

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 9 月 16 日現在

機関番号：12701

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25420689

研究課題名(和文)銅基合金中に形成されるナノ磁性粒子の特徴的組織と磁気特性の関係

研究課題名(英文)The relationship between microstructure and magnetic properties of nano-scale magnets formed in a copper matrix

研究代表者

竹田 真帆人(TAKEDA, Mahoto)

横浜国立大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：30188198

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：Cu-Ni-X合金の微細構造と磁区構造、磁気特性の関係を調べ、微細構造と磁気特性の関係を明らかにした。単結晶を作製して組織や磁区構造、磁気特性、局所領域の組成を調べた。そのために電子顕微鏡やSQUID磁化測定、熱磁気天秤法、KKR法、LLG計算を応用した。本合金の析出過程で、形状と1次元配列等、特異な組織が観察された。析出粒子は強磁性であった。単磁区から多磁区への変化は粒子サイズ、形状に依存した。磁化方向が交互になっていることが判明した。低温では時効進行によって超常磁性から強磁性に変化した。AC磁化測定によると、急冷状態で2種類の磁性相見られた。

研究成果の概要(英文)：This study has investigated the relationship between microstructural evolution and magnetic properties of magnetic particles formed in Cu-Ni-X alloys. Single crystal Cu-Ni-X alloy samples were prepared and used for high-resolution transmission and photoemission electron microscopy(TEM and PEEM) observations. The first principle electron energy band calculations and micromagnetic simulations based on KKR method and Landau-Lifschitz-Gilbert equation were also implemented. The present TEM and PEEM observations have revealed that Ni-Fe rich tiny particles were distributed randomly in copper matrix in the initial stage of annealing, while the tendency to arrange linear along <100> directions became more clear with further annealing. A ferromagnetic particle with a magnetically single-domain formed anti-parallel spin pair with an adjacent particle. The A-C mode M-T susceptibility measurements suggest that two types of ferromagnetic regions were formed just after the solution-treatment.

研究分野：金属物性、電子顕微鏡結晶学

キーワード：ナノ磁性体 磁気特性 微視的組織 磁区構造 熱磁気特性

1. 研究開始当初の背景

電子技術を用いた記録の大容量化や高密度化、情報交信の高速化に伴い、それらを支える材料に対する改善や信頼性要求が著しく高まっている。記録を大容量化するためには記録単位を何処まで小さくできるかに掛かっている。しかしこれを小さくすると記録保持の信頼性が落ちる。また書き込み容易性と記録保持という相反する特性も要求されるため材料特性に対する詳細な検討と原理的理解の確立により最適策を見出して行かなければならない。ナノ磁性体に対するスピン情報の記録や保持に外部からの磁場や電場、温度等が関係するが、微粒子のスピンに対してそれらがどのような影響、効果をもたらすか直接的に調べた研究は将来的に重要であると考えられている。

2. 研究の目的

本研究では、個々のナノ磁性微粒子に形成される磁区を光電子顕微鏡、スピン偏極 STM、磁気力顕微鏡等によって直接観察すること、それらと磁気特性の関係を明らかにすることを目標に設定した。また試料に関わる磁気的な安定性を評価するために熱磁気天秤の手法を用いて試料のキュリー点を系統的に調べること、電子のスピン構造を考慮するため粒子の構造と組成の実測値を基に KKR 法により計算し、考慮することとした。

3. 研究の方法

これまでナノ磁性粒子に関する磁区の直接イメージングは、試料作製の難しさと組織変化の実際的なサイズ、装置の分解能との兼ね合いから困難を伴い、数多くは試みられていない。また分解能の限界付近では磁性粒子の磁化方向が揃っていないと磁化方向を判別することが極めて難しい。本研究では単結晶を利用することで、この困難を克服することを目指した。作製された単結晶と多結晶性試料を用いて熱処理を施し、結晶性試料に形成されるナノ磁性粒子のサイズや分布を変えて個々の粒子に形成されたスピン配向を直接的に画像化し、磁区構造を観察した。これらの観察結果と磁気物性の対応関係を調べた。

