強磁性酸化物薄膜における磁界誘導電気分極の直流バイアス電圧依存性

DC Bias Voltage Dependence of Magnetic-Field-Induced Electric Polarization in Ferromagnetic Oxide Films

加島 篤・大橋敏弘・井上光輝^{**}・藤井壽崇^{***}

北九州工業高等専門学校, 福岡県北九州市小倉南区志井 5-20-1 (〒802-0985)

^{*}豊橋技術科学大学, 愛知県豊橋市天伯町雲雀ヶ丘 1-1 (〒441-8580)

^{**}CREST, 科学技術振興事業団, 埼玉県川口市本町 4-1-8 (〒332-0012)

^{***}愛知工科大学, 愛知県蒲郡市西迫馬乗 50-2 (〒443-0047)

A. Kajima, T. Ohashi, M. Inoue^{**}, and T. Fujii^{***}

Kitakyushu National College of Technology, 5-20-1 Shii, Kokura-minami-ku, Kitakyushu, Fukuoka, 802-0985

^{*}Toyohashi University of Technology, 1-1 Hibarigaoka, Tempaku-cho, Toyohashi, Aichi 441-8580

^{**}CREST, JST, 4-1-8 Honcho, Kawaguchi, Saitama 332-0012

^{***}Aichi University of Technology, 50-2 Manori, Nishihazama-cho, Gamagori, Aichi 443-0047

In the past several years, we have reported that electric susceptibility χ' is subject to change with external magnetic field H in ferromagnetic nano-composite oxide sputtered films with a $\text{Bi}_2\text{O}_3\text{-Fe}_2\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ ternary system. The charge displacement current assisted by H and the electric polarization induced by applying a small ac magnetic field, $\Delta P_{\text{H}}(\omega)$, were measured to confirm whether the susceptibility change with magnetic field, $\Delta\chi'(H)$, is intrinsic.

In the present study, we found that the detected $\Delta P_{\text{H}}(\omega)$ signal changes depending on both the direction of the magnetic field and the dc bias voltage applied perpendicular to the film plane. To explain these experimental results, we made some alterations to the previous model based on magnetization rotation. From capacitance vs. voltage measurement, it was found that, since we used Si-wafers as substrates, a depletion layer attributed to the MIS structure is formed in the film-to-Si interface. This effect could ultimately be eliminated by applying a forward-biased electric field.

Key words: EM-effect, ferromagnetic oxide films, electric susceptibility, nano-composites, reactive rf-sputtering

1. はじめに

我々は、高周波反応性スパッタ法で作製した $\text{Bi}_2\text{O}_3\text{-Fe}_2\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ 系磁性酸化物薄膜を用いた薄膜コンデンサにおいて、直流磁界の印加によって膜の帯電率が室温で最大1%程度変化することを見出した^{1,2)}。新型の電気磁気効果と考えられるこの現象は1 Hzから1 MHzの広い周波数範囲で観察された。ここで磁界による帯電率変化 $\Delta\chi'(H)$ はヒステリシスを示し保磁力 H_c で極小となるなど、磁化特性と密接に関係した現象であることが分かった。また、現象論的モデルを用いて試料の磁化曲線から帯電率変化を求めた理論曲線で、測定結果が非常によく再現できることが分かった^{3,4)}。

次に、帯電率変化が見かけの現象では無いことを示すために、磁界印加時の変位電流を測定し、膜表面に誘起される電荷量が磁界の大きさに依存して変化し、帯電率変化と類似の特性を示すことを確認した。更に、交流磁界印加による薄膜コンデンサの誘起電圧を測定して、磁界によって電気分極が誘導されることを確かめた。その結果、磁界による帯電率や電荷量の変化は、一種の電気磁気効果[(EM)_H-効果]による磁界誘導電気分極に起因する現象

