

Electron Holography Studies of Magnetic Domains and their Application in Permanent Magnets

Sujin Lee*, Tae-Hoon Kim, and Jung-Goo Lee

Department of Magnetic Materials, Korea Institute of Materials Science, Changwon 51508, Korea

(Received 13 March 2024, Received in final form 22 April 2024, Accepted 22 April 2024)

This article explained the background and principles of electron holography that allows us to determine the phase shift of incident electrons and observe the magnetic domains from a nanometer-scaled area. We reviewed the studies on the application of the electron holography to various permanent magnets. In particular, we discussed a method for measurement the magnetic flux density of ultra-thin (~3 nm) grain boundaries within a Nd-Fe-B sintered magnet, which was determined from the phase information. Furthermore, we proposed a method to extract the information about the demagnetization field within a Nd₂Fe₁₄B single-crystalline specimen from the electron holography observation (*i.e.*, the reconstructed phase image). The mapping of demagnetization field derived from this method showed a good agreement with the result of micromagnetic simulation. Therefore, these two methods proposed in this article can be promising tools for the development of high coercivity in permanent magnets.

Keywords : electron holography, coercivity, Nd-Fe-B magnet, demagnetization field, grain boundary

전자선 홀로그래피를 이용한 영구자석의 자구 관찰 및 응용 연구

이수진* · 김태훈 · 이정구

한국재료연구원 자성재료연구실, 경남 창원시 창원대로 797, 51508

(2024년 3월 13일 받음, 2024년 4월 22일 최종수정본 받음, 2024년 4월 22일 게재확정)

본 논문에서는 입사 전자의 위상차를 결정하고 나노미터 스케일 영역에서 자구를 관찰할 수 있는 전자선 홀로그래피의 배경과 원리에 대해 다루었다. 전자선 홀로그래피는 다양한 영구자석에 적용되었으며, 특히 Nd-Fe-B 소결 자석 내에서 위상 정보를 바탕으로 극히 얇은(~3 nm) 입계상의 자속 밀도를 측정하는 방법에 대해 논의하였다. 또한, 전자선 홀로그래피를 통해 얻은 재생성된 위상 이미지로부터 영구 자석 내 분포하는 반자장의 정보를 추출하는 방법을 Nd₂Fe₁₄B 단결정 시편을 사용하여 제안하였다. 제안된 방법으로부터 얻어진 반자장 분포맵은 미소자기 전산모사 결과와 잘 일치하였다. 따라서 본 논문에서 제안된 두 가지의 전자선 홀로그래피 기법들은 고보자력 영구 자석 개발에 높은 기여를 할 수 있는 분석 도구로서의 역할을 기대할 수 있다.

주제어 : 전자선 홀로그래피, 보자력, Nd-Fe-B 자석, 반자장, 결정입계

I. 서론

전자선 홀로그래피(electron holography)는 시편을 통과한 전자 파동의 위상(phase)과 진폭(amplitude)의 정보를 얻을 수 있는 기법이다[1,2]. 전자선 홀로그래피는 투과전자현미경(transmission electron microscopy, TEM)을 통해 활용될 수 있으나, 시편을 통과한 입사전자의 강도(intensity)로 이루어진 TEM 이미징과는 전혀 다른 기법이다. 전자선 홀로그래피의

등장은 TEM의 대물 렌즈(objective lens)의 구면 수차(spherical aberration)를 극복하는 목적으로 1948년 Gabor[3]에 의해 제안됐다. 그러나 시편의 in-plane 성분의 자속 밀도(magnetic flux density, B)와 정전기 퍼텐셜(electrostatic potential)의 정보가 시편을 통과한 입사전자의 위상차(phase shift)를 통해 알 수 있으며, 이러한 원리는 나노 스케일 영역에서의 시편의 자구(magnetic domain) 구조를 가시화할 뿐만 아니라 자속 밀도와 정전기 퍼텐셜의 정량적 측정을 가능하게 했다. 가장 대표적으로 많이 쓰이는 홀로그래피 기법은 1956년 Möllenstedt-Düker 바이프리즈(biprism)[4]을 사용한 오프-엑시스(off-axis) 전자선 홀로그래피이다. 바이프리즈는 일반적으로(단일 바이

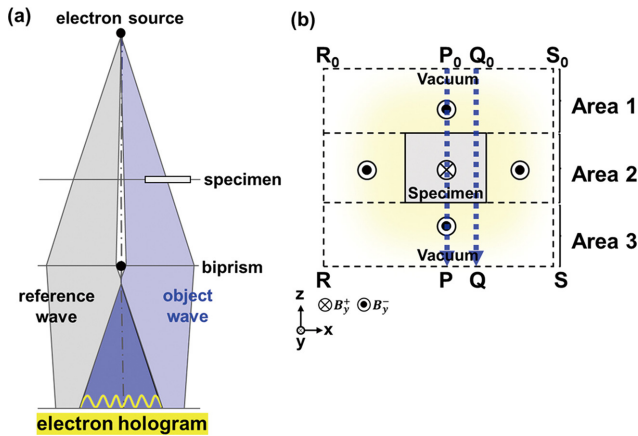


Fig. 1. (Color online) (a) Electron-beam diagram showing conventional electron holography. (b) Schematic illustration showing a cross section of a magnetic bar magnetized in the y direction. Incident electrons traverse in the $-z$ direction.

프리즘의 경우) 시편 아래 first image plane에 위치해 있으며 중요한 점은 전하를 띤 와이어로써 Fig. 1(a)의 전자선 홀로그래피 모식도와 같이 시편만을 통과하여 위상의 변화가 일어나는 입사 전자의 물체파(object wave)와 진공 영역만을 통과하여 위상의 변화가 없는 참조파(reference wave)를 간섭하게 만드는 즉, 간섭 줄무늬(interference fringe)로 이루어진 홀로그램(electron hologram)을 얻게 한다. 이후 얻어진 홀로그램은 일련의 푸리에 변환(Fourier transform)을 적용하여 위상 이미지를 복원한다. 여기서 재생성된 위상 이미지(reconstructed phase image)는 시편의 전기장과 자기장의 정보가 합쳐져 있으며, 두 성분을 분리하여 자기장 정보만을 가시화할 수 있는 방법을 다음 섹션에서 논의하고자 한다.

전자선 홀로그래피를 통한 자성재료의 초기 연구들은 위상 이미지의 낮은 공간 해상도(spatial resolution)의 문제를 겪었다. 이유는 대물 렌즈(objective lens)가 자기장을 발생시키는 코일과 이 자기장을 집중시키는 위아래로 위치한 폴피스(polepiece)로 구성되어 있으며, 이로 인해 자성 재료의 자구 구조를 관찰하기 위해서는 대물 렌즈에서 시편을 멀리 떨어뜨려야 하거나, 대물 렌즈를 꺼놓고 시편을 관찰해야 했다. 따라서 관찰할 수 있는 배율의 한계와 그 당시 홀로그램을 기록하기 위한 레코딩 기술과 위상 복원의 디지털화가 실용화되지 않았기 때문이다. 이 당시 주목할만한 초기 연구 결과로는 1986년 Tonomura et al.[5]은 저온에서 얇은 초전도 Nb 내 아로노프-봄 효과(Aharonov-Bohm effect)를 확인하였고, 1993년 Bonevich et al.[6]은 초전도 Nb 박막 내 간섭 줄무늬의 간격이 좁아지는 관찰을 통해 와류(vortex) 구조를 밝혀낼 수 있었다. 그 이외에도 고 저장 용량을 가진 자기 녹음 재료로써 얇은 Co 박막으로 된 녹음 테이프의 자구 구조를 관찰할

