<Paper>

拡張型 Landau 自由エネルギーモデルを用いた YIG の保磁力メカニズム解析

Analysis of the coercivity mechanism of YIG based on the extended Landau free energy model

増澤賢 a)・國井創大郎 a)・A.L.Foggiatto a)・三俣千春 a),b)・小嗣真人 a)†
a)東京理科大学先進工学部,東京都葛飾区新宿 6 - 3 - 1 (〒125-8585)
b)物質・材料研究機構 (NIMS),茨城県つくば市千現1-2-1(〒305-0047)

K.Masuzawa ^{a)}, S.Kunii ^{a)}, A.L.Foggiatto ^{b)}, C.Mitsumata ^{a),b)},and M.Kotsugi ^{a)} † ^{a)} Tokyo University of Science, 6-3-1, Niijuku, Katsushika, Tokyo, 125-8585, Japan

^{b)} National Institute of Science (NIMS), Sengen, Tsukuba, Ibaraki, 305-0047, Japan

We propose an "extended Landau free energy model", which can deal with the complex microstructure of magnetic domain structure and explain the magnetization reversal process using modern data science. The energy landscape is newly drawn in the information space by persistent homology (PH), principal component analysis (PCA), and Ising model for the magnetic domain structure big data of YIG. The PH and PCA analyses yielded high-quality features that explain the microstructure of the magnetic domain structure and magnetization. The energy landscape shows that the mode of domain formation changes sequentially with the energy gradient: nucleation, elongation, branching and widening of magnetic domain. In addition, small energy barriers were visualized, suggesting the extraction of hidden features difficult to recognize by human eyes. This model allows us to establish a relationship between the microstructure of the magnetic domain and the magnetization reversal process based on the energy.

Key words : magnetic domain structure, machine learning, energy landscape, Ginzburg-Landau model, persistent homology

1. はじめに

電気自動車の急速な普及を背景に、エネルギー変換効率の高い 省電力モーターの開発が求められている.エネルギー変換効率の 向上には、モーター内部のステータ鉄心に用いられる軟磁性材料 のヒステリシス損を低減することが有効である.これを背景に、ヒ ステリシス損の大きさを決定付ける保磁力のメカニズム理解が求 められている^{い3}.しかし、微細な領域の磁化反転現象である磁区 構造変化と、巨視的な磁化反転現象である磁気ヒステリシスの関 係性は未だ完全に明らかになっていない.このことから、保磁力メ カニズムは磁性材料科学における未解決問題の一つとして長らく 議論が続けられてきた¹⁾⁻¹⁰.保磁力や磁化過程を理解するための 理論として、Ginzburg Landau 理論 ³⁾⁻⁴⁾が知られている.本理論 は、磁場 Hと磁化 Mを説明変数として磁気的エネルギーF を表 現する理論的枠組であり、長らく利用されてきた.保磁力 H_c は 磁化反転に必要なエネルギー障壁の高さによって決定づけられ、

エネルギー地形の鞍点が保磁力に対応している³. その一方で、従 来の Ginzburg Landau 理論では平均場近似に基づいた一様な内 部構造を前提としているため、金属組織や粒界を含む現実的な磁 性材料の保磁力を説明することが困難であった. 特に、磁化 Mを 秩序変数として統計力学的に利用しているため、空間的に不均一 な実材料の解析で問題を抱えていた.

そこで我々は、磁化の空間的な不均一性を取り扱え、実材料の磁 化反転過程を説明可能な「拡張型Landau自由エネルギーモデル」 の設計を試みる.開発では、磁区構造における磁化分布の不均一 性をパーシステントホモロジー(PH)と呼ばれる位相幾何学の概念 を用いて定量化する^{11)~15)}と共に、教師無し学習の代表例である 主成分分析(PCA)を用いて、データの変化の傾向を低次元空間で可 視化することを試みる. さらに磁気内部エネルギーの推定にはイ ジング模型を元に¹⁶⁾ 画像情報から直接的にエネルギーを算出す る. これによって情報空間上に新しいエネルギー地形を描くこと ができ,データの変化の傾向から材料内部の磁区構造と材料機能 となる保磁力の関係性が構築できるものと期待される. またエネ ルギー地形における傾斜や凹凸を詳細解析することで,保磁力の メカニズム理解や人間が気づかなかった知見の抽出も期待される. 本稿ではモデルの設計や標準試料における解析例について報告す る.