であることが分かった⁵⁾。

これら薄膜の結晶構造は、XRDや電子線回折法を用いた過去の研究において、熱処理の後もアモルファス状態を保っていることが分かっている⁶⁾。しかしながら数千Oeに及ぶ高い保磁力と $10^7 \Omega\text{m}$ の高い電気抵抗から、実際はglass-network状の誘電性母体中に回折法では検出できない微細な強磁性クラスタが分散したナノ・コンポジット構造をとっていると推察される。しかし、このような系で磁界誘導電気分極が発現するメカニズムについてはまだ明らかにされておらず、その発現機構解明には詳細な電気分極特性の測定が不可欠である。

そこで今回は、先ず直流磁界や微小交流磁界の印加方向を変えて誘導される電気分極を測定した。また、膜に直流バイアス電圧を加えた状態で磁界誘導電気分極を測定し、直流電界によって大きな変化が生じることを見出した。そしてこれら実験結果が、誘電性母体中に分散した強磁性ナノ・クラスタの磁化回転に伴う磁歪・圧電効果を考慮したモデル⁵⁾を一部修正することで、定性的に説明できることが分かった。また下地基板にSiを用いていることによって生じるMIS構造が電気分極に及ぼす影響についても考察を行った。

2. 実験方法

薄膜試料は、高周波プレーナー・マグネトロン型スパッタリング装置を用い、高純度試薬を調合した粉末ターゲットをAr、O₂雰囲気中で反応性スパッタして作製した。基板には $\rho=0.80\sim1.20 \Omega\text{cm}$ の低抵抗n型Siウエハーを用いた。スパッタ時の基板温度は150°Cに保ち、約1 μm 厚に成膜した。膜組成は、大気中熱処理によって大きな磁化を発現する $0.18\text{Bi}_2\text{O}_3\text{-}0.70\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-}0.12\text{PbTiO}_3$ に固定した。また後熱処理は最大磁化になる600°C一定で3時間行った。続いて薄膜上部にAl電極を蒸着し、下部電極であるSi基板からのohmic contactを確保するため、粗く研磨したSi基板裏面にInを蒸着して平行平板型薄膜コンデンサを形成した。

交流変調法を用いた磁界誘導電気分極の測定システムをFig. 1に示す。試料の薄膜コンデンサは、厚さ0.1mmの銅箔製シールドケースに納められ電磁石の空隙中にセットされる。装置の制約から、印加する直流磁界は最大4.5 kOeである。また、直流磁界と

Fig. 1 Circuit diagram for measuring electric polarization induced by applying an ac magnetic field.

同軸に配置した空心のソレノイドコイルによって 102.5 Hz, 最大値 75 Oe の低周波交流磁界を重畳させ、電気分極の誘導によって生じた微小交流電圧を検出する。バックグラウンド・ノイズを除去するためツイストペア線を用い、探りコイルの誘起電圧との差動をとって信号電圧だけをロックインアンプに入力する。交直両方の磁界はホール素子で同時に計測し、直流磁界を横軸に誘導電気分極によって生じた信号電圧を縦軸にして X-Y レコーダで記録した。

また、磁界誘導電気分極に対する直流電界の影響を調べるために、差動増幅器の入力部に乾電池を電源とする直流バイアス電圧 V_0 の付加回路を設置して、ツイストペア線を通してシールドボックス内の試料に V_0 を印加した。

3. 実験結果と考察

3.1 磁界誘導電気分極の磁界印加方向による変化

以前報告した磁界による帯電率変化 $\Delta\chi(H)$ の測定では、直流磁界 H の印加方向を膜面に平行または垂直のいずれにとっても、電極間（膜厚方向）で計測した $\Delta\chi(H)$ の大きさやヒステリシス曲線の形状に変化は見られなかった¹⁾。そこで、磁界誘導電気分極についても、磁界印加方向による変化の有無を調べた。この測定では、微小交流磁界 $\tilde{h}(\omega)$ を直流磁界 H と同一方向に重畳して試料の薄膜コンデンサに印加し、分極の変化は膜厚方向に発生する交流電圧として検出している。

