

平成21年 5月 8日現在

研究種目：特別研究促進費
研究期間：2008～2008
課題番号：20900107
研究課題名（和文） パノスコピック形態制御希土類系磁性体における粒間磁気相互作用の電子論的研究
研究課題名（英文） Theoretical study on the inter-grain magnetic interaction in the panoscopic assembled rare earth magnetic materials
研究代表者 佐久間 昭正 (SAKUMA AKIMASA)
東北大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号：30361124

研究成果の概要：磁性体の結晶粒間の磁氣的相互作用を電子論的立場から定量的に評価し、(ナノスケールで) パノスコピック形態制御された高機能磁性材料の設計指針を提供することを目的に、密度汎関数法に基づく電子状態の第一原理計算から、バルク $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ および $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ 交換スプリング構造における結晶磁気異方性と層間の交換相互作用エネルギーの評価を行った。さらに、これらの物質定数をもとにランダウーリフシツェーギルバート (LLG) 方程式を用いた磁化曲線のシミュレーションにより、交換スプリング磁石の最大エネルギー積を見積もった。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,600,000	0	1,600,000
総計	1,600,000	0	1,600,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：

キーワード：希土類磁石、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 、交換スプリング磁石、保磁力

1. 研究開始当初の背景

希土類系磁性体や交換スプリング磁石の保磁力等の磁気特性に関する理論的研究は現象論に基づくマイクロ磁気学的アプローチが主である。そこで用いられる粒間の交換相互作用は特性を解析する上で重要なパラメータであり、電子論的立場からの定量評価は材料の選択、制御において重要な知見になると考える。また、粒間の磁氣的相互作用の評価に際して、容易軸方向が異なるような粒間の磁氣的相互作用の電子論による検討は今後他の多くの磁性材料にとっても重要な

研究対象となってくると考えられる。

本研究課題で得られる粒間の磁氣的相互作用に関する基礎的知見は、ナノコンポジット磁性体や積層膜の磁気特性の理解と開発において重要な指針を与え、これら研究分野における新たな展開をもたらすことが期待できる。

2. 研究の目的

希土類金属間化合物永久磁石材料の保磁力は結晶粒界の性質に強く依存すると考えられており、結晶粒界および結晶粒間の微視

的把握と制御は磁気特性の向上において重要である。更に、この結晶粒の微細化と他物質とのハイブリッド化は、これらが持つ物性の平均化された特性とは異なる新たな材料特性を生み出す可能性を秘めており、現在様々な材料系で活発な研究が行われている。これら磁性材料の結晶粒間の磁氣的相互作用を微視的立場から捉え、物質の個別性を考慮して定量的に把握することは、ナノ材料が示すマクロな特性の理解と向上に不可欠である。そこで、本研究では、ナノスケールで制御された希土類系磁性体の結晶粒間の磁氣的相互作用を微視的立場から定量的に把握するため、以下の項目を研究目的とする。

1. 種々の希土類金属間化合物のバルク状態での磁気モーメント、磁気異方性エネルギーおよび交換相互作用エネルギーを、密度汎関数法に基づく電子状態の第一原理計算から明らかにする。

2. 希土類金属間化合物と他の磁性体の界面における磁気構造と交換相互作用を第一原理計算から調べ、ナノコンポジット磁性体の磁気特性を明らかにする。

3. 研究の方法

(1) 粒界を含む系の第一原理計算

粒界を含む系の第一原理計算を実行し、得られた磁気モーメントと磁気モーメント間の交換相互作用をもとに上記のマクロ磁氣的手法から磁化過程（反転）に関するシミュレーションを行う。具体的には、孤立した $R_2Fe_{14}B$ (R: 希土類元素) 結晶粒の電子状態の第一原理計算を実行し、表面近傍と内部での電子状態と磁気モーメントの違いを調べる。特に、表面近傍に位置する R イオンの外殻 (5d, 6s) 軌道が (バルクにおける R イオンの外殻軌道と比べて) どのように歪んでいるかを調べることにより、R イオンの内殻軌道にある 4f 電子のモーメントに働く結晶電場を見積もる。これにより、4f モーメントが担う結晶磁気異方性エネルギーが粒界近傍とバルク内部でどのように異なるかについての知見が得られる。もし、粒界近傍での異方性エネルギーがバルクに比べて低下している場合、外部磁界による磁化反転は結晶粒界から起こることが期待され、実際の磁石材料の保磁力がバルクの異方性エネルギーから期待される値より著しく小さくなる理由が説明されるものと期待される。

(2) $R_2Fe_{14}B$ 結晶粒と非磁性相の界面近傍における第一原理計算

$R_2Fe_{14}B$ (R: 希土類元素) の結晶粒を Nd リッチ相もしくはこれをモデル化した非磁性層で取り囲んだ場合の電子状態の第一原理計算を実行し、上の孤立結晶粒における検討結果と本結果を考え合わせることにより、保磁力機構の解明を図り且つ保磁力向上の