2. 解析手法

2.1 パーシステントホモロジーを用いた磁区構造の定量化 磁区構造のデータを機械学習に持ち込むため、磁区構造における 磁化の空間的な不均一性を定量評価して記述子として取り出す必 要がある.本研究では位相幾何学の新規概念「パーシステントホモ ロジー(PH)」を利用した¹¹⁰⁻¹³⁾. PH は構造の連結性や穴の形状 など、幾何学的な特徴を定量化できるトポロジーの概念であり、機 械学習との組合わせによって構造と諸物性の対応関係を構築でき る強力な解析手段である¹³⁾.磁区構造のみならず、高分子や構造 材料など幅広い材料解析で利用が急速に進展している¹²⁰⁻¹⁴.

本節では、PH 解析の基本的概念を説明したのち、磁区構造デー タからの情報抽出の手順について説明する. なお本研究ではバイ ナリデータの磁区構造を対象としている. 画像の各 pixel に 1(白) か0(黒)のデータが格納されており、磁化方向の上下にそれぞれ対 応している. PH 解析では、白 pixel と黒 pixel の境界面を基準に マンハッタン距離を pixel 毎に算出する (Fig. 1 (a)). 次にマンハ ッタン距離における白黒の閾値を連続的に変化させることで境界 面を膨張・収縮させる (Fig. 1(b)). この過程において「穴」が生 成 (birth) する閾値 b と、消滅 (death) したときの閾値 d を記

Corresponding author: M. Kotsugi (e-mail: kotsugi@rs.tus.ac.jp).

録することで構造の特徴を抽出する. (b, d) のペアは generator と 呼ばれ、穴の形状を特徴付ける情報となる. 閾値を画像全体につい て処理することで、パーシステンス図 (PD) と呼ばれる図形を作 成する (Fig. 1(c)). また birth と death の差は lifetime と呼ば れ,発生した穴の持続時間(寿命)を表している.例としてストラ イプ状の構造は b, d が同程度の値となることから PD の対角線上 に generator が生成され, バブル状の構造は第二象限に generator が生成される. また境界の移動方向は正負両方について処理を行 うことができ、正の場合は構造を太らせ、負の場合は構造を細らせ る処理を行う. この処理によって穴のみならず構造の連結性も記 述できる. このように PD はデータの構造情報を記述しており, 微細組織の形状情報を定量化することが可能である(Fig. 1 (d)). 磁化反転過程における磁区構造解析では、白黒両方の磁区構造の 特徴を抽出することが有用であり、白黒両方の PH 解析を実施し た. PD 上に現れる(b, d)の分布を利用することで、微細組織の分 類に利用することができる. さらには磁区形状に応じて磁気内部 エネルギーが変化するため、PD には系の安定性の情報も内包され ている. また PD の generator は、対応する元の空間座標を逆算 でき、元の磁区構造の座標情報に遡ることも可能である.

さらにPH解析と機械学習を組み合わせることで、微細組織と様々 な特性パラメータとの関係性を構築することができる.磁化反転 過程は複雑な磁区構造変化を伴い、生成された PD も高次元デー タであることから、データの変化を低次元空間に縮約して可視化 することは有用である.機械学習では多種多様な次元削減手法を 利用可能であるが、本研究ではメカニズムの理解を最終的な目的 としているため、解釈性の高い次元削減手法として主成分分析 (PCA)を利用した¹⁵. PCA は教師無し機械学習の代表例であり、 高次元のベクトル $\{x_i | x_1^i, ..., x_p^i\}$ を, 低次元のベクトル $\{y_i | (y_1^i, ..., y_m^i), m < p\}$ に次元削減する手法である.射影行列 $W = \{w_1, ..., w_i | w_i = (w_1, ..., w_p)\}$ を作成し,高次元の分散情 報を出来る限り保持して低次元に縮約する手法である(式(1)).なお $x = \{x_1, ..., x_n\}, y = \{y_1, ..., y_n\}$ とする.

$$y = Wx$$
 (1)
 $(w_1^2 + w_2^2 + \dots + w_i^2 = 1)$

このときの射影行列を構成するベクトルwiを基底ベクトル (PCA ローディング),射影後のベクトルを主成分 $y_i = (y_1^i, ..., y_m^i)$ と呼 ぶ. 主成分は第一主成分から順にPC1, PC2, ..., PCm が作成さ れ、番号が小さいほど説明性能が高い. PCAの利点は、データ間 の距離や変化の傾向を低次元空間で可視化できることに加えて、 データに内在する本質的な特徴を基底ベクトルとして抽出できる 点である. 基底ベクトルは互いに直交していることからデータ間 の Euclid 距離が保存されているため、部分空間を歪めずに距離と 物理パラメータの相関解析を直接実施できる. 本解析を磁区構造 に適用すると、磁区構造の複雑性や連結性を定量化して、複雑な磁 区構造変化を可視化することが期待される. 具体的には PD を正 定値カーネルに従ってベクトルに変換し、磁化反転過程の一連の データをスタックして一枚の巨大な行列を作成する. その後 PCA を用いて2つの主成分に次元削減する. これにより PD の変化を 少ない基底ベクトルで表現することができ、磁化反転過程を低次 元空間上で可視化することができる. そして各データ点の内部エ ネルギーを解析することで、情報空間上で新たなエネルギー地形 を描画することができる. 次節では「拡張型 Landau 自由エネル



Fig. 1 Schematic sequence of Persistent Homology (PH) analysis.