Fig. 2 に示すように、磁界印加方向が膜面に垂直な場合は、誘導された電気分極 $\Delta P_h(\omega)$ はヒステリシスを伴う変化が観察されるのに対し、膜面に磁界を印加した場合は信号が全く検出されなかった。この結果は、磁界印加方向と信号検出方向が平行な場合にのみ $\Delta P_h(\omega)$ 信号が得られることを示している。

3.2 磁界誘導電気分極の直流バイアス電圧依存性

次の段階として、直流磁界 H と微小交流磁界 $\tilde{h}(\omega)$ を加えた状態

で、直流電界 E を膜厚方向に印加した場合の $\Delta P_h(\omega)$ の変化を調べた。膜面に垂直に磁界を印加した場合の測定結果を Fig. 3 に示す。ここで V_0 は薄膜コンデンサに印加する直流バイアス電圧で、Si 基板を+にする極性を $V_0 > 0$ としており、このとき E は基板から Al 電極へ向かっている。また、 H も Si 基板から Al 電極へ向かう方向を正としている。

$V_0 = 0$ (Fig. 2(a) の曲線に相当) から V_0 を負に変化させていくと、 $H < 0$ では $\Delta P_h(\omega)$ 信号に大きな変化は見られないが、 $H > 0$ では $\Delta P_h(\omega)$ が徐々に増加し $V_0 = -0.8$ V ではほぼ左右対称な曲線になる。一方、 V_0 が正の場合は H の極性によって曲線の形状が大きく異なり、 $V_0 = +0.8$ V では $\Delta P_h(\omega)$ が $H < 0$ で増大し $H > 0$ で下に凸の曲線となるなど複雑な変化を示している。

なお Fig. 2(b) と同様に磁界を膜面に印加した場合は、 V_0 を変化させても $\Delta P_h(\omega)$ 信号は検出されなかった。

3.3 磁化回転モデルによる考察

これまで論文で展開してきた磁化回転モデルを一部修正することで、本報を含め全ての実験結果を説明することができることを

Fig. 2 (EM)_H curves of the film, where H was applied (a) perpendicular and (b) parallel to the film plane.

Fig. 3 (EM)_H curves of the film when a dc bias voltage V_0 was applied perpendicular to the film plane.

示す．先ずモデルの概要を記す．

膜構造は強磁性酸化物ナノ・クラスタがガラス様誘電性母体中に無秩序に分散しているものとする．クラスタは単磁区で同一の飽和磁化 M_s をもち、磁化過程は磁化回転によって生じるものと仮定する．更に磁界 H の下での磁化回転角はクラスタ毎に異なっているが、試料全体の平均ではFig.4 に示すように頂角 θ の円錐面上に傘を開くように一様に分布するものとする．したがって

$$\cos\bar{\theta} = M(H)/M_s, \quad (1)$$

の関係がある．また、クラスタ間の磁気双極子相互作用や磁歪によるクラスタの形状変化によって、クラスタ周辺の誘電性母体 glass-network が変形を受け、電気分極を発現させるイオン変位を助長させるものとする．この効果が $\{M(H)\}^2$ に比例すると仮定すると、 H によって誘導される帯電率変化 $\Delta\chi'(H)$ は、

$$\Delta\chi'(H) = \left| \Delta\chi'(H) \right|_{\max} \left(\frac{M(H)}{M_s} \right)^2, \quad (2)$$

Fig. 4 Simplified model of magnetization rotation.

