

実験結果

Fig. 1 は、(a) $Fe_{50}Co_{50}$ 、(b) $Fe_{45}Co_{45}Al_{10}$ のドット径 D = 100 nmの磁化曲線である。Al 添加無しの試料(a) $O H_c$ は約 1.5 kOe、Al 添加した試料(b)の H_c は約 2.6 kOe であり、Al 添加によって微細加工後の H_c が増加 している。Fig. 1(c)は、Al 添加量が 0, 10, 30 at.%の 3 種類の試料の H_c のD依存性である。全ての試料にお いて、Dの減少に従い H_c が向上している。

Fig. 1(d)は、連続膜で評価した K_u 値と、D = 100 nm の H_c の相関図である。 K_u の増加に伴い H_c は増加し ている。ここで、Al 添加量が0と10 at.%の試料(連 続膜)の規則度(S)は、それぞれ0.17と0.21であ った。これらの試料の K_u はほぼ同程度である。 H_c に注目すると、Al 添加量が0 at.%の試料では1.5 kOe、 10 at.%の試料では2.6 kOe であり、 K_u 値がほぼ同等で あるにもかかわらず、Al 添加によって H_c は約1.7 倍 向上している。このことから、Al 添加の効果は、規 則化促進の効果(すなわち規則化した試料はミリング 耐性が高い可能性)、あるいは Al_2O_3 等の不働態膜形 成による酸化防止効果を有する可能性が考えられる。



Figure 1. Perpendicular magnetization curves for the nanodots (D = 100 nm) of (a) Rh/Fe₅₀Co₅₀ (1 nm) and (b) Rh/Fe₄₅Co₄₅Al₁₀ (1 nm). (c) D dependences of perpendicular H_c . (d) Perpendicular H_c (D = 100 nm) as a function of K_u .

参考文献 [1] T. Hasegawa *et al.*, Sci. Rep. 7 (2017) 13215. [2] Y. Kota and A. Sakuma, Appl. Phys. Exp. 5 (2012) 113002. この研究は科研費(JP20H02832)の支援を受けた。