(a) Analyze the Manhattan distance from the boundary in the binarized black-white image, and index them to each pixel.(b) Fatting/thinning process in PH. Increase/decrease the threshold and record the birth and death of holes.(c) Plot the recorded birth-death pairs as a two-dimensional map and create a persistent diagram (PD).(d) Typical correspondence between PD and the original image, where information of PD can be a useful feature of the microstructure.

ギーモデル」の作成手順を説明し、物理パラメータと特徴量との相関解析や、磁化反転過程のメカニズム解析に繋げる.

2.2 拡張型 Landau 自由エネルギーモデルの設計

本節では、Ginzburg-Landau 理論を情報空間上に拡張した 「拡張型 Landau 自由エネルギーモデル」の基本的な概念を 説明する.本モデルは不均一な磁化の分布を取り扱うことが 可能であり、実材料の磁化反転過程の解析に有用と考えられ る.磁化分布の不均一性は PH 解析を用いて特徴抽出されて いるため、PD の固有値(つまり磁区構造の形の特徴)を説明 変数として活用するのが基本的な考え方である.抽出された 説明変数を v_i^{PH} (i = 1,2,3,..)とすると、秩序変数の磁化*M*を 特徴量 v_i^{PH} に変数変換することで、数理的な齟齬なく従来の Ginzburg-Landau 理論を拡張でき、保磁力の議論が可能とな る.

従来型 Ginzburg Landau 理論における保磁力は、エネルギー障壁を乗り越えるための外部磁場の大きさに対応し、自由エネルギー地形 F(M)の導関数、つまり局所的な傾斜に相当する 4 . このとき、保磁力は導関数の極値として数理的に求めることができる(式(2)). なお、式(2)における M_{c} は、保磁力における磁化である.また保磁力における磁化はエネルギー曲線の変曲点を指定する秩序変数となることにも注目されたい.

$$H_c = -\left(\frac{\partial F(M)}{\partial M}\right)_{M=M_c} \tag{2}$$

次に拡張型 Landau 理論への展開を試みる.本理論は説明変数を 特徴量としているため自由エネルギーは $F(v_1^{PH}, v_2^{PH}, ...)$ と表され るが、変数変換を行うことで従来理論からの展開を試みる.従来型 Ginzburg-Landau 理論では磁化 Mが説明変数であることから、 磁化 M の記述子として式(3)のように説明変数 $v_1^{PH}, v_2^{PH}, ...$ を関 係づけることができれば、式(4)のように拡張型 Landau 自由エネ ルギーモデルでも保磁力を定義できる.

$$M = D(v_1^{PH}, v_2^{PH}, ...)$$
(3)

なお本研究では PH を用いた記述子でモデルを表現する. $v_1^{PH}, v_2^{PH}, ...は磁化 M の説明変数でもあるから,式(2)を変形して$ 以下のように保磁力を再定義することができる.

$$H_c = -\frac{\partial F(v_1^{PH}, v_2^{PH}, \dots)}{\partial v_1^{PH}} \frac{\partial v_1^{PH}}{\partial D(v_1^{PH})}$$
(4)

第一項は自由エネルギー地形の記述子に対する局所的な傾斜であ り、第二項は記述子と物性パラメータとの変数変換の項であり、数 理的な整合性が保証されている.以上が拡張型 Landau 自由エネ ルギーモデルの基本概念である.本モデルでは、次元解析や相関解 析などの検証が必要であるが、適切な記述子選択が行えれば、不均 一系の保磁力解析を情報空間上で行えることを意味する.

また目的変数である磁気的エネルギーは加算性が保証されている ので、各々の磁気的相互作用毎に線形分解することが可能である. このことから交換エネルギーのみならず静磁エネルギーや磁気弾 性エネルギーなど多様な磁気的相互作用に対して個別に解析でき, 保磁力に寄与する因子を相互作用毎に議論できるため,メカニズ ムの支配因子の解析が期待できる.