となる．実際、式(1)で実験結果を極めてよく再現できることが分っている^{2,3)}．

次に、 H に微小交流磁界 $\tilde{h}(\omega) = \Delta h e^{j\omega t}$ を同じ方向(z -軸)に重畳させた場合は、

$$\begin{aligned} \Delta\chi'(\mathbf{H} + \tilde{\mathbf{h}}(\omega)) &= \left| \Delta\chi'(\mathbf{H}) \right|_{\max} \left(\frac{M(\mathbf{H} + \tilde{\mathbf{h}}(\omega))}{M_s} \right)^2 \\ &\approx \left| \Delta\chi'(\mathbf{H}) \right|_{\max} \left\{ \left(\frac{M(\mathbf{H})}{M_s} \right)^2 + \frac{d}{dH} \left(\frac{M(\mathbf{H})}{M_s} \right)^2 \tilde{h}(\omega) \right\}, \quad (3) \end{aligned}$$

と書ける．上式中、右辺第1項は式(2)であり、第2項は

$$\Delta\chi^{(ij)}(\tilde{\mathbf{h}}(\omega)) = \frac{d}{dH} \left(\frac{M(\mathbf{H})}{M_s} \right)^2 \tilde{h}(\omega) t_{ij} \quad (4)$$

であり、 $\tilde{\mathbf{h}}(\omega)$ による帯電率変化テンソルを表す．ただし、式(4)中の t_{ij} は、直流電界 E の下で検出される電気分極が $\tilde{\mathbf{h}}(\omega)$ と平行なときに限られるという実験条件から導入したもので、 $t_{zz} = 1$ 、 $t_{ij} = 0$ (その他の ij)である[付録参照]．これから、交流電界 $\tilde{\mathbf{e}}(\omega)$ で誘導される一次の交流電気分極変化 $\Delta P_e^{(i)}(\omega)$ は、式(5)で与えられる．

$$\begin{aligned} \Delta P_e^{(i)}(\omega) &= \Delta\chi'(\mathbf{H}) \tilde{e}_i(\omega) \\ &= \left| \Delta\chi'(\mathbf{H}) \right|_{\max} \left(\frac{M(\mathbf{H})}{M_s} \right)^2 \tilde{e}_i(\omega), \quad i = x, y, z \quad (5) \end{aligned}$$

また、直流電界 E の下、微小交流磁界 $\tilde{\mathbf{h}}(\omega)$ で誘導される一次の交流電気分極変化 $\Delta P_E^{(i)}(\omega)$ は式(6a,6b)で与えられる．

$$\begin{aligned} \Delta P_E^{(z)}(\omega) &= \Delta\chi'(\tilde{\mathbf{h}}(\omega)) E_z \\ &= \left| \Delta\chi'(\mathbf{H}) \right|_{\max} \frac{d}{dH} \left(\frac{M(\mathbf{H})}{M_s} \right)^2 \tilde{h}(\omega) E_z, \quad (6a) \end{aligned}$$

および

$$\Delta P_E^{(x)}(\omega) = \Delta P_E^{(y)}(\omega) = 0, \quad (6b)$$

となる．

これに加えて、電界を印加しなくても $\tilde{\mathbf{h}}(\omega)$ の印加だけで電気分極変化を生じる．これは一種の電気磁気効果 [(EM)_H-効果] といえるものである．この理由は付録で述べるが、次式で与えられる．

$$\begin{aligned} \Delta P_h^{(z)}(\omega) &= \Delta\alpha(\mathbf{H}) \tilde{h}(\omega) \\ &= \zeta \left| \Delta\chi'(\mathbf{H}) \right|_{\max} \frac{d}{dH} \left(\frac{M(\mathbf{H})}{M_s} \right)^3 \tilde{h}(\omega) \quad (7a) \end{aligned}$$

$$\Delta P_h^{(x)}(\omega) = \Delta P_h^{(y)}(\omega) = 0. \quad (7b)$$

ただし、式(7a)中の $\Delta\alpha(\mathbf{H})$ は、電気磁気感受率に対応する係数であり、 ζ は誘電性母体の圧電定数に關係する定数である。ところで $\mathbf{E}$ と $\mathbf{H}(\omega)$ を同時に印加した場合は、式(6a)と式(7a)の和であり、

$$\Delta P_h(\omega) = \zeta \left[\Delta\chi'(\mathbf{H}) \right]_{\max} \frac{d}{dH} \left[\left(\frac{M(\mathbf{H})}{M_s} \right)^3 + \eta E \left(\frac{M(\mathbf{H})}{M_s} \right)^2 \right] \tilde{\mathbf{h}}(\omega), \quad (8)$$