ための指針を提案する。

4. 研究成果

バルク $Nd_2Fe_{14}B$ については、磁気モーメント、結晶磁気異方性ともに実測値とよい一致を示し、本手法の妥当性が確認された。次に $Nd_2Fe_{14}B$ 層と α -Fe を (001) 面で接合した場合、界面で強い交換結合とバルクと同等の (一軸) 磁気異方性が得られたが、(100) 面で接合した場合、 $Nd_2Fe_{14}B$ 層と α -Fe 層の磁化が反平行結合で且つ負の (面内) 磁気異方性となり、交換スプリング磁石としての特性が著しく低下する可能性がある事がわかった。このことは、交換スプリング磁石のみならず、希土類磁石は結晶粒界面および粒界相によって磁気異方性などの磁気特性がバルクと著しく異なり、保磁力などの材料特性に大きく影響する可能性があることを示唆している。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 15 件)

- ① H. Moriya, H. Tsuchiura, and A. Sakuma, First-Principles Calculation of the Crystal Field Parameter near the Surfaces and Interfaces of $Nd_2Fe_{14}B$, *Journal of Applied Physics*, 105, (2009), 07A740-1 ~ 07A740-3. 査読有
- ② C. Mitsumata, A. Sakuma, K. Fukamichi, M. Tsunoda, and M. Takahashi, Critical Thickness of Antiferromagnetic Layer in Exchange Biasing Bilayer System, *Journal of the Physical Society of Japan*, 77 (4), (2008), 044602-1 ~ 044602-6. 査読有
- ③ T. Shimatsu, Y. Okazaki, H. Sato, H. Muraoka, H. Aoi, T. Sakurai, S. Okamoto, O. Kitakami, S. Tanii and A. Sakuma, Uniaxial magnetic anisotropy in Co and Co-Pt based perpendicular olms in relation to lattice deformation, *Journal of Applied Physics*, 103, (2008), 07F524-1~07F524-3. 査読有
- ④ N. Yamada, A. Sakuma and H. Tsuchiura Decoherence processes of a quantum two-level system coupled to a fermionic environment, *Journal of Applied Physics*, 101, (2007), 09C110-1~09C110-3. 査読有
- ⑤ C. Mitsumata, A. Sakuma and K. Fukamichi, Exchange Bias of Antiferromagnetic/Ferromagnetic

- Bilayer with Cubic Anisotropy in Antiferromagnetic Layer, *Journal of Physical Society of Japan*, 76 (2), (2007), 024704-1~024704-7. 査読有
- ⑥ R. Y. Umetsu, K. Fukamichi and A. Sakuma, Electronic Structures and Magnetic Phase Stability of L10 and B2-Type MnRh Equiatomic Alloys, *Journal of the Physical Society of Japan*, 76 (10), (2007), 104712-1~104712-6. 査読有
- ⑦ R. Y. Umetsu, A. Sakuma, and K. Fukamichi, Magnetic anisotropy energy of antiferromagnetic L10-type equiatomic Mn alloys. [*Applied Physics Letters*, 89, (2006), 052504-1~052504-3. 査読有
- ⑧ Akimasa Sakuma, First principles study on the electronic structure and eoeective exchange interaction of $Y(\text{Co}_{1-x}\text{Cu}_x)_5$, *Journal of Applied Physics*, 99, (2006), 08J307-1 ~ 08J307-3. 査読有
- ⑨ Akimasa Sakuma, Theoretical study on the stability of ferromagnetism and resistivity of dilute magnetic semiconductors at finite temperature, *Journal of Applied Physics*, 99, (2006), 08D509-1~08D509-3. 査読有
- ⑩ Akimasa Sakuma, First-principles calculations of magnetic and electronic structures around surfaces and interfaces of magnetic multi-layered structure, *J. Magn. Mater.*, 303, (2006), 184-187. 査読有
- ⑪ Chiharu Mitsumata, Akimasa Sakuma, Kazuaki Fukamichi and Masakiyo Tsunoda, Uncompensated Spin Elements in Ferromagnetic and Antiferromagnetic Bilayer with Non-Collinear Spin Structure, *Materials Transactions*, 47 (1), (2006), 11-14. 査読有
- ⑫ C. Mitsumata, A. Sakuma, and K. Fukamichi, Exchange Bias Model in Ferromagnetic/Antiferromagnetic Bilayer With L12-Type Ordered Antiferromagnet, *IEEE Transactions on Magnetics*, 41 (10), (2005), 2700-2702. 査読有
- ⑬ H. Shima, K. Oikawa, A. Fujita, K. Fukamichi, K. Ishida and A. Sakuma, Lattice axial ratio and large uniaxial magnetocrystalline anisotropy in L10-type FePd single crystals prepared under compressive stress, *Physical Review B*, 70 (22), (2004), 224408-1~224408-7. 査読有
- ⑭ R. Y. Umetsu, Y. Okamoto, M. Miyakawa, K. Sasao, K. Fukamichi, A. Sakuma, Very high antiferromagnetic stability of L10-type MnIr alloys, *Journal of magnetism and Magnetic Materials*, 272-276, (2004), 790-791. 査読有
- ⑮ R. Y. Umetsu, M. Miyakawa, K. Fukamichi, A. Sakuma, Pseudogap in the density of states and the highest Neel temperature of the L10-type MnIr alloy system, *Physical Review B*, 69 (10), (2004), 104411-1~104411-8. 査読有
- [学会発表] (計 14 件)
- ① 土浦宏紀, 榎裕太、守谷浩志、佐久間昭正, $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 磁石の界面における結晶場の第一原理的評価, 日本金属学会 2009 年春季大会, 2009 年 3 月 29 日, 東京
- ② 守谷浩志、土浦宏紀, 佐久間昭正, $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ における結晶場パラメータの第一原理的評価, 応用物理学会東北支部第 63 回学術講演会, 2008 年 12 月 5 日, 仙台
- ③ A. Sakuma, N. Yamada, and H. Tsuchiura, Microscopic description of the Gilbert damping coefficient based on the s-d model, MMM 53rd Magnetism and Magnetic Materials Conference, 2008 年 11 月 13 日, Austin, USA.
- ④ H. Moriya, H. Tsuchiura and A. Sakuma, First-Principles Calculation of the Crystal Field Parameter near the Surfaces and Interfaces of $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$, MMM 53rd Magnetism and Magnetic Materials Conference, 2008 年 11 月 12 日, Austin, USA.
- ⑤ T. Kubota, J. Hamrle, Y. Sakuraba, O. Gaier, M. Oogane, A. Sakuma, B. Hillebrands, K. Takanashi, and Y. Ando, Brillouin Light Scattering Investigations on $\text{Co}_2\text{MnAl}_x\text{Si}_{1-x}$ Heusler Thin Films, MMM 53rd Magnetism and Magnetic Materials Conference, 2008 年 11 月 12 日, Austin, USA.
- ⑥ Y. Kota, T. Takahashi, H. Tsuchiura, and A. Sakuma, Spin-polarized electronic structures and transport properties of Fe-Co alloys: ab initio study, MMM 53rd Magnetism and Magnetic Materials