4. 研究成果

本研究では、Bridgeman 法を応用して複数の



組成の単結晶性試料作製に成功した。

Fig.1 Photograph of $\text{Cu}_{75}\text{-Ni}_{20}\text{-Fe}_5$ alloy single crystal

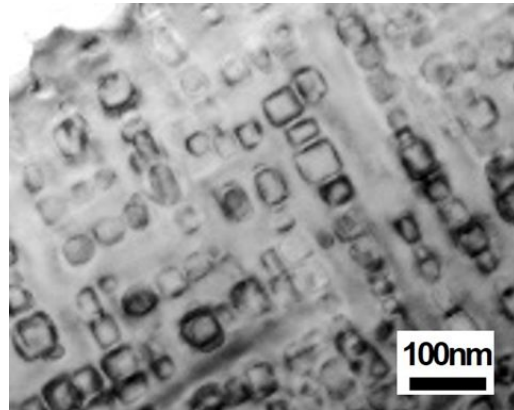


Fig. 2 Bright-field TEM images of the microstructures formed in a $\text{Cu}_{75}\text{-Ni}_{20}\text{-Fe}_5$ alloy aged at 873K for 2×10^4 min.

この試料について熱処理等を施し、粒子サイズや分布の異なる試料を実験に用いた。これらの試料をレーザー励起の光電子顕微鏡 (PEEM) で観察し、磁区配向に関する画像を得た。平均粒子サイズとして 60nm と 100nm 程度の粒子を観察し、世界最高レベルの PEEM 像を得るに至った。

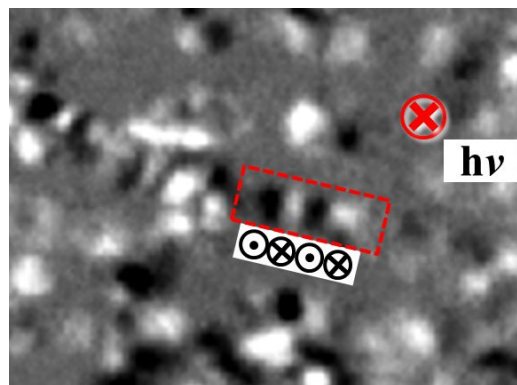


Fig. 3 PEEM images of $\text{Cu}_{75}\text{-Ni}_{20}\text{-Fe}_5$ single crystal specimens aged at 873 K for 2×10^4 min.

本研究によって得られた PEEM 像によると (1)60nm 程度の粒子が銅母相中に分散する試料では、析出粒子は単磁区構造を持ち、隣

接する粒子間でスピンは反平行になっている、(2)100nm 程度の大きさの析出粒子が形成される段階では一つの粒子が多磁区構造となり、隣接粒子は接近する部分で反平行のスピン配向を示すことが明らかになった。LLG 計算によって実験結果が無理なく説明されるかどうか検討を行い、妥当性を検証した。また電子エネルギーバンド計算を行って析出粒子と母相の磁化について検討した。

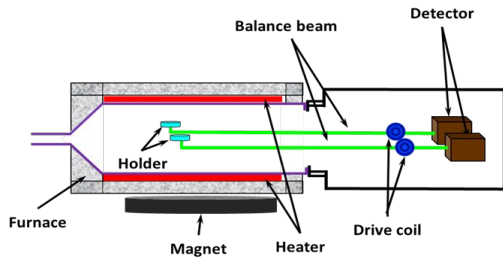


Fig. 4 Schematic drawing of MTG Equipment.