本研究では解析手法の基本原理を構築するため、磁壁に寄与する 擬交換エネルギーに注目して議論を行った.以下に示す手順で、 磁区構造画像における磁壁部分の輪郭を抽出し、擬交換エネルギ ーを算出した.擬交換エネルギーは、画像データの隣接 pixel から、交換スティフネス係数、磁壁幅、ピクセルの幅を用 いて算出した定性値となる.二値化された磁区画像において白 を1、黒を-1 と置き、イジング模型(式(5))に基づいて擬交換エ ネルギーを計算した.なお本研究では第二近接(8pixel)までを 取り入れて交換相互作用を算出することとした.またマクロな磁 化と膜厚より、擬交換エネルギーの定量値を算出した(式(6)).な お、A は交換スティフネス定数、m_{pixel}は1pixel当たりの磁化の 大きさ、L は膜厚、u は 1pixel の幅である.なお分解能以下の擬 交換エネルギーの算出には課題があり、推定の精度については議 論の余地が残されている.

$$m(i,j) = \begin{cases} +1 & (\text{White pixel}) \\ -1 & (\text{Black pixel}) \end{cases}$$
(5)

$$E_{exch} = -\frac{1}{2}A \cdot m_{pixel} \cdot \frac{L}{u} \sum_{i}^{n} \sum_{j}^{n} \sum_{j} m_{(i,j)} \cdot m_{8th \ eighbors} \ (6)$$

本式を実験的な磁区構造データに適用し、拡張型 Landau 自由エネルギーモデルの作成を行い、磁化反転過程における保磁力解析 をおこなった結果を次節で述べる.

3.実験

実験では、単結晶の軟磁性実材料の磁化反転を対象に、拡張型 Landau 自由エネルギーモデルの作成と実証を行った. 測定試料 は、LPE 法で作製された YIG 単結晶薄膜を用いた. また膜厚が 240,320,475 µm(基板サイズ:11 mm×11 mm)の三種類の試 料を使用し、実験を行った. YIG は保磁力付近で明瞭な迷路状磁 区構造を形成することが知られているため、磁区構造データの取 得が容易であり、磁区構造の複雑性の定量化やエネルギー模型の モデリングなど、原理検証を行う上で適切な試料である 5-70,170. 磁区構造測定では、極 Kerr 顕微鏡を用いて磁化の空間分布の垂直 成分を測定した. 偏光板の角度をクロスニコル配置から数度回転 させ、磁気コントラストが最大となる角度で磁区画像を取得した. 測定における 45 度回転子の波長係数は 0.065 deg / nm であり, 十分な Kerr 回転角を有することから、明瞭な磁気コントラスト を得ることができる. カメラは CCD カメラを使用した. 視野は 1699 µm×1699 µm (画像サイズ 1024 pixel×1024 pixel) で情 報を 16 bit で記録した. 露光時間は 16 bit の階調を最大限活用 するため十分長くとった. また光の照射ムラを消去するために, バ ックグラウンド処理を行った.外部磁場は試料面直方向に印加し, 約 200 Oe から-200 Oe の範囲で約 3 Oe 刻みで準静的に変化

させ、ヒステリシス一周分となる 244 枚の磁区画像を連続的に取得した (Fig. 2). 磁区構造の磁気コントラストの総和を用いて磁気モーメントを算出し、マクロな磁気ヒステリシス曲線を作成した. なお飽和磁界は 150 Oe,キュリー温度は 250 ℃,飽和磁化は 3.2×10³ emu/cc であった. 再現性を確認するため、ヒステリシス 2 周分の磁区構造データ 488 枚を取得した. なお得られた磁区 画像は前処理として大津法で二値化処理をしている.

エネルギー地形の描画には、PH による特徴抽出とPCA による 次元削減を実施した. まず PH 解析により磁化反転における各磁 区構造画像を PD へと変換した. 次に PD を正定値カーネルによ って特徴量ベクトルに変換し、スタックすることで特徴量行列と した. PD による特徴量行列は1.99×106次元以上の高次元データ となるため、PCA を用いて二次元平面上でデータの変化の振る舞 いを可視化した.得られた PC1, PC2 はデータの変化を説明する 基底ベクトルであるため、これを説明変数としてエネルギー地形 のモデリングで活用した. なお基底ベクトルの寄与率を評価し, 元 データの情報をどれだけ保持しているかを検証している. 磁区構 造の変化を特徴量空間でうまく表現できていれば、磁区構造と諸 物性の対応付けが可能となり、説明能力と解釈性の高いエネルギ ーモデルが期待できる.また膜厚依存性についても同様の解析を 行い、PCAの散布図上でのデータの変化の傾向を解析した.一連 の解析を通じて、基底ベクトルの頑健性や解析手法の有用性を検 証した.

また、磁区構造の画像情報を用いて擬交換エネルギーの推定を行った。擬交換エネルギーは、磁化が垂直磁化だと仮定して算出している¹⁶. 交換スティフネス定数は1.72×10⁻¹⁵ erg/cc,磁気モーメントは5.69×10⁻⁷ emu/pixelとした。以上の手順で得られた説明変数と擬交換エネルギーを用いて拡張型 Landau 自由エネルギー地形をモデリングした。



Fig. 2 Schematic diagram of the Kerr microscope measurement system.

