

令和 2 年 6 月 28 日現在

機関番号：11401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H03272

研究課題名(和文)パルス磁場印加磁気力顕微鏡の開発と永久磁石材料の微視的磁化過程・磁化反転解析

研究課題名(英文)Development of magnetic force microscopy available for in-situ pulse magnetic field application and the analysis of microscopic magnetization process and magnetic reversal for permanent magnets

研究代表者

齊藤 準 (SAITO, HITOSHI)

秋田大学・理工学研究科・教授

研究者番号：00270843

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は、永久磁石に対して磁区観察後に局所領域での磁化曲線を計測・解析できる手法を開発することである。局所領域での磁化過程や磁化反転の情報は磁石の性能向上に重要である。本研究ではパルス磁石を付加した独自の磁気力顕微鏡を開発し、以下の結果を得た。

1) 観察試料を設置する前にパルス磁場により磁性探針のみの磁化曲線を計測する手法を開発した。この磁化曲線の情報は試料からの磁気力顕微鏡信号の解析や磁気力顕微鏡探針の性能評価に必要となる。2) 計測に適した探針としてFePt高保磁力探針を開発した。3) 永久磁石の磁区構造観察の後に、測定条件を調整することにより局所的な磁化曲線計測を実現した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

学術的意義は永久磁石に対して磁区構造を観察後に、観察範囲の結晶粒に対して局所的な磁化曲線の計測を磁気力顕微鏡において実現したことである。永久磁石の性能向上には、その局所的な磁化過程や磁化反転挙動を明らかにし、磁化反転箇所の解析から保磁力機構を解明することが極めて重要になるが、その一助になると考えている。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this study is the development of measuring and analytical method of local magnetization curve of permanent magnet under continuous magnetic field after magnetic domain observation. The information of microscopic magnetization process and magnetic reversal is important to enhance the performance of permanent magnet. In this study, we developed the original magnetic force microscope (MFM) with pulse magnet and obtained the following results.

1) The measuring method of magnetization curve of only MFM tip by pulse magnetic field was developed. The information of tip magnetization curve is necessary to analyze the MFM signal from the measuring sample and evaluate the performance of MFM tip. 2) FePt hard magnetic tip with good performance for local magnetization curve measurement was developed. 3) The local magnetization curve measurement of permanent magnet was achieved by adjusting the measuring conditions after the magnetic domain observation.

研究分野：磁気工学

キーワード：磁気力顕微鏡 パルス磁場 局所磁化曲線計測 永久磁石

1. 研究開始当初の背景

(1) 電気自動車を始めとして産業界で大きな需要がある高出力で耐熱性に優れた高性能モーターには、高性能磁石が使用されている。高性能磁石の性能向上には、その局所的な磁化過程や磁化反転挙動を明らかにし、磁化反転箇所の解析から保磁力機構を解明することが極めて重要になる。これには、試料の磁区構造を高い空間分解能で観察した後に、場所を選択して局所的に磁化曲線を計測できる手法を開発することが有効となる。ここでは、磁化反転磁場を高精度に検出するために、磁場を連続的に変化させながら試料の磁化を計測する手法が必要になる。

(2) 磁石性能に優れた希土類磁石では、磁区構造の観察面として、機械研磨面は磁石内部と比較して構造欠陥が多く磁化反転磁場が小さいことが知られており好ましくない。磁化反転磁場が磁石内部と同等の結晶粒界破断面が望ましいが、表面凹凸が大きく、放射光を利用した X 線磁気円二色性顕微鏡の他は本研究で用いる磁気力顕微鏡のみ観察が可能である。ここで磁気力顕微鏡は最大で数 10nm 程度の高い空間分解能を有し、特別な表面処理を要せずに大気中で観察できることから、研究開発の現場で磁区観察手法として広く用いられている手法である。

2. 研究の目的

表面凹凸が大きな試料でも磁区観察が可能な特徴をもつ磁気力顕微鏡をベースとして、磁石試料の局所領域での磁化過程や磁化反転を、磁場を連続的に変化させながら計測・解析できる手法を開発し、永久磁石材料の微視的な磁化過程や磁化反転を解析することで、その有効性を確かめることを目的としている。