となる。ただし、 η は直流電界の効果を表す定数であり、式を簡潔にするため添字 z を省略した。

さて、実験では電界の印加および電気分極の信号検出は試料膜厚方向であるが、磁界印加方向は任意である。今回の実験ではFig. 5に示すように磁界を膜面垂直方向(図(a))と膜面内(図(b))に印加して行った。式(5)は $\mathbf{E}(\omega)$ の印加方向に無関係に同じ電気分極変化が得られることを意味し、既に論文(1)で示した実験結果と一致する。一方、式(6a,6b)は、 $\mathbf{E}$ および $\tilde{\mathbf{h}}(\omega)$ を印加した場合であり、Fig. 5(a)のように $\mathbf{E}$ が $\tilde{\mathbf{h}}(\omega)$ に平行なときだけ電気分極変化が観測されることを示しており、本報の実験結果の重要な結論と一致している。また、式(7a,7b)も電気分極変化が観測されるのは $\tilde{\mathbf{h}}(\omega)$ に平行な成分に限られ、Fig. 2の実験結果と定性的に一致する。

次に、Fig. 3の実験を式(8)の理論と比較した結果をFig. 6に示す。まず、直流電圧を印加していない $\eta E=0$ の場合の $\Delta P_h(\omega)$ をFig. 2(a)の測定結果と比較すると、 H の極性に無関係に左右対称なヒステリシスを描き、近似が悪くなる $|H| \leq H_c$ の領域を除いて曲線の形状や描く方向は定性的に一致している。また直流電界を印加した場合は、 ηE を負に変化するようにして $\Delta P_h(\omega)$ 信号の磁界に対する対称性が失われ、 $\eta E=-1.5$ では $H>0$ の領域で曲線が反転するなど、Fig. 3の結果と定性的に一致している。このように H に対して非対称な曲線は、実験では z -軸方向の電界 E が正となる $V_0>0$ の領域で得られており、 E の効果を表す係数 η は負の値をもつ(磁歪機構では負磁歪)と考えられる。

今回計算に用いた現象論的モデルでは、(EM)_H-効果の発現機構として強磁性クラスタの磁歪と誘電性母体の圧電効果を仮定した。しかし、基板に拘束された薄膜試料という困難さもあって、磁歪

Fig. 5 Geometric configuration of (EM)_H-signal detection.

(a) Detection // $H + \tilde{h}(\omega)$

(b) Detection $\perp H + \tilde{h}(\omega)$

Fig. 6 (a) Magnetization curve [experiment], (b) calculated (EM)_H-curves taking account of the effect of E .

や圧電効果の実験的検証はできていない。磁界誘導電気分極の微視的な発現機構を明らかにすることは、今後の重要な研究課題である。

3.4 MIS構造の形成とその影響

直流バイアス電圧の効果を更に詳しく検討すると、磁化回転モデルを用いて計算したFig. 6(b)の $E=0$ に対応する左右対称な曲線は、Fig. 3の実験結果では $V_0=-0.8$ Vで現れている。これは $V_0=0$ の状態では膜中に $E>0$ の直流電界が存在する可能性を示唆している。試料の薄膜コンデンサは、下部電極であるSi基板上に絶縁性の磁性膜とAl電極を積層しており一種のMIS構造となっている。したがって、 $V_0=0$ の熱的平衡状態で、Alとn型Siの仕事関数の差や磁性膜中の空間電荷などが原因となって、磁性膜とSi表面のバンドが傾斜・湾曲して電界が生じていると考えられる。

