

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 27 年 6 月 10 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24360261

研究課題名(和文) NdFeB およびナノコンポジット単一粒子の磁化挙動

研究課題名(英文) Magnetization dynamics in microstructured NdFeB single dot

研究代表者

北上 修 (Kitakami, Osamu)

東北大学・多元物質科学研究所・教授

研究者番号：70250834

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,400,000 円

研究成果の概要(和文)：本研究では、NdFeB磁石の保磁力発生機構を調べるために、単一NdFeBドットの磁化反転挙動を明らかにすることを目的とした。高感度磁化検出および大振幅ナノ秒パルス磁場発生技術を確立し、単一ドットの磁化ダイナミクスを調べた。ナノ秒および直流いずれの磁場でも同一領域を起点に反転核が形成されるが、その後の磁区成長に違いが観測された。後者では隣接磁区が連結し網目状に成長するが、前者では等方的に膨張する。この違いは、ドット内の複数のエネルギー障壁を考慮した熱揺らぎ理論により理解される。以上の結果より、エネルギー障壁の低い領域の局所構造を明らかにし、それを取り除くことが高保磁力化に有効であることが判った。

研究成果の概要(英文)：The aim of this study is to elucidate the magnetization dynamics of single NdFeB dot. By combining our highly sensitive Hall effect magnetometry with the newly developed large amplitude ns pulse field generator, we have traced magnetization reversal process in single dot after application of slowly varying dc fields and ns pulse fields. Nucleation of reversed domains of about 100 nm in diameter takes place at same points for both cases, but the significant difference is observed in their following expansion. In the dc field case, neighboring nucleated domains are linked to each other, resulting in a maze-like domain structure, while nucleated domains tend to expand isotropically in the pulse field case. Such difference depending on application fields can be explained by assuming multiple energy barriers for magnetization reversal. This result leads us to believe that elimination of defects or something which lower the energy barrier contributes to the enhancement of coercivity.

研究分野：磁気工学

キーワード：永久磁石 NdFeB 保磁力 微細加工 パルス磁場 反転ダイナミクス

### 1. 研究開始当初の背景

電気自動車をはじめとする環境負荷低減技術に対する期待の高まりに伴い、高い磁気エネルギー積を有する永久磁石材料の開発が切望されている。現在、最高性能を有する材料は  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  (以降 NFB) であるが、その保磁力は理論予測の 20% 程度に留まる。今後の磁石性能の向上には保磁力決定機構を解明することが必須であるが、半世紀以上にわたり研究が停滞しているのが現状である。その主な原因は、磁石の結晶粒子間の相互作用に加え、複雑な組織が重なっていること、さらには磁化過程を支配する反転核生成・伝播現象がナノ秒オーダーの高速現象であることであり、従来の磁気測定技術では到底本質に迫ることは不可能であった。

### 2. 研究の目的

(1) NFB の保磁力決定機構の解明には、磁石構成要素である単結晶粒の挙動を定量的に把握する必要がある。我々はこれまでに、SQUID の 8 桁以上の感度を有する磁化検出技術を確立してきた。この技術を NFB 単粒子に適用し、その磁化過程を明らかにすることを第一の目的とする。

(2) 磁化反転開始時の核生成・伝播過程をナノ秒の時間スケールで追跡できるよう、大振幅高速パルス磁場発生技術確立し、上記高感度磁化検出技術と組み合わせ、単一 NFB 粒子の磁化反転ダイナミクスを調べることを第二の目的とする。

### 3. 研究の方法

(1) 高品質 NFB エピタキシャル成長技術、ダメージフリー NFB 微細加工プロセスの確立により微小 NFB ドットを作製し、異常ホール効果を原理とする超高感度磁化検出法により NFB 単粒子の準静的磁化反転過程を調べる。

(2) 同軸ケーブルの充放電を利用した高速パルス磁場発生装置の構築、さらに Blumlein 線路法による大振幅化への挑戦。目標は最大磁場振幅  $H_{\text{pulse}} = 10 \text{ kOe}$ 、パルス立上り時間  $T_{\text{rise}} < 5 \text{ ns}$ 。