수 있었으며[7], 단자구(single domain)로 이루어진 바륨페라이트(barium-ferrite) 분말 내 자화를 관찰하는[8] 등의 연구들이 이루어졌다. 이후 자성 재료를 관찰하기 위해 대물 렌즈를 꺼놓은 상태에서 로렌즈 렌즈를 사용하여 시편 위치 내 잔류 자기장이 없는 환경에서 고배율로 홀로그램을 기록할 수 있게 된다. 또한 TEM에서 안정적인 간섭성(coherency)의 전자빔을 방출할 수 있는 전계방출형 전자총(field-emission gun, FEG)의 개발[9]을 통해 전자선 홀로그래피의 실용화가 가속화되었다. 이후 컴퓨터 속도 및 메모리의 급속한 성장[1,10], 바이프리즘 끝(edge) 표면에서 발생하는 전자빔 산란으로부터 기인한 프레넬 프린지(Fresnel fringe)를 제거하여 홀로그램을 수집할 수 있는 다중 바이프리즘[11-13], 재생성된 위상 이미지의 측면 해상도(lateral resolution)를 향상시켜주는 수차보정(aberration correction), 노출 시간 내에서 시편/전자빔의 드리프트를 최소화하면서 충분한 대비(contrast)의 홀로그램을 기록할 수 있는 slow-scan 전하 결합 소자(charge-coupled-device, CCD) 카메라[14]의 출현, 그리고 최근에는 우수한 변조전달 함수(modulation transfer function, MTF)를 가진 직접 검출 카메라(direct detection camera)[15]의 개발과 같은 주변 기술의 진전으로 인해 경자성/연자성 재료[16-20], 나노 분말[21-28], 자기 스커미온 및 카이랄 구조[29-34] 등 다양한 자성재료에 관한 전자선 홀로그래피 연구가 진행되었다.

본 논문에서는 전자선 홀로그래피가 적용된 다양한 자성 재료 중 경자성체인 영구자석 재료에 적용된 연구 사례들을 살펴보고자 한다. 특히 친환경 전기/하이브리드 자동차의 구동모터에 쓰이는 영구자석의 경우 높은 보자력(coercivity)이 요구되며, 이는 자기 이방성 향상을 통한 자화 반전(magnetization reversal)을 지연시키거나 역자구(reverse magnetic domain)의 생성 및 성장을 방해하는 방향 등으로 이루어질 수 있다[35]. 이에 따라 고보자력 영구자석 개발을 위해서는 자구 분석이 불가피하다. 따라서 본 논문은 영구자석의 보자력을 결정짓는 요인들을 분석하고 관찰하기 위해 활용된 전자선 홀로그래피만의 독특한 기술들을 소개하며, 이를 영구자석에 적용한 연구 결과들을 논의하고자 한다. 먼저, 전자선 홀로그래피로부터 얻어진 위상차와 자기장 간의 관계식을 통해 자속 밀도의 분포와 세기를 결정하는 원리에 대해 살펴보자.

II. 전자선 홀로그래피

1. 전자선 홀로그래피의 원리

전자선 홀로그래피를 통해 관측된 입사전자의 위상차에 대해 설명하기 위하여 Fig. 1(b)는 TEM 내 y 방향으로 자화 된 시편의 단면을 나타냈다. 입사 전자의 진행 방향은 $-z$ 방향이

며, P_0 -P 그리고 Q_0 -Q와 동일하다. 이 P_0 , Q_0 , P, Q의 위치가 시편으로부터 기인한 자속 밀도의 영향이 없을 정도의 충분히 먼 거리라고 가정하였을 때, P_0 -P 진행방향에 따라 P 위치에 도달한 입사전자의 위상차(ϕ_P)는 다음과 같은 식으로 정의된다[1].

$$\phi_P = \sigma \int_{P_0}^P V(x, y, z) dz - \frac{e}{\hbar} \int_{P_0}^P A_z(x, y, z) dz, \quad (1)$$

여기서 σ 는 입사 전자에 인가되는 가속전압에 따른 상호 작용 계수(interaction constant), $\hbar$ 는 2π 로 나누어진 플랑크 상수(Planck's constant)이다. $V(x, y, z)$ 는 정전기 스칼라 퍼텐셜(electrostatic scalar potential)을 나타내고, A_z 는 자속 밀도($\mathbf{B}$)에 관한 z 성분의 벡터 퍼텐셜($\mathbf{A}$)을 의미한다. 만약 시편에 가해지는 전기 부하(electric charging)가 무시할 수 있을 정도로 작다면, 결정 내 전자 산란으로 인한 위상차를 고려하지 않음으로써 V 는 시편의 평균 내부 전위(mean inner potential, V_0)로 근사화 할 수 있다[1]. 실제로는, 브래그 되비침(Bragg reflection)과 같은 원치 않는 전자 산란으로 인한 위상차를 억제하기 위하여 결정립의 관측(zone-axis)에서 벗어난 상태로 홀로그래프를 취득한다. 식(1)과 같이 입사 전자의 위상차는 V 식(1)의 첫 번째 항과 A_z 식(1)의 두 번째 항에 의한 위상차의 합을 의미한다.

2. 위상차로부터의 자기장 정보 획득

V 와 A_z 에 의한 각각의 위상차를 서로 분리할 수 있는 효과적인 방법은 Fig. 2에서 나타낸 시간 반전(time reversal) 방법[36]이다. 시간 반전 방법은 Fig. 2(a)의 모식도와 같이 동일한 입사 전자의 진행 방향을 기준으로 시편을 위아래로 뒤집어 데이터들을 취득하는 방법이다. 해당 방법은 시편의 뒷면을 반대로 뒤집을 때 전기장($\mathbf{E}$)에 의한 위상차는 동일하지만, 자기장에 의한 성분은 서로 반대 방향의 부호를 얻게 된다. 즉, $m \frac{d\mathbf{v}}{dt} = -e(\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B})$ 이 $m \frac{d\mathbf{v}}{dt} = -e(\mathbf{E} - \mathbf{v} \times \mathbf{B})$ 로 변하며, 여기서 t 와 $\mathbf{v}$ 는 시편 두께와 속도를 나타낸다. 시간 반전에 의해 취득된 두 이미지를 더하면 Fig. 2(b)와 같이 V 에 의한 위상 이미지를 얻게 되며, 두 이미지를 빼면 Fig. 2(c)와 같이 A_z 에 의한 위상 이미지를 얻을 수 있다. 여기서 P와 Q 두 지점 사이의 A_z 만을 고려한 위상차(ϕ_{PQ})를 표현하면 다음식과 같다.

$$\phi_{PQ} = -\frac{e}{\hbar} \int_{Q_0}^Q A_z(x, y, z) dz + \frac{e}{\hbar} \int_{P_0}^P A_z(x, y, z) dz. \quad (2)$$

그리고 Stokes' theorem과 $\mathbf{B} = \text{rot} \mathbf{A}$ 의 관계식을 대입함으로써 식(2)의 ϕ_{PQ} 는 자속 밀도와 관련된 식으로 표현된다.