3. 研究の方法

(1) 本研究のベースとなる磁気力顕微鏡にパルス磁石を導入したパルス磁場印加磁気力顕微鏡を設計・試作し、磁気力顕微鏡による磁区観察の後に、試料の局所領域で磁化曲線を計測可能なシステムを構築する。用いるパルス磁石は充電したコンデンサを放電させて大きな電流を空心コイルに流すことで大きな磁場を発生させるもので、磁場を連続的に変化させることができる特徴がある。

(2) 局所磁化曲線計測に適する磁性探針を、Si 探針母材に磁性薄膜を成膜・熱処理することで開発する。ここでは作製する磁性探針の磁気特性の評価を行うために、磁性探針をパルス磁場印加磁気力顕微鏡に装着した状態で探針自体の磁化曲線を計測・解析できる手法を開発する。

(3) 磁性探針の加振条件等を調整することで、パルス磁場印加中の探針試料間の相対位置の変動を抑止する。

(4) 磁石試料に対して局所領域の磁化曲線を計測し、微視的な磁化過程や磁化反転を解析する。

4. 研究成果

(1) パルス磁場印加磁気力顕微鏡を用いて測定試料にパルス磁場を印加した際に得られる磁気力顕微鏡信号から、試料磁化からの寄与を分離・解析するのに必要となる、磁気力顕微鏡に用いる磁性探針のみの磁化曲線(探針磁化のパルス磁場応答)を高感度で計測・解析できる独自の手法を開発した。本手法はパルス磁場印加磁気力顕微鏡に測定試料を設置する前に、磁気力顕微鏡探針にパルス磁場を印加した際の磁気力顕微鏡信号を用いることから、測定感度が高く 10 nm 程度の磁性膜厚の磁性探針でも、その磁化曲線の計測が可能である。本手法はこれまで報告されていない新規な手法であり、探針の磁化曲線を、磁場を連続的に変化させながら高感度で高磁場まで測定できる点にインパクトがある。今後の展望として、本手法の高い測定感度を活かした用途として、体積が小さいために磁化測定法ではこれまで測定が困難であった磁性微粒子を非磁性探針母材に付着させることで、磁性微粒子の磁化曲線の測定への応用が期待できると考えている。

(2) 局所磁化曲線計測に適する磁性探針を自作により検討した結果、磁化が大きく高保磁力の L1₀ 型 FePt 規則合金を被覆したハード磁性探針が測定感度および磁気力顕微鏡信号の安定性に優れることがわかった。この探針は高保磁力を得るための規則化に 700 °C 程度の熱処理が必要であり、Si 探針母材上に直接成膜後に熱処理すると Si が FePt 合金に拡散し高保磁力が得られない。このため、Si 探針母材にイオンガンをを用いた酸素プラズマ処理を施して表面に数 nm 程度の SiO₂ 膜を形成した後に FePt 合金薄膜を成膜後に熱処理することで、Si 探針母材の先鋭性を損なうことな 10 kOe 以上の高保磁力を有する高分解能探針を得ることができた。さらに FePt 合金に MgO を添加し、L1₀ 型 FePt 規則合金の粒界を MgO としたグラニューラー型合金を Si 探針母材上に形成したところ、15 kOe 以上の高保磁力を得ることができた。本探針は、高保磁力を有し分解能にも優れるため、パルス磁場印加前の永久磁石試料の磁区観察にも適することが確かめられた。10 kOe 以上の高保磁力を有するハード磁性探針は国内外においても市販品には

なく、本探針は独自の作製法によるもので学術的かつ実用的価値が高いと考えている。

(3) (2)で述べた高い測定感度ならびに測定精度を確認できた FePt 高保磁力・自作探針を用いて、探針の加振周波数を共振周波数付近で調整することにより、パルス磁場印加時に発生した不具合である探針位置の試料面に垂直方向の変動を抑制することで、結晶粒径が 1 ミクロン程度の異方性フェライト磁石試料の局所的な磁化曲線の計測に成功した。本研究の位置づけは、試料の磁区構造を観察した後に、試料の任意の場所における局所的な磁化過程や磁化反転を、磁場を連続的に変化させながら測定する方法を新たに提供したことであり、別手法で調べた結晶構造、金属組織の不均一性と比較することで、磁石を始めとした磁性材料の磁気特性向上に向けた指針構築に貢献できるところにインパクトがある。