(3) 上記(1)、(2)の組合せによる、ナノ秒領域単一 NFB ドットの磁化ダイナミクスの検討。

(4) 上記(1)~(3)と並行し、磁気粘性の観点から NFB 磁化過程を探る手法の確立。

### 4. 研究成果

(1) NFB エピタキシャル成長技術に関しては、 $\text{MgO}(001)$  単結晶基板上に  $\text{Mo}(001)$  パッファ層を介在させることにより、 $\text{NdFeB}(001)$  のエ

ピタキシャル成長に成功した。さらに  $\text{Mo}(001)$  パッファ層上に 1, 2 原子層の Nd 層を介在させることにより、結晶配向性が著しく向上することを確認した。

(2) NFB エピタキシャル膜の微細加工について検討した。電子線リソグラフィとイオンエッチングにより微細ドットを作製し、全領域にわたり微細加工前後の微細構造の変化を調べた。その結果、加工による磁区の変化は全く観察されず、当初懸念された加工ダメージ、特にエッチングダメージの影響は無視し得ることが確かめられた。このようにして作製した単一 NFB ドット (直径  $3 \mu\text{m}$ ) の異常ホール電圧の磁場依存性を図 1 の実線に示す。単一粒子の磁化挙動を高感度に測定できることがわかる。

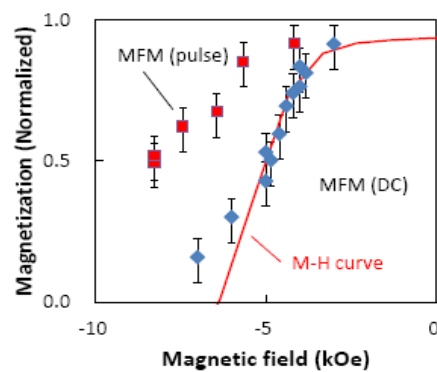
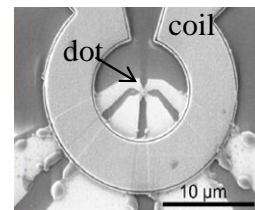


図 1 単一 NFB ドット (直径  $3 \mu\text{m}$ ) の磁化曲線。実線は直流磁場中で異常ホール効果測定した。記号  $\square$  は各々直流磁場、パルス磁場 (幅 6 ns) 印加後の MFM 像から評価した。

(3) 同軸ケーブルを用いた Blumlein 線路、そして多段化したアヴァランシェ・トランジスタを組み合わせ、立上り時間 3.2 ns、最大 500 V のパルス電圧発生に成功した。このパルス発生器を図 2 のマイクロコイルに繋ぐことにより、コイル中心に設置した NFB ドット位置で最大 10 kOe のパルス磁場の発生に成功した。



AHE electrode

図 2 パルス磁場実験用素子の SEM 像。AHE 電極上ドット中心と直上のマイクロコイル中心が一致。

(4) 上記(1)~(3)で構築した技術を組み合わせ、単一 NFB ドットの磁化反転過程を調べた。直流磁場とパルス磁場 (半値幅 6 ns) を印加した際の磁気力顕微鏡 (MFM) 像より評価した磁化曲線を図 1 に示す。パルス磁場では明らかに磁化の熱揺らぎが抑制され、保磁力が著

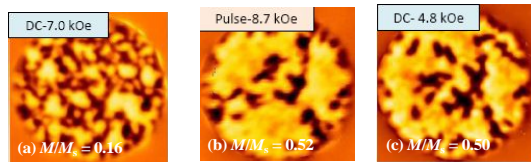


図3 直流磁場  $H_{dc}$  , パルス磁場  $H_{pulse}$  印加後の MFM 像 . (暗部が反転領域) (a)  $H_{dc} = 7.0$  kOe, (b)  $H_{pulse} = 8.7$  kOe. (c)  $H_{dc} = 4.8$  kOe.

しく増加している . 両者の差は同程度の磁場印加後の MFM 像 (図 3(a), (b)) でも明らかである . また同程度の減磁状態を比較した結果が図 3(b), (c)である . 磁場印加に伴う磁区構造の変化を追跡するため , ナノ秒パルス磁場を繰り返し印加した場合そして直流磁場を準静的に変化させた場合を比較した . いずれの場合も , ほぼ同一領域 (サイズ  $\sim 0.1\mu\text{m}$ ) を起点に反転核が形成されるが , その後の反転磁区の成長には明らかな差異が観察された . 後者では隣接磁区が連結しネットワーク状に成長するのに対し , 前者では反転磁区が等方的に膨張する傾向にある . 磁場印加時間に依存したこのような磁化反転様式の変化は , 単一 NFB ドット内の複数のエネルギー障壁を考慮した熱揺らぎ理論により理解される . これらの結果より , エネルギー障壁の低い領域の局所構造を探り , それを取り除くことが今後の高保磁力化に有効であることが判った .