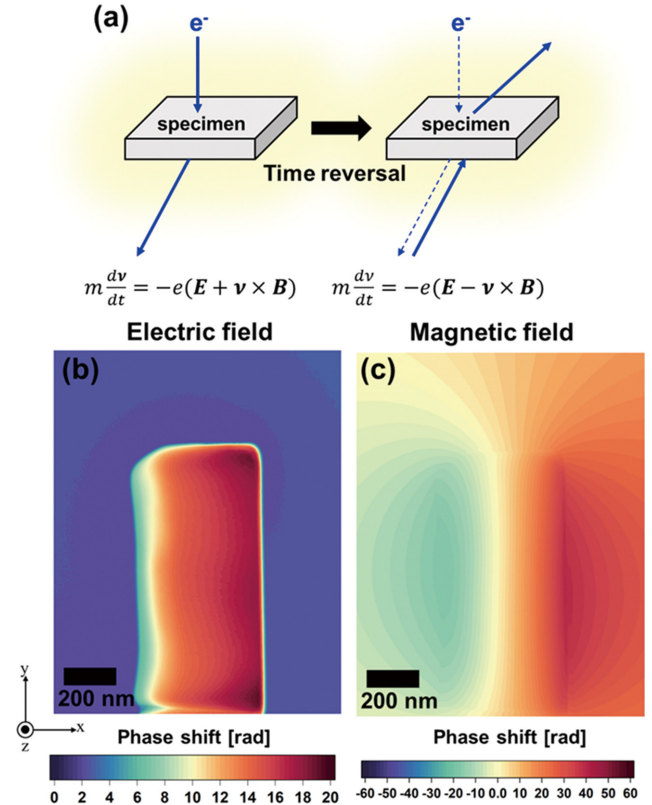


Fig. 2. (Color online) (a) Schematic representation showing the time reversal of electron trajectories in electromagnetic fields. Reconstructed phase images representing the contribution of (b) electric field and (c) magnetic field for a thin-foiled $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ magnet.

$$\phi_{PQ} = \Delta\phi_B = -\frac{e}{\hbar} \iint_{P_0 Q_0 Q P} B_y(x, y, z) dx dz. \quad (3)$$

B_y 는 자속 밀도의 y 성분을 나타내며, 즉 위상차 $\Delta\phi_B$ 는 벡터 포텐셜 대신 자속 밀도의 y 성분을 사용한 면적분을 통해 나타낼 수 있다. 중요한 점은 B 는 자화(magnetization, M), 시편 외부에 분포하는 표류장(stray magnetic field, H_s), 그리고 시편 내부에 분포하는 반자장(demagnetization field, H_d)의 합이며, 특히 H_d 는 영구자석의 보자력을 결정짓는 주요 요인 중 하나이다. 그러나 전자선 홀로그래피만을 사용해서는 H_d 만의 정보를 얻을 수 없으며, 이를 해결하기 위해 전자선 홀로그래피를 응용하여 H_d 의 정보를 추출할 방법에 대해서 섹션 4장에서 논의하고자 한다. 그리고 자화의 크기는 일정하고 x - y 평면 내에서 자화의 방향만 변화하는 경우 맥스웰 방정식인 $\nabla \cdot \mathbf{B} = 0$ 을 사용하면 식(3)으로부터 식(4)로 표현될 수 있다.

$$B_y(x, y) = -\frac{\partial \Delta\phi_B}{\partial x} \cdot \frac{\hbar}{e} \cdot \frac{1}{t}. \quad (4)$$

따라서 위상차의 기울기로부터 B 의 세기를 예측할 수 있는

정량적 분석이 가능하다. 이러한 전자선 홀로그래피의 기능으로 인해 직접적으로 B 의 세기를 측정할 수 있으며, 이는 소결 Nd-Fe-B 자석 내 결정입계의 B 를 결정하는데 활용된다[37-39]. 자세한 리뷰는 다음 섹션들에서 논의하고자 한다.

III. 영구자석의 자구 관찰

전자선 홀로그래피에 더하여, 로렌츠 현미경은 TEM 기

법 중 하나로 자구 구조를 이미지화하는데 유용한 방법이다. 로렌츠 현미경은 자벽(magnetic domain wall)의 위치를 관찰할 수 있으며, 이는 오버 포커스(over focus)/언더 포커스(under focus) 상태에서 TEM 이미지를 관찰 시 밝은(높은 대비) 선과 어두운(낮은 대비) 선으로 나타난다[40,41]. 자벽의 가시화는 시편의 자기장에 의해 유도된 로렌츠 힘에 의한 입사 전자의 편향에서 비롯된다. 따라서 자화반전 동안에 자벽의 거동 또한 실시간으로 관찰할 수 있다. 그러나 자기력선이 자벽을 가

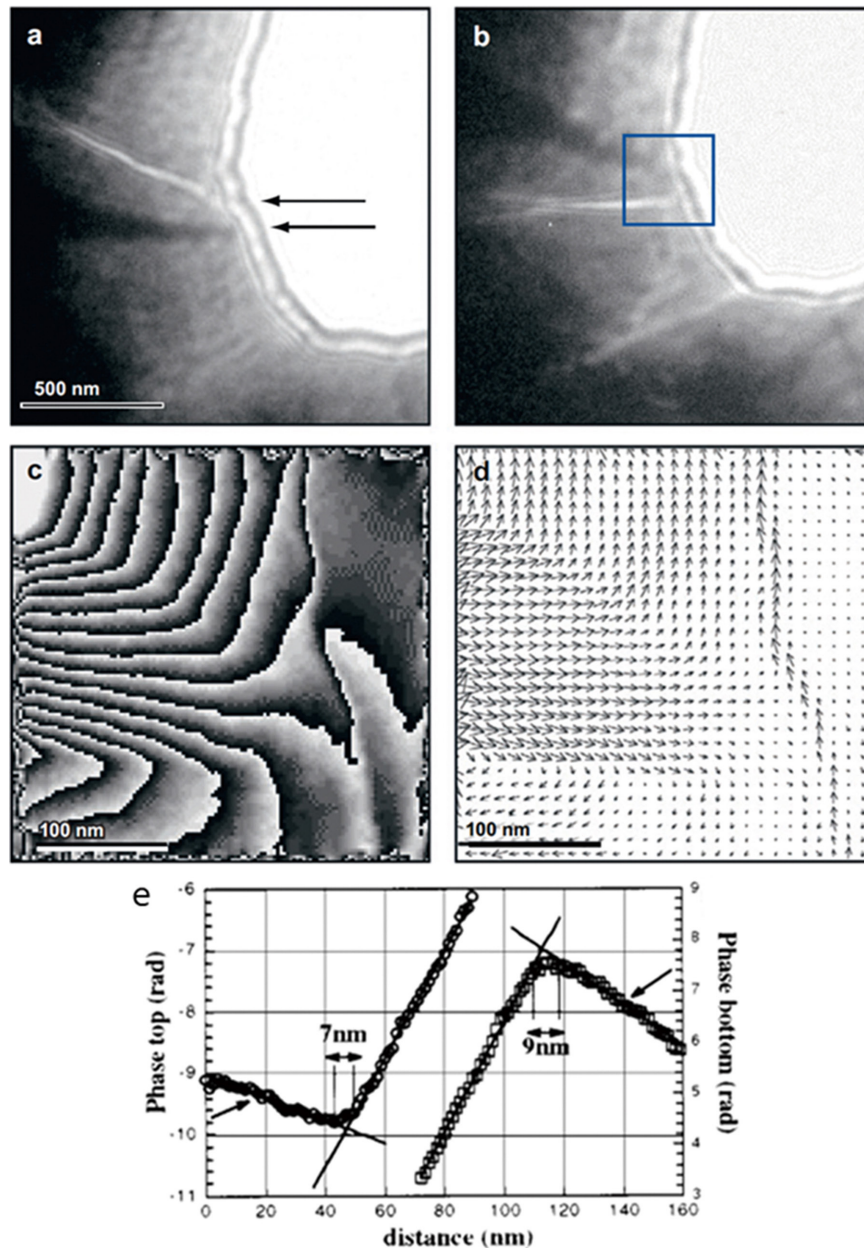


Fig. 3. (Color online) (a) Over-focus and (b) under-focus Lorentz images of non-parallel domain walls in Nd₂Fe₁₄B. Box indicates area used for off-axis holography. (c) Reconstructed phase image from outlined region contoured at 0.5π radian intervals. (d) Vertical gradient of (c). (e) Domain wall width measurements from phase profiles. Circles (top wall) and squares (bottom wall) are phase data, solid lines are linear fits. The figures are reprinted with permission from [17].