The magnetic domain structure was acquired with linearly polarized LED light in a polar Kerr configuration. The magnetic field was applied perpendicular to the sample surface. The CCD camera and the electromagnet were linked by PC control. Image acquisition and magnetic field scanning were carried out automatically to obtain big data of the magnetic domain structures.

4.実験結果および考察

4.1 磁区構造,特徴量,エネルギーの解析

Fig. 3 ((a)-(j))は, 極 Kerr 顕微鏡で解析した YIG 試料 (膜厚 475 µm)の外部磁場依存のヒステリシス一周分の磁区構造である. なお図は、測定視野 1699 µm×1699 µm のうち 833 µm×833 µm の領域を抜粋表示しているが、データ解析には測定視野全域を利 用している. 測定の結果, 明瞭な磁気コントラストと連続的な磁区 構造変化を確認できた.画像における白(黒)領域が上(下)向きの磁 化に対応しており、外部磁場に依存して磁区構造が連続的に変化 する振る舞いを確認できた. 磁区構造変化を目視で確認したとこ ろ、白色に飽和した状態から黒色のドット上の逆磁区が核生成に よって生成される(Fig.3(a)). 次に核を起点として細線状の逆磁 区が伸張し、核同士の連結や細線の分岐を生じながら微細組織が 形成される(Fig. 3(b)). 細線の伸張が終わると、磁壁の移動によ り磁区幅が増大しながら逆磁区が拡大する(Fig. 3(c)-(d)). その 後は磁区構造の複雑性が徐々に増加しながら迷路状磁区構造が形 成され保磁力領域に至る(Fig.3(e)). 保磁力を経てさらに磁区幅が 増大して逆磁区が拡大し,白色の磁区幅が減少する(Fig.3(f)-(h)). 逆磁区の拡大により白色の磁区幅が細線化すると、細線が千切れ ながら縮小していく(Fig.3(i)). 最終的には白色の磁区がドット 状の核となり(Fig.3(j)),のちに完全に黒色に飽和する.一連の磁 区構造変化は先行研究をよく再現しており, 適切なデータセット を得ることができた 5~7.

Fig.3(k)-(t) は一連の磁区構造から作成した PD である. 磁区構 造の連続変化に伴って PD の generator の分布も右上に連続変化 する様子が定性的に確認できる. PD は白ベースの パーシステン トホモロジーであり、白色の磁区のつながり方の特徴を表す. Fig. 3 (k)の PD は殆ど generator が生成されず, 白色磁区が大きく広 がっていることと対応している. Fig. 3(1) - (n) の PD は対角から 離れた場所に generator がまばらに分布していることから、逆磁 区の生成によって白の磁区が浸食され、幅の広い微細組織が形成 されていることと対応している. また Fig. 3(o) - (q) の PD は, 尖 った山状の generator の分布が確認できる. これは白色磁区の磁 区幅が徐々に細くなりつつ、入り組んだ逆磁区が生成されること と対応している. なお本図が保磁力領域に対応しており, 迷路状磁 区構造の特徴を抽出している. 最終的に Fig. 3 (r) - (t) では generator の分布が右上に移動しながら収束して消失する振る舞 いを示す.これは白色磁区の幅がさらに細くなり、周囲の黒色磁区 に飲み込まれながら最終的に逆方向に飽和する振る舞いに対応し ている. なお黒ベースの PD では逆の振る舞いを示すことも確認 済みであり、白ベースと黒ベースの PD では表裏一体の振る舞い を示す. よって PH 解析により, 磁区構造の特徴を抽出できてい ることを確認できた.

Fig. 4 (a) に YIG におけるヒステリシスループを示す. 縦軸は磁気モーメント,横軸は印加した外部磁場を示す. なお Fig. 4 (a) 図中の(a) - (j) は Fig. 3の(a) - (j) の磁区構造に対応している. (a) で核生成が生じ,(b) で曲線の折れ曲がりが生じ,逆磁区成長領域(c) - (i) は直線的に変化することが確認できる. Fig. 4 (b)は、ヒス

テリシスループ1周分の磁区画像情報を元データとして直接的に 擬交換エネルギーを算出した古典的なエネルギー地形である.視 野範囲は833 µm×833 µmに対応し、縦軸は擬交換エネルギー、 横軸は印加した外部磁場を示す.逆磁区成長領域でエネルギーの 分布に幅があり,保磁力付近でおおむね極大値を取る様子が観察 された.よって古典的な磁気ヒステリシスループとエネルギー地 形を生成できていることが確認できた.



Fig. 3 Magnetic domains (a) - (j) and PDs (k) - (t) with a variation of external magnetic field. (a) - (j): Magnetic domain structures continuously changes according to the external magnetic field. (k) - (t): PDs also continuously change according to the change of the magnetic domain structure, and quantifying microstructure of magnetic domain. PDs were used as input for machine learning.