- Conference, 2008年11月12日, Austin, USA.
- ⑦ A. Sakuma, T. Takahashi, Y. Kota, and H. Tsuchiura, First-principles calculations for the electrical conductivities of transition metal alloys, MMM 53rd Magnetism and Magnetic Materials Conference, 2008年11月12日, Austin, USA.
- ⑧ A. Sakuma, Y. Toga, and H. Tsuchiura, Theoretical study on the stability of magnetic structures of Heusler alloys, Co_2MnAl and Co_2MnSi , MMM 53rd Magnetism and Magnetic Materials Conference, 2008年11月11日, Austin, USA.
- ⑨ 梶裕太, 土浦宏紀, 佐久間昭正, $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ 交換スプリング磁石の界面近傍における磁気特性の第一原理計算, 第32回日本磁気学会学術講演会, 2008年9月15日, 仙台
- ⑩ Y. Toga, H. Tsuchiura and A. Sakuma Ab initio Calculation of the magnetic structures in $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ nanocomposite materials, INTERMAG 2008, 2008年5月6日, Madrid, Spain.
- ⑪ K. Hasu, H. Tsuchiura, and A. Sakuma, Enhancement of Gilbert damping due to non-local spin-spin correlation via spin currents, 52nd Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, 2007. 11. 7 Tampa Marriott Hotel, USA.
- ⑫ A. Sakuma, First principles study on the electronic structure and effective exchange interaction of $\text{Y}(\text{Co}_{1-x}\text{Cu}_x)_5$, 50th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, 2 Nov. 2005, San Jose, California, USA.
- ⑬ A. Sakuma, Theoretical Study on the stability of ferromagnetism and resistivity of dilute magnetic semiconductors at finite temperature, 50th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, 1 Nov. 2005, San Jose, California, USA.
- ⑭ A. Sakuma, First Principles Calculations of Magnetic Structure of Ferromagnetic/Antiferromagnetic Bi-layer Structure. 6th International Symposium on Physics of Magnetic Materials, 14 Sept. 2005, Singapore

[図書] (計2件)

- ① Akimasa Sakuma and K. Fukamichi, Springer, HANDBOOK OF ADVANCED MAGNETIC MATERIALS Vol. 2, Chapter 12. Antiferromagnetism of Mn Alloys, 2006, 61page (p541-p601).
- ② K. Fukamichi and A. Sakuma, Elsevier Science, Handbook of Magnetic Materials Vol. 16, Chapter 4. Magnetic and Electrical Properties of Practical Antiferromagnetic Mn Alloys, 2006, 193page (p209-p401).

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

○取得状況 (計0件)

[その他]

6. 研究組織

(1) 研究代表者

佐久間 昭正 (SAKUMA AKIMASA)
 東北大学・大学院工学研究科・教授
 研究者番号：30361124

(2) 研究分担者

土浦 宏紀 (TSUCHIURA HIROKI)
 東北大学・大学院工学研究科・助教
 研究者番号：30374961

(3) 連携研究者

なし