로지르는 형태와 같은 복잡한 자화 분포를 가진 시편의 경우 뚜렷한 자벽의 위치를 관찰하기가 어려우며, 자기장의 세기 측정과 같은 정량화 정보를 제공할 수 없다. 그러나 전자선 홀로그래피는 나노미터 영역의 자기력선의 분포를 직접적으로 관찰할 수 있으며, 자속 밀도값을 측정할 수 있다. 전자선 홀로그래피를 활용한 자구 구조의 분석은 영구자석의 높은 보자력과 자화반전과 같은 중요한 자기적 특성을 이해하는데 많은 기여를 할 수 있다. 이를 기반으로 로렌즈 현미경과 전자선 홀로그래피가 영구자석에 적용한 연구들을 살펴보고자 한다.

1. Nd-Fe-B 자석

Nd-Fe-B 영구자석은 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 주상(2:14:1)의 높은 결정 자기이방성($K_u \approx 4.5 \text{ MJ}\cdot\text{m}^{-3}$)과 높은 포화자화($\sim 1.6 \text{ T}$)로 인해 우수한 경자성 특성인 높은 보자력과 잔류 자화를 가진다. McCartney and Zhu는[16,17] die-upset 법에 의해 제조된 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 자석 내 나노미터 크기의 자벽을 관찰하였다. Fig. 3(a)와 3(b)는 로렌즈 이미지이며, Fig. 3(c)는 Fig. 3(b)로부터 확대한 영역의 재생성된 위상 이미지를 나타낸다. 여기서 등위상선의 간격(단위 길이당 위상 변화)은 in-plane 성분의 자속 밀도 B 의 세기를 의미하고, 등위상선의 간격이 좁아질수록 높은 B 의 세기를 나타낸다[2]. Fig. 3(d)의 벡터 맵에서 화살표의 방향과 크기는 B 의 방향과 세기를 나타내며, 이는 Fig. 3(c)의 위상차를 식(4)에 적용 시 계산될 수 있다. 그 결과 위, 중간, 아래 위치의 세개의 자구의 자화 크기는 0.8 T , 1.2 T , 0.5 T 로 나타나며, 이러한 편차는 전자선 홀로그래피가 시편의 in-plane 성분의 B 에 대한 정보만을 얻을 수 있다는 점 또는 시편 표면에 인접한 외부의 강한 자기장으로 인한 원치 않는 위상 변화의 영향 등이 원인이 될 수 있다. 사실 자벽의 두께는 Fig. 3(e)와 같이 급격한 위상의 변화가 보이는 구간으로부터 유추할 수 있으며 최대 7 nm 와 9 nm 폭을 가진 90° 와 180° 자벽을 나타냈다. 이외에도 Park et al.[42]은 전자선 홀로그래피를 사용하여 멜트 스피닝 기법으로 제조된 Nd-Fe-B 자석을 관찰하였으며, 특히 어닐링 온도에 따른 자벽 영역에서의 자기력선의 분포를 관찰함으로써 보자력 증가의 원인을 분석했다.

영구 자석의 자화 거동을 관찰하기 위해서는 시편 내 강한 자기장을 인가할 수 있어야 한다. 이를 위해 시편 홀더에 위치한 전자석을 사용하게 되면 시편에 가할 수 있는 최대 자기장 값은 0.05 T 가 한계이다. 이러한 한계의 이유는 전자석에서 발생한 자기장이 시편의 in-plane 방향뿐만 아니라 시편 위아래로 퍼지게 됨으로써 입사 전자의 강한 회절 현상이 발생하기 때문이다. 이를 해결하기 위해 Nd-Fe-B로 된 작고 날카로운 형태의 자기 니들(magnetic needle)을 사용하기 시작했

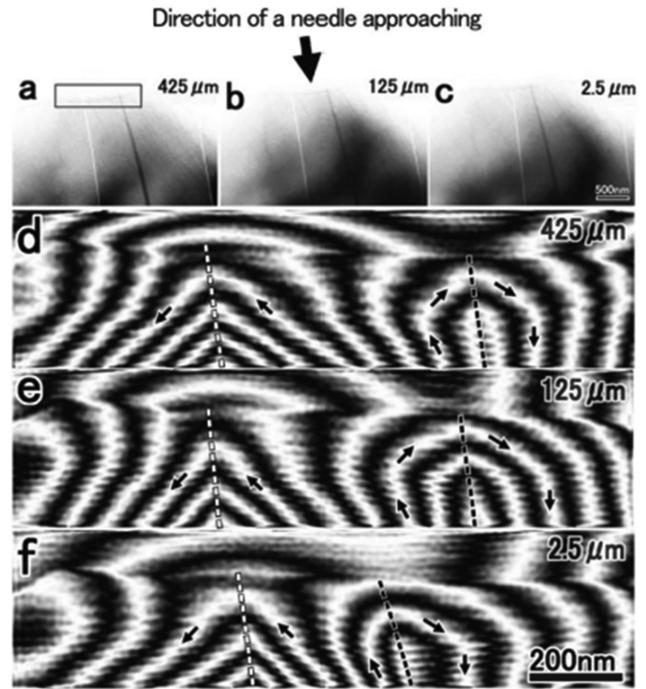


Fig. 4. Lorentz microscope images (a)~(c) and reconstructed phase images (d)~(f) of sintered $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$. The reconstructed phase images correspond to the rectangular region in (a). The distances between the needle and the specimen are shown in the figures. The direction (big arrow) of the needle approaching is also indicated at the top. The figures are reprinted with permission from [43].

다[43]. Nd-Fe-B 니들의 위치는 압전 소자를 사용하여 제어함으로써 니들이 시편에 접근할수록 시편에 강한 전기장을 가할 수 있는 원리이다. 해당 기법을 사용하여 소결된 Nd-Fe-B 자석 시편의 실시간 자화 거동을 관찰한 결과는 Fig. 4에서 볼 수 있다[43]. Fig. 4(a)~4(c)와 Fig. 4(d)~4(f)는 니들이 시편에 접근할 때의 시편의 로렌즈 이미지들과 재생성된 위상 이미지들을 나타내며, Fig. 4(d)~4(f)에서 검은색 화살표의 방향은 자기력선의 방향을 표시했다. 자벽의 거동과 위상 이미지로부터 제공된 자기력선의 분포를 통해 자기 니들이 시편에 가까워질수록 즉, 시편에 강한 자기장이 인가될수록 니들의 접근 방향과 평행한 방향의 자화 방향을 가진 자구들이 점점 증가된다. 반면, 니들의 접근 방향과 반대 방향을 가진 자구들의 영역은 감소됨을 알 수 있다. 이 결과는 로렌즈 현미경과 전자선 홀로그래피 관찰을 통해 Nd-Fe-B 자석 내 in-plane 방향으로 강한 자기장을 인가함으로써 실시간 자화 거동을 관찰할 수 있음을 보여준다.