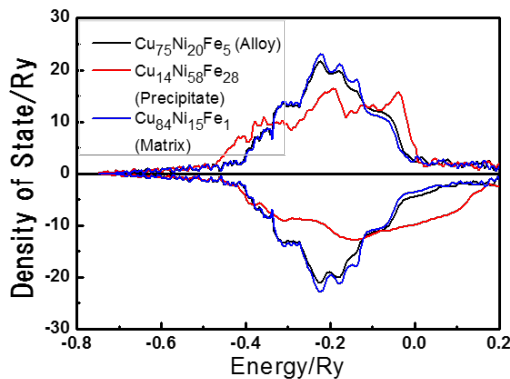


Fig. 5 Total DOS of $\text{Cu}_{75}\text{Ni}_{20}\text{Fe}_5$ (Alloy), $\text{Cu}_{14}\text{Ni}_{58}\text{Fe}_{25}$ (Precipitate) and $\text{Cu}_{84}\text{Ni}_{15}\text{Fe}_1$ (Matrix).

熱磁気特性についても調べ、本研究で試作した装置が高感度を有し、ナノ磁性体の形成過程に関する有用な結果を提供することを明らかにした。

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 10 件)

Jun-Seop Kim, T. Taniuchi, M. Mizuguchi, Shik Shin, K. Takanashi, M. Takeda, “Microstructural evolution and correlated magnetic domain configuration of nanoparticles embedded in a single crystal of $\text{Cu}_{75}\text{-Ni}_{20}\text{-Fe}_5$ alloy, Journal of Physics D: Applied Physics, (2016) in press
N. Wada, K. Kuwada, J. S. Kim,

M.Takeda, M. Takeguchi, “Precipitation behavior and magnetic properties of Cu-Fe-Co alloys containing nano-granular ferro-magnetic-element particles” Advances in Condensed Matter Physics (2015) 10/2015; 2015:1-7. DOI: 10.1155/2015/865695.

金俊燮、水口将輝、竹田真帆人
” Cu75- Ni 20 -Fe5 合金単結晶における微視的組織と磁気特性 ”
銅と銅合金 54(2015) 41 -44 .

李東海、金俊燮、竹田真帆人
” Cu-Ni-Co 合金の組織と磁気特性に対する Ni 添加量の影響 ”
銅と銅合金 54(2015) 37-40 .

D-H. Lee, M. Takeda, M. Takeguchi, D-S. Bae “Precipitation Behavior and Magnetic Properties of Nanoscale Particles in a Cu-10at%Ni-5at%Co Alloy” Applied Material Research, (2014) 9pp.

金俊燮、谷内敏之、辛 埴、竹田真帆人
” Cu-20at%Ni-5at%Fe 合金単結晶に形成されたナノ磁性粒子の微細構造と磁区構造の関係 ”
銅と銅合金 53(2014) 27-30 .

李東海、竹田真帆人
” Cu-10at%Ni-5at%Co 合金の組織と磁気特性に対する時効の影響 ”
銅と銅合金 53(2014) 23-26 .

M.Takeda, N. Wada, Z. Hiroi, J. Kadono, M. Perez, S. Rivoirard, “Influence of a magnetic field on the precipitation behavior of nano-scale cobalt particles in a copper matrix” Materials Letters, 98 (2013) 201-204.

D-H. Lee, T. Moriki, M. Takeda, Kang Sung, D.S.Bae, M. Mizuguchi and K. Takanashi, “Relationship between the Microstructure and the Magnetic Properties of Nano-scale Magnetic Particles Formed in a Cu-Ni-Co Alloy” J. Korean Physical Society, 63 (2013)555-558.

李東海、竹田真帆人
” Cu-Ni-Co 合金における組織変化と磁気特性への影響 ”
銅と銅合金 52(2013) 19-22.

[学会発表](計 16 件)

金俊燮、坂倉響、竹田真帆人 “ Cu-Ni-Fe 合金に形成された磁性微粒子の微細組織と熱磁気特性 ” 日本銅学会 第 55 回講演大会、2015 . 11 . 02 ~ 03 .、大阪大学

坂倉響、金俊燮、竹田真帆人 “ Cu-Ni-Co 合金における微細析出粒子と磁気特性の関係 ” 日本銅学会 第 55 回講演大会、2015 . 11 . 02 ~ 03 .、大阪大学

Jun-Seop Kim, M. Takeda, Dong-sik Bae

“Microstructure and Magnetic properties of nanoscale magnetic precipitates formed in a Cu₇₅Ni₂₀Fe₅ alloy”, IUMRS-ICAM 2015, 2015. 10. 25~29., Jeju KOREA.