Fig. 4 (a) Magnetic hysteresis curve of a YIG thin film (t = 475 μ m). (b) Classical energy landscape of pseudo-exchange energy. The coercivity region is located almost at the top of the energy landscape.



Fig. 5 Extended Landau free energy landscape drawn by PH and PCA.

Extended Landau free energy model is the energy landscape drawn in the information space, with the features generated by PH and PCA as explanatory variables. The relationship between the magnetic domain structure and the magnetization reversal process is connected through energy. PC1 and PC2 are the eigenvectors obtained by PCA, and the colour is the pseudo-exchange energies. Red arrow shows the magnetization reversal path from saturation to coercivity to saturation.

4.2 拡張型 Landau 自由エネルギー地形の作成

本節では、磁区構造の特徴量と擬交換エネルギーを用い て描画した拡張型 Landau 自由エネルギー地形について述 べる(Fig. 5). PC1 および PC2 は、PCA によって定められ た基底ベクトルであり、散布図の座標は PC1、PC2 の固有 値に対応している.本図のデータ点は磁区画像に対応して おり、磁区構造の形状の変化を二次元平面上で可視化した こととなる.なお PC1, PC2 の累積寄与率は 82.4%であり、

PCA の結果は磁区構造変化をよく表現できていると言える. 各データ点のカラーマップは擬交換エネルギーに対応 している. なおエネルギー項は機械学習に用いていない点 も留意されたい.

次にデータの変化の傾向,つまり磁化反転過程に着目する と、PC1 および PC2 は図中赤い矢印のように連続的に変 化している.実際の磁区構造と比較すると、形状の連続変 化と良く対応していることが確認できる.なおデータ間の 距離は PD のベクトル間の距離に対応しており、押し並べ て言えば磁区構造の差異に対応している.保磁力領域は PC1 が最大で PC2 が概ねゼロの位置をとった.これより 保磁力解析では PC1 が有用であることが推察される.また



Fig. 6 Thickness variation of the extended Landau free energy landscape. A continuous and common energy landscape is drawn.

保磁力近傍ではエネルギー地形は平坦であることが確認で きる.これは磁区形状の変化に対して擬交換エネルギーの コストが少ないことを意味しており,保磁力の小さな軟磁 性材料の特性と良く合致する結果である.このようにして, 本モデルではエネルギーを基盤に形状と磁化過程の関係性 を解析することができる.

次に YIG 薄膜の各試料について解析した結果を示す(Fig. 6). 赤色の矢印で示すように,磁化反転経路は各試料で共 通した経路を示すことが確認できる.またエネルギー地形 も連続するエネルギー曲面が描けている.これにより PC1,



Fig.7. Correlation between PC1 and magnetization. Eigenvalue of PC1 can be regressed by a simple second-order curve of magnetization (red curve)



Fig. 8 Energy landscape respect to PC1. (a) Energy landscape drawn from the two - loop dataset. (b) Selected quarter – loop data. The pseudo-exchange energy increases with magnetization reversal from saturation to coercivity, where the coercivity region corresponds to the maximum (saddle point) of the energy landscape. (c) Magnetic domains (a) - (e), they are same pictures as Fig.3 (a) - (e).



Fig. 9 Detailed analysis of the extended energy landscape. The gradient of the pseudo-exchange energy for PC1 is used to analyze the energy barrier. Clear maxima are observed in regions (I) and (II) where the mode of domain formation changes. It suggests that the change of the domain formation requires the consumption of exchange energy. We could also visualize the small energy barriers (III) and (IV). It is suggesting as a hidden feature that was not recognized by human eye.

PC2 は磁区構造変化を表現する頑健なベクトルであり,エ ネルギー地形を説明する有用なベクトルであることが示唆 される.さらに保磁力点に注目すると Fig.5 と同様に,PC1 は極大で PC2 はゼロの位置を取ることが確認できる.これ により PC1 は試料の膜厚に依らず,保磁力解析に有用な特 徴量であることが改めて確認できた.以降は PC1 に着目し て,諸物性との相関解析やエネルギー地形の解析を進める.

次に従来型 Ginzburg-Landau 理論の拡張を目的に,秩 序変数である磁化 *M* と PC1 の相関解析をおこなう. Fig. 7 は, Fig. 5 の結果を基に PC1 と磁化の相関関係を示したも のである. その結果, PC1 は磁化 Mの単純な二次関数で回帰することができ,以下の式(7)が得られた.

$$PC1 = -1.12M^2 + 3.74M + 125.98 \tag{7}$$

これにより,磁化と特徴量の関係性を構築することでき, 物理パラメータと情報空間の双方向接続が可能となった. また多項式の利用によって微分の処理が容易となるため, 次節で議論するエネルギー勾配の計算や保磁力解析の見通 しが良くなる点にも注目したい.