2. Sm-Co와 Alnico 자석

보자력의 증가를 이끄는 메커니즘 중 자화반전시 역자구의 핵생성(nucleation) 메커니즘이 지배적인 Nd-Fe-B 자석과 달리 Sm-Co 자석은 pinning 메커니즘을 따른다. 따라서 Sm-Co 자

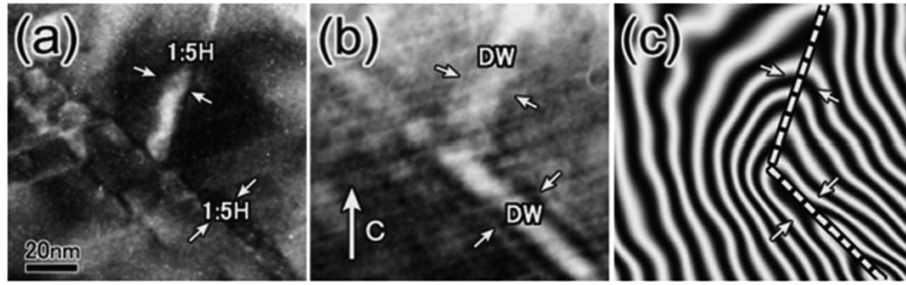


Fig. 5. (a) Bright field image, (b) Lorentz microscope image, and (c) reconstructed phase image in the same area in a thin-foiled $\text{Sm}(\text{Co}_{0.720}\text{Fe}_{0.200}\text{Cu}_{0.055}\text{Zr}_{0.025})_{7.5}$ magnet. The small white arrows indicate the cell boundary and domain wall at which magnetic domain walls are present. The small white arrows in (b) represent the cell boundaries, at which magnetic domain walls are absent. The white large arrow shows the direction of the c -axis. The figures are reprinted with permission from [44].

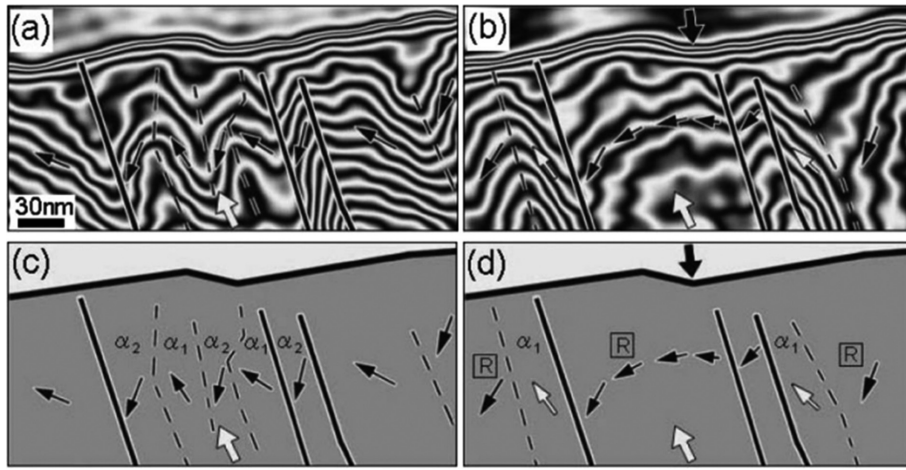


Fig. 6. (a) Reconstructed phase image of demagnetized Alnico 8. (b) Reconstructed phase image after inducing a magnetic field using the magnetic needle. (c) and (d) are schematic illustration of (a) and (b), respectively. Solid and broken black lines indicate the interaction domain boundaries. The interaction domain boundaries that are not changed by inducing a magnetic field are depicted by solid black lines. Small black and white arrows indicate the direction of lines of magnetic flux. Large black and white arrows indicate the direction of approach of the magnetic needle and the direction of the magnetic field applied in the thermomagnetic treatment, respectively. The figures are reprinted with permission from [45].

석의 자벽이 pinning이 되는 요인들을 규명하는 것이 중요하다. Okabe et al.[44]은 주로 $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 상과 SmCo_5 상(1:5H 상)으로 이루어진 Sm-Co 자석에 열처리 조건에 따른 자구 구조를 분석하였다. Fig. 5(a)와 같이 최적화된 열처리 조건이 적용된 Sm-Co 시편의 경우 곧은 형태가 아닌 지그재그 형태로 Cu가 편석된 셀 입계상(1:5H 상)이 형성된 것을 알 수 있다. Fig. 5(b)의 로렌츠 이미지를 관찰한 결과 자벽(DW로 표시함)의 위치가 1:5H 상의 분포와 거의 일치함을 나타낸다. 해당 결과는 Fig. 5(c)의 위상 이미지를 통해 확인해지며, 1:5H 상의 중심부 위치에 따라 자기력선이 대칭적으로 분포되어 있다. 실시간으로 자벽/자기력선의 거동을 관찰한 결과(not shown here), Cu 원자가 응집된 1:5H 상에 강력한 pinning 현상이 발생하였으며, 이는 Sm-Co 자석의 높은 보자력의 원인이 되었다.

Alnico 자석의 pinning 과정 또한 전자선 홀로그래피를 통해

관찰되었다[45]. Fig. 6(a)는 Alnico 8 시편의 외부 자장이 없는 상태에서의 위상 이미지를 나타내며, Fig. 6(b)는 자기 니들을 시편에 접근시킨 후의 위상 이미지를 나타낸다. Fig. 6(c)와 6(d)는 Fig. 6(a)와 6(b)의 각각의 모식도를 나타낸다. Alnico 자석은 강자성인 α_1 상과 비자성인 α_2 로 구성되며, Fig. 6(a)와 6(c)를 보면 α_1 상과 α_2 상 사이의 결정입계에서 자기력선의 방향이 바뀐다. 이는 단자구로 여겨지는 강자성인 α_1 상의 강한 H_c 로 인한 결과로 여겨진다. Fig. 6(b)와 6(d)를 보면 큰 검은색 화살표가 나타난 자기 니들이 인가한 자기장 방향과 반대 방향을 가진 자구가 자기 니들의 방향으로 자화반전(R로 표시)된 것을 알 수 있다. 아직 자화반전이 되지 않는 자구 폭을 측정한 결과 약 30 nm로 α_1 상의 크기와 동일하며[46,47], 이러한 결과는 Alnico 8은 강자성체인 α_1 상의 엇결성 회전(incoherent rotation) 메커니즘을 따르는 자화반전 거동을 나타낸다.

IV. 고보자력 영구자석 개발을 위한 전자선 홀로그래피의 응용

상업적으로 가장 많이 사용되는 Nd-Fe-B 소결 자석은 앞서 설명했듯이 2:14:1의 높은 자기 결정 이방성과 포화자화로 인해 영구자석들 중 가장 높은 최대 에너지적을 제공한다[48-50]. 이로 인해 하이브리드/전기 자동차, 로봇, 드론 등 여러 고부가가치 산업 제품의 구동모터로 사용되고 있다. 더욱이 친환경 모빌리티 산업으로 인해 구동모터의 소형화 수요가 증가함에 따라 더 높은 보자력을 가진 영구자석이 필요한 실정이다. 그러나 Nd-Fe-B 소결 자석은 대략 1.2 T의 보자력을 가지지만, 모터의 구동 온도(473 K)에서 상당한 보자력의 감소가 발생한다는 문제점이 있다. 이는 자기적 이방성이 높은 Dy과 같은 중희토류 원소를 Nd와 치환하여 2:14:1 주상의 자기 결정 이방성 향상을 통한 보자력을 증가시킬 수 있으나, Fe와 중희토류 원자간의 반강자성 결합(antiferromagnetic spin coupling)으로 인해 소결 자석의 잔류 자화를 감소시킨다. 따라서 중희토류 사용을 저감하면서 영구자석의 고보자력을 얻을 수 있는 기술 개발이 요구되고 있다[48-52].