(5) NFB 磁石の磁化反転機構に関する新しい知見を得るために , 熱揺らぎに基づくエネルギー障壁の評価法を確立した . 有限温度下では磁化はランダムに揺らぎ , 障壁が存在しても確率的に反転する . この障壁の関数形は反転パスに依存し , 逆に熱揺らぎを解析すれば , 障壁関数ひいては反転パスを知ることができる . 一般に逆磁場  $H$  における障壁は  $E_b(H) = E_0[1 - H/H_0]^n$  と表され , 一斉回転の場合  $n = 2$  or  $3/2$  , 磁壁ピニングでは  $n = 1$  となる . 障壁関数の情報は , 磁気粘性性と保磁力の磁場印加時間依存性から以下のように得られる . 前者では揺らぎ場  $H_f$  は次式で与えられ , 粘性係数  $S$  の測定より障壁の磁場微分を求めることができる . 但し ,  $S$  は磁化の対数時間微分で与えられる磁気粘性係数である .

$$H_f = - \frac{k_B T}{\partial E_b(H) / \partial H} = \frac{\Delta H}{\Delta \ln(S/t)} \quad (1)$$

図 4(b)の破線は , 2 種類の NFB 試料(Nd 粒界拡散処理の有無)の  $(\partial E_b / \partial H) / k_B T$  を示す . 一方 , Neel-Arrhenius 則より導出される Sharrcock の関係は次式で与えられ , これにより NFB 薄膜の保磁力の時間依存性をフィッティングした結果が図 4(a)の実線である .

$$H_c(t) / H_0 = 1 - \frac{k_B T}{E_0} \ln \left( \frac{f_0 t}{\ln 2} \right) \quad (2)$$

指数  $n = 0.6 \sim 2$  の全範囲で良好にフィットでき , 各々の  $n$  に応じて  $E_0, H_0$  を決定できる .  $E_b(H) = E_0[1 - H/H_0]^n$  を磁場微分すると

$$\left. \frac{\partial E_b}{\partial H} \right|_{H=H_c} = n \frac{E_0}{H_0} \left( 1 - \frac{H_c}{H_0} \right)^{n-1} \quad (3)$$

となり , これに図 4(a)のフィッティングパラメータを入れた曲線が図 4(b)の実線であり , 粘性実験から得られた破線との交点が求めるべき指数  $n$  である . 両試料の磁気特性は大きく異なるものの , 図 4(b)から決定された指数は Nd 拡散処理有の試料で  $n = 1.2^{+0.4}_{-0.2}$  , 処理無の場合  $n = 1.2^{+0.5}_{-0.3}$  でありほぼ差異は認められない . この結果が示唆することは , Nd 拡散処理により巨視的磁気特性が変化しても , 基本的な反転過程は変化せず , 磁壁ピニングが保磁力を支配していることである .

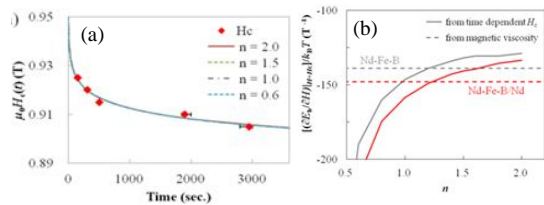


図4 (a) NFB 試料の保磁力の磁場印加時間依存性 . 実線はフィッティング . (b) 障壁関数の磁場微分の指数  $n$  依存性 . 破線は式(1)による実測結果 , 実線は式(3)に基づく曲線 .