4.3 拡張型 Landau 自由エネルギーモデルの解析

本節では拡張型 Landau 自由エネルギー地形における PC1 と擬交換エネルギーの相関関係に着目して保磁力メカ ニズムの解析をおこなう. Fig. 8 は PC1 を横軸に, 擬交換 エネルギーを縦軸にとった擬交換エネルギーの地形である. なお Fig. 8 (a)では統計性を向上させるため 2 ループ分の データを用いている.また簡単のため白色の飽和状態から 保磁力領域に至る減磁過程のデータを抜粋したものを Fig. 8(b)に示す.エネルギーは磁化反転に伴って飽和から保磁 力まで単調に増加しており, 保磁力付近が極大(鞍点)に

対応していることが確認できる.外部磁場の変化に伴って 磁区構造の複雑性が増すことから、磁壁エネルギーの起源 である擬交換エネルギーの増加を反映していると示唆され る. また前節の結果を踏まえると、保磁力近傍では擬交換 エネルギーのコストが小さく、速やかに磁化がゼロに近づ くこともわかる.特に,エネルギー地形の勾配に着目する と, Fig. 8 の(I)および(II)付近で勾配が明確に変化している ことが目視で確認できる.これを磁区構造と対応付けると, 変化点(I)は, Fig. 8(c) - (a)の逆磁区の核生成から Fig. 8 (c) - (b)の細線状の磁区が伸張する過程の境界に対応して いる. また変化点(II)は Fig. 8 (c) - (c)の磁区構造の分岐か ら, Fig. 8 (c) - (d)の磁区幅が増大する過程の境界に対応し ている. すなわちエネルギー地形の傾きの変化点は、ドメ イン成長のモードの変化に対応すること明らかとなった. これにより,磁壁移動の複雑な挙動と保磁力の関係性を擬 交換エネルギーを介して双方向で接続することができた. 次にエネルギー地形の勾配を詳細に解析する.式(3)に基づ くと磁化は特徴量の関数として表現可能であり、実際に式 (7)によって PC1 と磁化の対応関係は構築されている.ま た古典的な保磁力の式(2)は、変数変換によって式(4)のよう に特徴量を用いた形式で表現される.これを PC1 に着目し て整理すると,

$$H = -\frac{\partial F}{\partial M} = -\frac{\partial F(PC1)}{\partial PC1} \frac{\partial PC1}{\partial M}$$
(8)

となる.第一項は特徴量空間におけるエネルギー勾配で, 磁壁移動におけるエネルギー障壁を定量化したものであり, Fig. 8 の微分によって簡便に得られる.なお第二項は Fig. 7 と式(3)によって既に得られている.

上記の手順で解析したエネルギー勾配の振る舞いを Fig. 9 に示す.また説明のため、白色の飽和状態から保磁力領域に至る減磁過程のデータを抜粋して表示している.Fig.8 で議論した成長モードの変化点(I)と(II)は、Fig.9 でそれぞれ極大を示していることが確認でき、また途中にも小さな凹凸があることが確認できる. H が 0.2~2.0×10⁻⁷ erg 程度のエネルギー障壁を乗り越えることで、磁区構造の成長モードが変化していることを示している. つまり逆磁区の

核生成から線状構造の延伸するモード,そして磁区幅が 徐々に増加するモードに移るには,それぞれ交換相互作用 エネルギーを消費する必要があることを示唆している.な お黒色の飽和状態から保磁力に至るエネルギー勾配の振る 舞いは,正負が正確に反転していた.磁気ヒステリシスの 往路と復路を考慮すると,微分値の符号は反転するためリ ーズナブルな結果である.なお,ループ毎でエネルギー障 壁の位置が再現することも確認している.

また、小さなエネルギー障壁まで注目すると(III)、(IV)に 小さな凹凸があることが確認できる. Fig. 3 の元の磁区構 造と対応付けて比較すると、目視では磁区構造の明確な差 異を確認することができなかった.ただし領域(III)、(IV)の エネルギー障壁は再現しており、本解析で得られた微小な エネルギー障壁は、これまで人間が認識できなかった新し い特徴である可能性が示唆される.最後に保磁力近傍にお けるエネルギー勾配に着目すると、*H*はほぼゼロであり平 坦なエネルギー地形であることが改めて確認できる.