1. Nd-Fe-B 자석 내 결정입계에서의 자속 밀도 측정

보자력을 향상시키는 유용한 방법 중 하나는 결정학적 미세구조를 최적화하는 것이다. 그 예로, 소결 자석 내 비강자성의(non-ferromagnetic) 결정입계(GB)를 형성하는 것이다. Nd-Fe-B 계 소결 자석의 발명 이래로 약 3 nm 이하의 두께를 가

진 GB는 비강자성상으로 여겨져 왔으며[53-58], 이러한 GB는 이웃하는 Nd₂Fe₁₄B 결정립간의 자기교환결합(exchange coupling)을 방해하여 역자구의 전파를 억제함으로써 보자력 증가에 기여할 수 있다. 그러나 Sepehri-Amin et al.[59]는 3차원 원자 탐침 분석(three dimensional atom probe) 법을 통해 얇은 GB 영역에서 예상치 못한 높은 Fe 함량(> 60%)의 결과를 보고했으며, 해당 화학적 조성을 기반으로 만든 모델 박막을 통해 얇은 GB 상이 강자성 상태임을 제시했다. 이러한 예측은 연 X-선 자기 원편광 이색성(soft X-ray magnetic circular dichroism)[60], 스핀-편광 주사전자현미경(spin-polarized scanning electron microscopy)[61]과 같은 여러 측정법을 사용하여 증명되었다. 그러나 GB에서의 강자성의 여부는 소결 자석의 보자력을 결정짓는 필수 요인이지만, 얇은 두께로 인해 실제 Nd-Fe-B 영구 자석 내 GB의 자성 분석은 현재까지도 많은 어려움이 있다. 이러한 얇은 입계상에서의 자속 밀도 측정은 전자선 홀로그래피를 통해 수행될 수 있었다[37-39].

Fig. 7은 전자선 홀로그래피 기법을 활용하여 2:14:1결정립 사이에 위치한 아주 얇은 GB 영역에 대해 자속 밀도(B_{GB}) 측정 원리[37]를 나타낸 모식도이다. Fig. 7(a)는 단결정(결정립 A)으로 이루어진 얇은 박막 시편의 단면을 나타낸다. 전자의 입사방향은 P₀-P, Q₀-Q 방향인 $\rightarrow z$ 방향이며, 시편은 y 방향으로 자화 된 상태이다. P와 Q 위치 사이의 위상차는 식(3)과 같이 P₀Q₀QP 영역에 대한 자속 밀도의 y 성분의 면적분으로 정의될 수 있다. 시편의 두께(t)가 동일하다는 전제 하에 결정립 A 내 P-Q 선을 따라 위상차를 조사하게 되면 Fig. 7(b)와 같

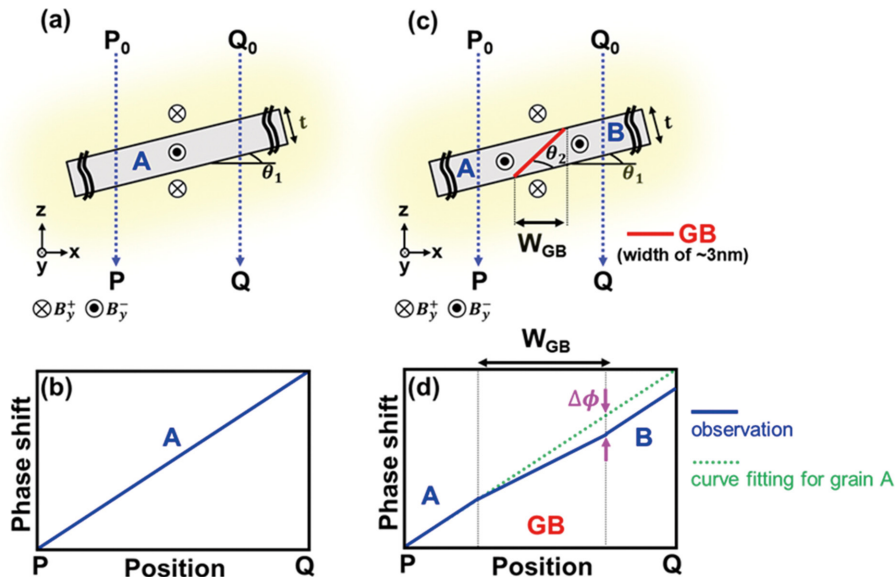


Fig. 7. (Color online) Methods of determining the magnetic flux density in the GB phase[37]. (a) Schematic cross-sectional view of a thin-foil composed of only one Nd₂Fe₁₄B grain, A. (b) Line profile showing phase shift of an electron wave (schematic representation) observed along the P-Q line in (a). (c) Schematic cross-sectional view of a thin-foil containing two Nd₂Fe₁₄B grains, A and B, and a thin GB phase indicated by the red line. (d) Line profile showing phase shift of an electron wave (schematic representation) observed along the P-Q line in (c).

이 단조롭게 증가하는 위상차 곡선을 나타낸다. θ_1 만큼 시편이 기울어져 있는 이유는 섹션 2에서 설명했듯이, 시편의 홀로그래프를 취득할 때 브래그 되비침을 최소화하기 위해 결정립의 판축으로부터 벗어나기 위함이다. Fig. 7(c)는 y 방향으로 자화 된 결정립 A, B 사이에 위치한 3 nm 두께를 가진 비정질의 GB가 포함된 시편의 단면을 나타낸다. 시편 내에서 GB는 θ_2 만큼 기울어져 있다면, 이는 W_{GB} 의 길이만큼 넓은 GB 투영 영역을 관찰할 수 있다. 주목할 점은 GB의 B 는 2:14:1보다 낮기 때문에, GB가 공존한 영역(즉, W_{GB})에서 위상차의 기울기는 결정립 A보다 감소할 것이며 Fig. 7(d)와 같이 나타낼 수 있다. 여기서 결정립 A 영역의 위상차 곡선으로부터 추론된 초록색의 피팅 곡선과 GB 영역에서의 전자선 홀로그래피 관찰값 사이의 편차($\Delta\phi$)가 결정된다. 그리고 시뮬레이션을 사용하여 여러 B_{GB} 값에 따른 $\Delta\phi$ 를 계산하고 실제 관찰된 $\Delta\phi$ 값과 대응된 결과를 통해 결정입계의 자속 밀도를 결정할 수 있다. 그러나, Nd-Fe-B 자석의 경우 2:14:1에 의한 H_s 가 GB의 위상차에 미치는 영향을 고려해야 한다. 이는 시편/결정립의 모양, 각 결정립의 결정 방향(crystal orientation)과 같은 시편의 결정학적/형태학적 정보들을 안다면 시뮬레이션(using ELF/MAGIC code, ELF Corp.)을 통해 계산될 수 있다. Murakami et al.[37]은 얇은 GB 상에 미치는 H_s 를 계산한 결과 20 mT로 위상차에 미치는 영향이 아주 미미한 것으로 보고했다. 그리고 Fig. 7에서 다른 방식을 토대로 B_{GB} 를 측정한 결과, Nd-Fe-B 소결 자석 내 아주 얇은 비정질의 GB 상의 자속 밀도는 ~1.0 T인 강자성체임을 밝혀냈다. 해당 연구 이후 전자선 홀로그래피를 이용한 Nd-Fe-B 소결 자석 내 GB의 자성을 밝혀낸 연구들이 보고되었으며[38,39], 이는 비강자성 GB 설계의 필요성이 높아지면서 결정입계의 미세조직 제어에 관련된 많은 연구들을 촉진시켰다[62-64].