## 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 24 件 )

R.Goto, S.Okamoto, N.Kikuchi, O.Kitakami  
Energy barrier analysis of Nd-Fe-B thin films  
Journal of Applied Physics, 査読有(印刷中)

N.Kikuchi, Y.Suyama, S.Okamoto, O.Kitakami, T.Shimatsu, Quasi-ballistic magnetization switching in Co/Pt dots with perpendicular magnetization, Applied Physics Letters, 査読有, **104** (2014) 112409-1~112409-4

DOI: 10.1063/1.4869150

N.Kikuchi, M.Furuta, S.Okamoto, O.Kitakami, T.Shimatsu, Quantized spin waves in single Co/Pt dots detected by anomalous Hall effect based ferromagnetic resonance, Applied Physics Letters, 査読有, **105** (2014) 242405-1~242405-4

DOI: 10.1063/1.4904225

岡本聡, ナノ磁性体における磁化反転ダイナミクスとその応用, 日本磁気学会誌 まぐね, 査読有, **9** (2014) 76 ~ 83

<http://www.magnetics.jp/archive/journal/magne.html>

N.Kikuchi, Y.Suyama, S.Okamoto, O.

Kitakami, Pulse Rise Time Dependence of Switching Field of Co/Pt Multilayer Dot, Electronics and Communication in Japan, 査読有, **96** (2013) 9~14  
<http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/ecj.11569/pdf>

北上修, 磁性微粒子の相安定性, 磁化挙動, そして磁気記録への応用, 日本磁気学会誌まぐね, 査読有, **8** (2013) 71~80  
<http://www.magnetics.jp/archive/journal/magne.html>

S.Okamoto, N.Kikuchi, M.Furuta, O. Kitakami, T.Shimatsu, Switching behaviors and its dynamics of a Co/Pt nanodot under the assistance of rf fields, Physical Review Letters, 査読有, **109** (2012) 237209-1~237209-4  
DOI: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.109.237209>

T. Shimatsu, H. Kataoka, K. Mitsuzuka, H. Aoi, N. Kikuchi, O. Kitakami, Dry-etching damage to magnetic anisotropy of Co-Pt dot arrays characterized using anomalous Hall effect, Journal of Applied Physics, 査読有, **111** (2012) 07B908-1~07B908-4  
DOI: 10.1063/1.3676061

[学会発表] (計 83 件)

東佑 他, Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 薄膜の作製ならびに微視的・動的磁化過程評価のための微細加工の検討, 電気学会マグネティクス研究会, 2014.12.12~12.13, 日本大学 (千葉・船橋)

R.Goto et al. Energy barrier analyses on highly oriented Nd-Fe-B thin films with and without Nd overlayer, The 59th Annual Magnetism and Magnetic Materials (MMM) Conference, 2014.11.3~11.7, Honolulu (USA)

岡本聡 他, 高磁気異方性材料における高感度磁気計測と磁化反転ダイナミクス(招待), 日本金属学会, 2014.3.21~3.23, 東京工業大学 (東京)

R.Goto et al. Growth of highly oriented Nd-Fe-B films and its magnetization reversal behaviors, The 58th Annual Magnetism and Magnetic Materials (MMM) Conference, 2013.11.4~11.8, Denver (USA)

門ノ沢和也 他, 永久磁石の磁化反転実験のためのナノ秒パルス磁場発生装置, 日本磁気学会, 2013.9.3~9.6, 北海道大学 (札幌・北海道)

後藤龍太 他, Nd-Fe-B 薄膜の作製と磁化反転挙動の評価, 日本金属学会, 2013.3.27~2013.3.29, 東京理科大学 (東京)

R.Goto et al. Magnetic properties of Nd-Fe-B thin films grown on high quality Mo (100) underlayer, The 12th MMM-INTERMAG Joint Conference, 2013.1.14~1.18, Chicago (USA)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]  
出願状況 (計 0 件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
出願年月日:  
国内外の別:

取得状況 (計 0 件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
出願年月日:  
取得年月日:  
国内外の別:

[その他]

ホームページ等  
<http://www.tagen.tohoku.ac.jp/labo/kitakami/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者  
北上 修 (KITAKAMI, Osamu)  
東北大学・多元物質科学研究所・教授  
研究者番号: 70250834

(2) 研究分担者  
岡本 聡 (OKAMOTO, Satoshi)  
東北大学・多元物質科学研究所・准教授  
研究者番号: 10292278

(3) 研究分担者  
菊池 伸明 (KIKUCHI, Nobuaki)  
東北大学・多元物質科学研究所・助教  
研究者番号: 80436170

(4) 研究分担者  
島津 武仁 (SHIMATSU, Takehito)  
東北大学・学際科学国際高等研究センター・教授  
研究者番号: 50206182

(5) 研究分担者  
柳原 美廣 (YANAGIHARA, Mihiro)

東北大学・多元物質科学研究所・教授  
研究者番号：40174552