これを確認するため、3つの周波数における試料のC-V特性を測定した結果をFig. 7に示す。これはMIS構造特有の特性を示している⁷⁾。 $V_0=0$ でSiの表面付近に空乏層が生じており、磁性膜の静電容量 C_0 に空乏層容量 C_d が直列に入るため薄膜コンデンサ全体の静電容量 C は、 $1/C = 1/C_0 + 1/C_d$ となって磁性膜本来の値 C_0 より小さくなる。 V_0 を負方向に変化するとフラットバンド状態となって空乏層が消滅し、 -2 V以下では蓄積状態となって $C=C_0$

Fig. 7 Capacitance-voltage characteristics of the film.

まで上昇する。一方 $V_b > 0$ の領域では、 $f = 1$ Hzの低周波では反転層の形成によって C の上昇がみられるが、周波数が上昇すると反転層は形成されず空乏層が拡大して C は低下した値に留まっている。このようにMIS構造の形成によってバイアス電圧 V_b と実際に磁性膜にかかる電圧との間に差が生じることが確認された。その一方で、磁界誘導電気分極による C_0 の電荷変化はそのまま C の両端に現れ電圧として検出されるため、 $\Delta P_h(\omega)$ 信号自体は空乏層容量の影響を受けないと考えられる。

しかし、交流電界で励振する帯電率変化 $\Delta\chi'(H)$ の測定では、空乏層容量によって磁性膜にかかる交流電圧も減少するため、見かけの $\Delta\chi'(H)$ が低下することが予測される。これを確認するために、キャパシタンスブリッジ¹⁾の交流電圧源に直流バイアス電圧を重畳して $\Delta\chi'(H)$ を測定した。Fig. 8に示すように $\Delta\chi'(H)$ 曲線はバイアス電圧 V_b によって変化し、各周波数における帯電率変化の大きさ $|\Delta\chi'(H)|_{\max}$ は空乏層が拡大する場合に低下し、Fig. 7のC-V特性を忠実に反映している。よって、MIS構造に伴う空乏層容量が $\Delta\chi'(H)$ の測定結果に影響を与えていることが確認された。

MIS構造の形成は本研究の目的から好ましいものではない。MIS構造のない薄膜コンデンサを実現するため、下部電極として

Fig. 8 Bias voltage dependence of $\Delta\chi'(H)$ for three different frequencies.

不純物濃度の高い超低抵抗率のSi基板や導電性酸化物薄膜を使った実験を進めている。これによって正確な $\Delta\chi'(H)$ の値が求められて、高周波における特性も改善できると考えられる。

4. まとめ

$\text{Bi}_2\text{O}_3\text{-Fe}_2\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ 三元系スパッタ薄膜において磁界によってアシストされた電気感受率の変化が観測され、一種の電気磁気効果[(EM)_H-効果]と考えられる。本研究ではその発現機構の解明に繋げることを目的に、微小交流磁界で誘導された電気分極 $\Delta P_h(H)$ の磁界印加方向による変化やその直流バイアス電圧依存性を測定した。

その結果、 $\Delta P_h(H)$ は磁界印加と信号検出の方向が平行な場合にのみ検出されることが分かった。また直流バイアス電圧の印加によって $\Delta P_h(\omega)$ のヒステリシス曲線の形状が大きく変化することを見出した。これらの現象は強磁性クラスタの磁化回転と形状変化を考慮したモデルによって統一的に説明できることが分かった。

更に、直流バイアス電圧依存性における実験とモデルによる計算結果の比較から、Siを下地基板に用いた薄膜コンデンサでは薄膜-基板インターフェースにMIS構造が形成され、そのため空乏層容量が磁界による帯電率変化の測定値に影響を与えていることが確認された。