2. 위상차를 이용한 Nd-Fe-B 자석 내 반자장 정보 추출

보자력의 메커니즘에 기여하는 또다른 중요 요소는 Nd-Fe-B 자석 내에서의 반자장 H_d 의 분포이다[65-68]. Nd-Fe-B 영구자석에서 H_d 의 세기와 분포는 Nd₂Fe₁₄B 결정립의 모양, 크기, 그리고 결정 방향에 따라 달라지지만, 자석 내 H_d 의 강한 분포 영역은 역자구의 핵생성 장소(nucleation site)로 작용하여 자화반전을 발생시킬 수 있다. 결론적으로보자력의 약화를 이끈다[67,68]. H_d 분포가보자력에 미치는 영향은 Landau-Lifshitz-Gilbert 방정식[69,70]을 기반한 미소자기 전산모사(micromagnetic simulation)와 같은 시뮬레이션을 통해 주로 연구가 진행되었다[68,71-76]. Li et al.[68]은 2:14:1의 c 면(c -plane) 표면에 강한 H_d 가 분포함으로써 다면체 결정립의 가장자리(edge)와 모서리가 자화반전을 발생시키는 역자구의 핵생성 장소가 될 수 있음을 보고하였다. Bance et al.[72]는 모

텔 시편의 결정립 지름(55 nm에서 8.3 μ m까지)에 따른 H_d 를 계산하여, 각 결정립 크기에 따른 결정립 표면이 자화반전에 미치는 역할에 대해 논의하였다. 이러한 시뮬레이션을 기반한 많은 연구에도 불구하고, H_d 를 관찰할 수 있는 실험 장비의 부재 및 기술적인 한계로 인해 실제 자석 내 H_d 의 분포 정보를 얻는 것은 여전히 어려움을 겪고 있다. 전자선 홀로그래피를 통한 자구 분석 역시 M , H_s , H_d 가 중첩된 자속 밀도 B 에 대한 정보만을 나타낸다는 한계가 있다[1,2]. 이는 로렌즈 TEM 및 differential phase contrast(DPC) 이미징과 같은 전자 현미경 기반의 다른 분석법에서도 공통적으로 마주하고 있는 기술적인 한계이다. 따라서 본 섹션에서는 전자선 홀로그래피로부터 얻어진 시편의 위상 정보로부터 Nd-Fe-B 자석 내의 H_d 정보를 추출하는 방법에 대해 다루고자 한다.

Fig. 8(a)와 8(b)는 y 축으로 긴 사각형 모양의 단결정 Nd₂Fe₁₄B 시편의 TEM 이미지와 이를 전자선 홀로그래피를 통해 얻어진 재생성된 위상 이미지이다. Fig. 8(b)의 위상 이미지는 식(3)에서 설명한대로 B 에 의한 위상차를 나타낸다. 여기서 등위상선의 방향과 간격(색깔의 급격한 변화)은 자속 밀도의 방향과 세기를 의미하며, 흰색 화살표로 대략적인 B 의 방향을 나타냈다. Fig. 8(b)와 같이 x 방향에 따라 위상차의 변화가 양의 기울기를 갖는다는 것은 Fig. 8(a)의 노란색 화살표에 표시한 것처럼 c 축(자화 용이 방향)이 시편의 장축과 거의 평행한 y 방향으로 자화 된 시편임을 의미한다. 중요한 점은 $\Delta\phi_B$ 는 M 에 의한 위상차($\Delta\phi_M$), H_s 에 의한 위상차($\Delta\phi_{H_s}$) 그리고 H_d 에 의한 위상차($\Delta\phi_{H_d}$)의 합으로 표현될 수 있다; $\Delta\phi_B = \Delta\phi_M + \Delta\phi_{H_s} + \Delta\phi_{H_d}$ 따라서 H_d 의 정보를 추출하기 위해서는 $\Delta\phi_M$ 와 $\Delta\phi_{H_s}$ 의 두 위상 정보를 결정할 수 있어야 하며, 그 결과를 Fig. 8(c)와 8(d)에 나타냈다. 우선, $\Delta\phi_M$ 은 Fig. 1(b)에서 시편 내(P_0Q_0QP 내 Area 2)에 존재하는 M 의 표면적분을 통해 계산될 수 있으며, 이는 아래와 같은 식으로 표현될 수 있다 [77].

$$\Delta\phi_M = -\frac{e}{\hbar} \iint_{\text{Area2}} M^y(x, y, z) dx dz. \quad (5)$$

M^y 는 M 의 y 성분을 나타내며, $\Delta\phi_M$ 을 결정하기 위해서는 x - y - z 의 3차원 좌표계에서의 M 값이 필요함을 의미한다. 이는 Fig. 8(a)의 삽입 이미지와 같이 전자회절패턴(electron diffraction pattern)과 같은 TEM 관찰을 통한 2:14:1상들의 c 축 좌표 [즉, 자화벡터(magnetization vector)]를 계산할 수 있다. 그 결과 [0.02671, 0.9957, -0.08836]로 거의 y 방향과 평행한 자화 방향을 가지며, 이는 $\Delta\phi_M$ 의 위상 이미지[Fig. 8(c)]에서 x 방향에 따른 위상차의 변화가 양의 기울기를 갖게 한다. $\Delta\phi_{H_s}$ 는 Fig. 1(b)에서 시편 외부 영역에 분포(P_0Q_0QP 내 Area 1과 Area 3)하는 H_s 의 면적분을 통해 결정할 수 있다[77].