H. Sakakura, Jun-Seop Kim, Dong-Hae Lee, K. Kumagai, M. Takeda “The microstructures and magnetic properties in Cu-25at%Ni-5at%Co and Cu-25at%Ni-5at%Fe alloy”, IUMRS-ICAM 2015, 2015. 10. 25~29., Jeju KOREA.

Jun-Seop Kim, H. Sakakura and M. Takeda “Microstructure and thermomagnetic properties of magnetic fine particles formed in a Cu-Ni-Fe alloy aged at 873K”, ISAE 2015, 2015. 10. 22~24., Busan KOREA.

H. Sakakura, Jun-Seop Kim, M. Takeda “The precipitation behaviour and magnetic properties of Cu-Ni-Co alloys under isothermal annealing at 873K and 973K”, ISAE 2015, 2015. 10. 22~24., Busan KOREA.

金俊燮, 竹田真帆人 “Cu-Ni-Fe 合金単結晶における析出過程と磁気特性の関係” 2015年日本金属学会秋期講演大会、2015.09.16~18., 九州大学

坂倉響, 竹田真帆人, 李東海 “Cu-Ni-X (X=Co, Fe) 合金における磁性微粒子析出過程と磁気特性の関係” 2015年日本金属学会秋期講演大会、2015.09.16~18., 九州大学

Jun-Seop Kim, T. Taniuchi, Dong-Sik Bae, H.Sakakura, M.Takeda “Microstructural evolution and Magnetic properties of nano- precipitates formed in a Cu₇₅-Ni₂₀-Fe₅ alloy single crystal”, Nano Korea 2015, 2015. 07. 01~03., Seoul KOREA.

金俊燮、竹田真帆人、廣井善二 “Cu-20atNi-5at%Fe 合金単結晶における微視的組織と磁気特性の関係” 日本銅学会 第54回講演大会、2014.11.08~09., 横浜国立大学

李東海、竹田真帆人 “Cu-Ni-Co 合金の組織と磁気特性に対する Ni 添加量の影響” 日本銅学会 第54回講演大会、2014.11.08~09., 横浜国立大学

Junseop Kim, Donghae Lee and M. Takeda

“ The relationship between microstructure and magnetic domain configuration of nanoparticles embedded in a single crystal of Cu-20 at%Ni- 5at%Fe alloy” ISAFM 2014, 2014. 08. 07 ~ 08., Yokohama National University.

金俊燮, 竹田真帆人 “Cu-Ni-Fe 合金単結晶における微細構造の変化と磁性特性” 2014年日本金属学会秋期講演大会、2014.09.24~26., 名古屋大学

李東海, 竹田真帆人 “Cu-Ni-Co 3元系合金中の磁性微粒子析出過程と磁気特性の関係” 2014年日本金属学会秋期講演大会、2014.09.24~26., 名古屋大学

金俊燮、竹田真帆人、谷内敏之、辛埴 “Cu-Ni-Fe 単結晶に形成されたナノ磁性粒子の微細構造と磁化方向の関係” 日本銅学会 第53回講演大会、2013.11.16~17., 関西大学

李東海、竹田真帆人 “Cu-10at%Ni-5at%Co 合金の組織と磁気特性に対する時効の影響” 日本銅学会 第53回講演大会、2013.11.16~17., 関西大学

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

○出願状況(計0件)

6. 研究組織

(1)研究代表者

竹田真帆人 (TAKEDA, Mahoto)
横浜国大・大学院工学研究院・准教授
研究者番号：30188198

(2)研究分担者

()

研究者番号：

(3)連携研究者

廣井善二 (HIROI, Zenji)
東大・物性研究所・教授
研究者番号：30192719