付 録

式(4)および式(7a)の導出

直流磁界 $\mathbf{H}$ および微小交流磁界 $\tilde{\mathbf{h}}(\omega)$ は z -方向に印加し、一方直流電界 $\mathbf{E}$ および微小交流電界 $\tilde{\mathbf{e}}(\omega)$ は任意方向に印加するものとする。すなわち、

$$\mathbf{H} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ H \end{bmatrix}, \quad \tilde{\mathbf{h}}(\omega) = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ \tilde{h}(\omega) \end{bmatrix}$$

$$\mathbf{E} = \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix}, \quad \tilde{\mathbf{e}}(\omega) = \begin{bmatrix} \tilde{e}_x(\omega) \\ \tilde{e}_y(\omega) \\ \tilde{e}_z(\omega) \end{bmatrix}. \quad (\text{A} \cdot 1)$$

$\mathbf{H}$ assistの下、誘導される電気分極の $\tilde{\mathbf{h}}(\omega)$ および $\tilde{\mathbf{e}}(\omega)$ による一次の変化は、以下の三つの寄与からなる。

$$\Delta P(\omega) = \Delta P_e(\omega) + \Delta P_E(\omega) + \Delta P_h(\omega)$$

$$= \Delta\chi'(H) \tilde{\mathbf{e}}(\omega) + \Delta\chi^{(ij)}(\tilde{\mathbf{h}}(\omega)) \mathbf{E} + \Delta\alpha(H) \tilde{\mathbf{h}}(\omega). \quad (\text{A} \cdot 2)$$

それぞれの項は本文の式(5)、式(6)および式(7)に対応する。ここで式(4)~式(7)の導出について説明する。 z -軸方向に印加した磁界 $\mathbf{H}$

$+\tilde{\mathbf{h}}(\omega)$ の下での磁化状態はFig. 4であるが、角度 $\bar{\theta}$ の円錐の一断面ABを詳しく描いたものがFig. A1である。 $\tilde{\mathbf{h}}(\omega)$ によって角度 $\Delta\theta$ だけ変化を受けるが、磁化変化 $\Delta\tilde{\mathbf{m}}(\omega)$ を磁界に平行な成分と垂直な成分に分けると、

$$\begin{aligned}\Delta\tilde{m}_{\parallel}(\omega) &= \Delta\tilde{m}(\omega) \sin\bar{\theta} = M_s \Delta\theta \sin\bar{\theta} \\ &= M_s \frac{d}{dH} \left(\frac{M(\mathbf{H})}{M_s} \right) \tilde{h}(\omega),\end{aligned}\quad (\text{A}\cdot 3)$$

および

$$\Delta\tilde{m}_{\perp}(\omega) = \Delta\tilde{m}(\omega) \cos\bar{\theta} = M_s \Delta\theta \cos\bar{\theta} = M(\mathbf{H}) \Delta\theta, \quad (\text{A}\cdot 4)$$

となる。ところが、図の点Aと点Bでは、前者は同相で変化するが、後者は逆相で変化するので互いに相殺される。すなわち、印加した電界の中信号として検出されるのは磁界に平行な成分(z成分)に限られる。式(4)で $t_{zz}=1$ 、 $t_{ij}=0$ (その他の ij)は、この事情を表すためである。

一方、(EM)_H-効果を磁歪機構で説明する。すなわち、強磁性ナノ・クラスタが磁歪をもち、その形状変化を通して帯電率変化を生じるものとする。この事情を説明するため、Fig. A2に示すようにクラスタ集合体の形状は、磁化がランダムな方向を向いた消磁状態 $\mathbf{M}(\mathbf{H})=0$ で球形とし、磁界印加によって磁化回転が生じると $\mathbf{H}$ 方向に伸びて回転楕円体に変形するものとする(図は磁気飽和前の状態を表しており、正磁歪として $\mathbf{H}$ 方向に伸びているように描いてある)。ここで $\bar{\theta}$ 方向の磁化ベクトル $\mathbf{M}$ を持つクラスタに注目すると、クラスタ集合体全体の変形におけるこのクラスタの伸びの寄与はラジアル方向で $\delta \propto \cos^2\bar{\theta}$ となり⁸⁾、その磁界 $\mathbf{H}$ に平行な成分 $\delta_{\parallel}$ は

$$\delta_{\parallel} = \delta \cos\bar{\theta} \propto \left(\frac{M(\mathbf{H})}{M_s} \right)^3, \quad (\text{A}\cdot 5)$$