代表的な高性能磁石である焼結型磁石においては、さらなる高保磁力化には磁性粒子の 1 ミクロン以下の微細化が有効になる。一方、近年では希土類を使用しない種々の磁石化合物の微粒子の研究開発も進んでいる。ここでは磁性粒子で磁石を作製する前に、磁性粒子 1 個の磁化反転挙動の把握が重要となる。本研究で開発したパルス磁場を用いた手法は、測定磁場の増大に適した手法であるが、一方で測定磁場が増加すると測定箇所的位置ズレが大きくなるため、1 ミクロン以下の磁性粒子の測定が困難になることがわかった。この問題点の解決が今後の課題となる。

(4) (3)で述べた 1 ミクロン以下の磁性粒子の磁化反転挙動の検出については、研究開始時には効果的な手法は明らかではなかったが、研究期間中に強磁場計測用の高感度磁性探針として、試験的に検討した磁気飽和がなく磁化が磁場に対して可逆的に変化する超常磁性合金を成膜した超常磁性探針において、高 Co 濃度 Co-GdO_x グラニューラー型超常磁性合金を用いた場合に、磁場 3 kOe 以上で強磁性元素である Ni よりも大きな磁化を有する高感度・超常磁性探針の開発に成功した。本探針を研究代表者が先に開発に成功した試料表面近傍での磁場の単独検出が可能な交番磁気力顕微鏡を用いて、直流磁場に小さな交流磁場を重畳させて永久磁石に印加し、直流磁場に対して不可逆的に変化する不可逆磁化の応答および交流磁場に対して可逆的に変化する可逆磁化の応答を能動的に計測（従来の試料磁化からの磁場の受動的計測と異なる交流磁場による試料磁化の応答の能動的計測）したところ、可逆磁化の応答より、測定試料の磁化反転の前駆現象である交流磁化率の増加を高い計測感度で検出することに成功した。本手法を粒径 100 nm 以下の孤立した 1 個の磁石微粒子に適用したところ、磁化反転に至る磁化曲線の変化を十分な計測感度で計測することができた。（今後、論文投稿を検討する。）本手法は、パルス磁場を用いないので現在のところ、大きな磁場の印加は困難であるが、測定箇所的位置ズレがなく磁石微粒子 1 個を計測できる高い計測感度を有する点で、パルス磁場を用いる本研究課題による手法と相補的であり、両者の手法を併用することにより、永久磁石の研究開発に資するものと考えている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Yongze Cao, Pawan Kumar, Yue Zhao, Satoru Yoshimura, Hitoshi Saito	4. 巻 112
2. 論文標題 Active magnetic force microscopy of Sr-ferrite magnet by stimulating magnetization under an AC magnetic field: Direct observation of reversible and irreversible magnetization processes	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Appl.Phys.Lett.	6. 最初と最後の頁 223103-1,4
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.5030997	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Yongze Cao, Yue Zhao, Pawan Kumar, Satoru Yoshimura, Hitoshi Saito	4. 巻 123
2. 論文標題 Magnetic domain imaging of a very rough fractured surface of Sr ferrite magnet without topographic crosstalk by alternating magnetic force microscopy with a sensitive FeCo- GdOx superparamagnetic tip	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 224503-1,8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.5017104	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Yongze Cao, Shota Nakayama, Pawan Kumar, Yue Zhao, Yukinori Kinoshita, Satoru Yoshimura and Hitoshi Saito	4. 巻 29
2. 論文標題 Magnetic domain structure imaging near sample surface with alternating magnetic force microscopy by using AC magnetic field modulated superparamagnetic tip	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Nanotechnology	6. 最初と最後の頁 305502-1,7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1361-6528/aac22a	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 工藤開世、K.S.Rao、吉村哲、齊藤準
2. 発表標題 パルス磁場印加・磁気力顕微鏡を用いた磁気力顕微鏡探針の磁化曲線計測
3. 学会等名 日本磁気学会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 工藤開世、K.S.Rao、吉村哲、齊藤準
2. 発表標題 パルス磁場印加・磁気力顕微鏡を用いた磁気力顕微鏡探針の磁化曲線計測
3. 学会等名 スピニクス特別研究会
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
連携研究者	吉村 哲 (Yoshimura Satoru) (40419429)	秋田大学・理工学研究科・教授 (11401)	