本研究では擬交換エネルギーに着目して保磁力メカニズ ムを議論したが、静磁エネルギーや磁気異方性エネルギー でも同様の議論を行うことができる.磁気的エネルギーに は加算性が保証されているため、各項の詳細解析によって 保磁力現象の理解が進むことが十分期待される.さらには、 磁気弾性エネルギーや応力のエネルギー項も追加可能なた め、磁歪材料等の様々な系に展開可能なモデルとなること が期待される.本研究では拡張型 Landau 自由エネルギー モデルを導入することで、微細な領域の磁区構造と巨視的 な磁化反転過程を関係構築することができた.本解析にお ける数理モデルからは、保磁力におけるエネルギーの寄与 や磁区構造変化の関係性を議論することができるため、 様々な応用が期待できる.

5. まとめ

本研究では実材料の保磁力メカニズムを解析することを 目標に、磁化の空間的な不均一性を取り扱え、磁化反転過 程を説明可能な「拡張型 Landau 自由エネルギーモデル」 の作成と実証を行った.極 Kerr 顕微鏡で YIG の大規模磁 区構造データを取得し、PH による特徴抽出・PCA による 次元削減・イジング模型に基づく擬交換エネルギーの算出 をそれぞれ行い、情報空間上で新たなエネルギー地形を描 画した. PH 解析からは微細組織の特徴を捉えるだけでな く、磁化を単純な二次関数で回帰可能なことが分かり、磁 化反転過程を記述する良質な記述子を抽出することができ た. また擬交換エネルギーと PC1 の相関解析の結果, エネ ルギーの勾配に応じて逆磁区生成、伸張、分岐、磁区幅の 増大など磁区構造変化のモードが順次変化することがわか った. さらに擬交換エネルギーを特徴量で微分して詳細解 析した結果, エネルギー障壁を乗り越えることでモードの 変化が起こっていることが分かった.特に微小なエネルギ 一障壁では,目視で形状変化を認識することは困難であり,

人間が気づかなかった特徴を捉えている可能性がある.こ のように、本モデルでは微細領域の磁区構造と巨視的な磁 化反転過程をエネルギーを介して関係接続することに成功 した.本モデルでは、磁気的エネルギーの加算性を利用す ることで、様々な相互作用を取り込むことができ、保磁力 のみならず磁歪効果や結晶成長など様々な応用展開が期待 される.

謝辞 本研究は JSPS 科研費基盤研究 A (21H04656)の助成 を受けたものである.

References

- 1) E. P. Wohlfarth : *Handbook of Magnetic Materials Volume 2*, 155, (Elsevier, North Holland, 1986).
- Tsukahara, H., Iwano, K., Mitsumata, C., Ishikawa, T. and Ono, K. : *AIPAdv*, 7, 056224, (2017).
- 3) Toga, Y., Miyashita, S., Sakuma, A. and Miyake : *npj Comput. Mater.*, 6, 67, (2020).
- Iwano, K., Mitsumata C. and Ono, K. : J. Appl. Phys., 115, 17D134, 1-3, (2014).
- 5) Seul, M. & Andelman D. : Science, 267, 476, (1995).
- 6) Kronseder, M., Meier, T. N. G., Zimmermann, M., Buchner, M.,

Vogel, M. and Back, C. H. : Nat. Commun., 6, 6832, (2015).

- Bathany, C., Le Romancer, M., Armstrong, J. N. and Chopra, H. D. : *Phys. Rev. B*, 82, 184411, (2010).
- Hubert, A. & Shafer, R. Magnetic domains : *The Analysis of Magnetic Microstructures*, (Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 2008).
- 9) Kotsugi, M., et al. : Appl. Phys. Express, 3, 013001, (2010).
- 10) Stöhr, J., Wu, Y., Hermsmeier, B. D., Samant, M. G., and Harp, G. R. : *Science*, **259**, 658, (1993).
- Edelsbrunner, H., Letscher, D. and Zomorodian : Discrete Comput. Geom., 28, 511, (2001).
- 12) Hiraoka, Y., et al. : PNAS, 113, 7035, (2016).
- 13) Obayashi, I., Hiraoka, Y. and Kimura, M. : J. Appl. Comp. Topo., 1, 421, (2018).
- 14) T. Yamada, Y. Suzuki, C. Mitsumata, K. Ono, T. Ueno, I. Obayashi, Y. Hiraoka, and M. Kotsugi : J. Vac. Sci. Technol. 62, 153, (2019)
- 15) Pedregosa, F., et al. Scikit-learn: J. Mach. Learn. Res., 12, 2825, (2011).
- 16) H. Ohtori, K. Iwano, C. Mitsumata, Y. Takeichi, M. Yano, A. Kato, N. Miyamoto, T. Shoji, A. Manabe and K. Ono: *J. Phys. Conf. Ser.*, **502**, 012010, (2014)
- 17) Ibrahim, N. B., Edwards, C. and Palmer, S. B. : J. Magn. Magn. Mat. 220, 183, (2000).

2021年10月8日受理, 2021年12月24日採録