で表される。したがって $\tilde{\mathbf{h}}(\omega)$ による磁化変化 $\Delta\tilde{\mathbf{m}}(\omega)$ に対応する磁界方向の微小変位は、

Fig. A1 Change in magnetization with an ac magnetic field.

Fig. A2 Elongation of the ferromagnetic cluster assembly caused by magnetostriction.

$$\begin{aligned}\Delta\delta_{\parallel} &= \frac{d\delta_{\parallel}}{dM} \Delta\tilde{m}_{\parallel}(\omega) \propto 3 \left(\frac{M(\mathbf{H})}{M_s} \right)^2 \frac{d}{dH} \left(\frac{M(\mathbf{H})}{M_s} \right) \tilde{h}(\omega) \\ &= \frac{d}{dH} \left(\frac{M(\mathbf{H})}{M_s} \right)^3 \tilde{h}(\omega),\end{aligned}\quad (\text{A}\cdot 6)$$

に比例する。この歪みがクラスタ周辺の誘電体glass-networkを歪ませ、発生した応力による圧電効果によって電気分極を発生するものとする。したがって誘電性母体の圧電定数に比例した定数 κ を乗じて式(7)を得る。また、Fig. A1のように $\Delta\tilde{m}_{\perp}(\omega)$ は相殺されるため、磁界に垂直な方向に磁歪による微小変位は生じず電気分極変化の信号も検出されない。

謝辞 本研究において実験を遂行して下さいました学生諸君、本校専攻科生産工学専攻平成14年度卒の中山 亮氏 (現・豊橋技術科学大学大学院)、電気工学科平成14年度卒の安部英二 (現・(株)ソニー—宮)、石松弘光氏 (現・(株)日鉄エレックス)、梅田公資氏 (現・(株)ソニーセミコンダクタ) と中野琢也氏 (現・(株)レンゴ—)、並びに電気工学科5年生の塩塚充史氏、田上英人氏、田村唯歩季氏、徳一隆晃氏に感謝致します。本研究の一部は、平成14年度文部省科学研究費基盤研究(C)および大幸財団学術研究助成の援助を受けて行ったものである。

References

- 1) A. Kajima, Y. Nakamura, M. Inoue and T. Fujii: *J.Magn.Soc.Jpn.*, **25**,875 (2001).
- 2) T. Fujii, A. Kajima and M. Inoue: Proc. Internat. Conf. on Composites Engng., (2001) Tenerife, Spain.
- 3) A. Kajima, R. Nakayama, M. Inoue and T. Fujii: *J.Magn.Soc.Jpn.*, **26**,445 (2002).
- 4) A. Kajima, R. Nakayama, T. Fujii and M. Inoue: *J.Magn.Magn. Mater.*, **258-259**,597 (2003).
- 5) A. Kajima, R. Nakayama, T. Ohashi, M. Inoue and T. Fujii: *J.Magn.Soc.Jpn.*, **27**,348 (2003).
- 6) A. Kajima, T. Kaneda, H. Ito, T. Fujii and I. Okamoto: *J.Appl.Phys.*, **70**, 3760 (1991).
- 7) A. S. Grove: Physics and Technology of Semiconductor Devices, p.275 (John Wiley & Sons, New York, 1967)
- 8) S.Chikazumi: Physics of Ferromagnetism, **Vol.2**, p.107 (Shokabo, Tokyo, 1984)

2004年3月23日受理, 2004年7月20日採録