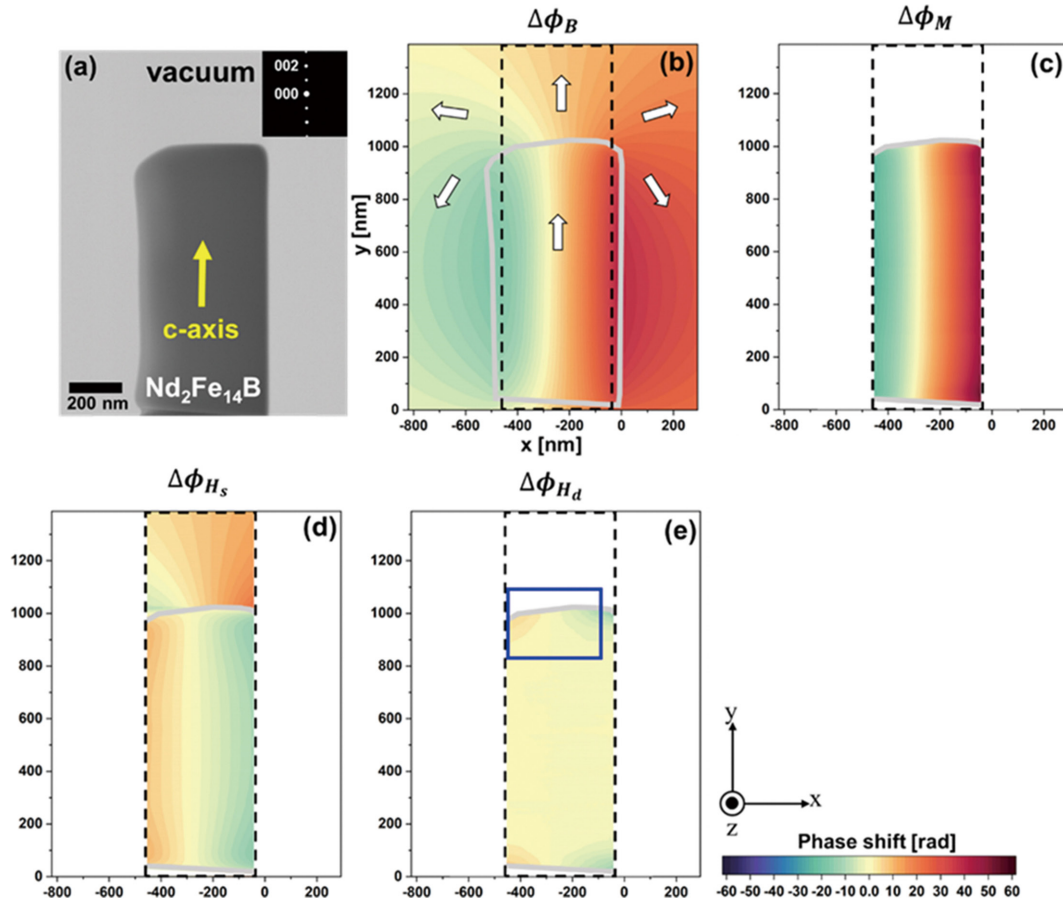


Fig. 8. (Color online) (a) TEM image of the thin-foiled specimen and electron diffraction pattern (inset). The arrow in (a) indicates the projection of the c -axis in the x - y plane. (b) Phase image of $\Delta\phi_B$ revealed by electron holography. The area enclosed by the blue lines in (b) indicates the area for the calculation of H_d . (c) Phase image of $\Delta\phi_M$ deduced from the magnetization vector determined by TEM observations. (d) Phase image of $\Delta\phi_{H_s}$, that was calculated by the simulation. (e) Phase image of $\Delta\phi_{H_d}$ determined for the thin-foil specimen. The phase images in (c)~(e) are presented in the area indicated by the long-dashed lines in (b). The figures are reconstructed with the permission from [77].

$$\Delta\phi_{H_s} = -\frac{e}{\hbar} \iint_{\text{outside}} H_s^y(x, y, z) dx dz. \quad (6)$$

H_s^y 는 H_s 의 y 성분을 나타내며, $\Delta\phi_{H_s}$ 을 결정하기 위해서는 3차원 좌표계에서 H_s 의 분포 정보가 필요하다. H_s 의 분포는 결정립/시편의 모양, 결정립의 결정방향, 시편의 두께와 같은 형태학적 및 결정학적 정보를 알게 되면 시뮬레이션(using ELF/MAGIC code, ELF Corp.)을 사용해 계산할 수 있으며, 이를 기반으로 $\Delta\phi_{H_s}$ 을 결정할 수 있다. 따라서 Fig. 8(d)와 같은 H_s 에 의한 위상 이미지를 얻을 수 있다. 마지막으로 $\Delta\phi_B$ [Fig. 8(b)]로부터 $\Delta\phi_M$ 와 $\Delta\phi_{H_s}$ [Fig. 8(c)와 8(d)]를 빼게 되면 Fig. 8(e)의 $\Delta\phi_{H_d}$ 를 나타내는 위상 이미지를 도출할 수 있다. 주목할 점은 시편 가장자리 부근에는 상당한 위상차의 변화가 관찰되지만 시편의 안쪽으로 갈수록 위상의 변화가 거의 없다는 것이다.

더 자세한 논의는 H_d 의 분포를 통해 하고자 한다. Fig.

8(e)의 $\Delta\phi_{H_d}$ 를 식(7)에 적용하면, 시편 내 H_d 의 y 성분(H_d^y)을 도출할 수 있으며[1], 이 결과를 Fig. 9(a)에 나타냈다; Fig. 9(a)는 Fig. 8(e) 내 파란 선으로 표시된 영역을 확대한 영역이다.

$$\mu_0 H_d^y = -\frac{\partial \Delta\phi_{H_d}}{\partial x} \cdot \frac{\hbar}{e} \cdot \frac{1}{t}. \quad (7)$$

위상 이미지로부터 얻어진 H_d 분포맵[Fig. 9(a)]의 신뢰성을 검증하기 위해 Fig. 9(b)에 나타난 미소자기 전산모사를 통한 시뮬레이션 결과와 같이 논의되었다. Fig. 9(a)와 9(b) 두 결과 모두 시료의 중간 지점으로 갈수록(#1 위치에서 #3 위치로의 이동) $\mu_0 H_d^y$ 가 감소되며, 감소율은 자극(magnetic pole)으로부터의 거리(r)의 거듭제곱 법칙을 따르는 것을 확인하였다[78]. 또한 Fig. 9(a)는 < 0.065 T의 오차 범위 내에서 시뮬레이션 결과[Fig. 9(b)]와 높은 일치성을 나타냈다. 이 연구에서 제안된 방법은 데이터 처리의 불확실성을 줄이기 위해 단결정의 직사각형 형태의 시료를 사용하였고, 소결 자석에 적용을 하기

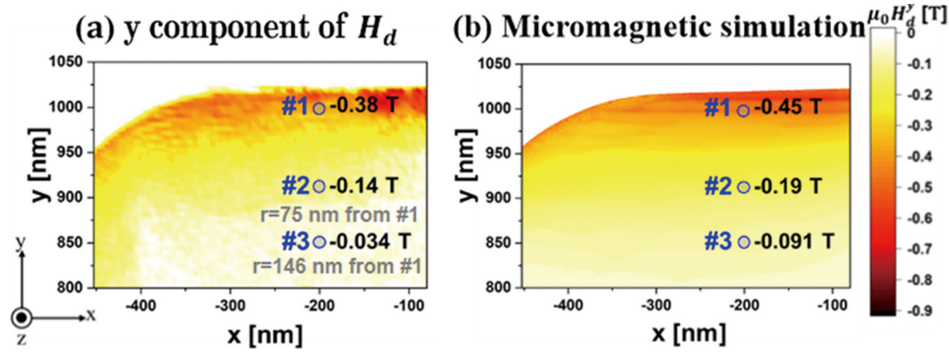


Fig. 9. (Color online) Evaluation of the y component of the demagnetization field ($\mu_0 H_d^y$) in the thin-foil $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ specimen. (a) Plot of $\mu_0 H_d^y$ within the thin-foil specimen enlarged from the area indicated by the rectangle in Fig. 8(b). (b) Result of micromagnetic simulation. The figures are reprinted with the permission from [77].

위해서는 다결정 시편을 적용한 추후 연구가 필요하다. 다결정의 경우 단결정 시편보다 복잡한 형태학적 구조와 결정립들의 각기 다른 자화 방향으로 인한 정확한 M 과 H_s 의 계산은 다소 어려울 수 있다. 그러나 전자선 홀로그래피를 활용하여 다결정 시편 내의 여러 결정입계의 자속 밀도를 측정하기 위해 TEM 관찰을 통한 모든 결정립들의 자화 벡터 분석과 시뮬레이션을 사용한 시편 외부의 3차원 자기장 분포 계산이 성공적으로 이루어졌으며[37-39], 이러한 결과들은 다결정 시편에 반자장 추출법을 적용할 때 M 및 H_s 의 정확한 분포 정보 획득이 가능할 것으로 예측한다. 다만, 본 논문에서 제안한 방법은 여러 위상 적분을 기반으로 하고 전자선 홀로그래피 관찰로부터 $\Delta\phi_M$ 와 $\Delta\phi_{H_s}$ 를 제거하는 등 여러 과정들이 포함되어 있어 단결정에 비해 위상 분석의 정확도가 감소할 수 있다. 이러한 위상 분석의 정확도는 노이즈 감소(noise reduction)와 같은 이미지 프로세싱(image processing) 기법이 유용한 대안책이 될 수 있다. 더욱이, Nd-Fe-B 자석과 같은 중원소를 포함한 재료에서는 홀로그래프의 가시도(visibility)가 감소하여 위상 분석 정확도가 더욱 감소한다. 이를 위해 전자선 홀로그래피 관찰 결과에 노이즈 감소를 적용함으로써 위상 이미지의 품질이 상당히 향상됨을 보고하고 있다[79]. 따라서 전자선 홀로그래피 관찰로부터 H_d 정보 추출 방법은 영구 자석 내 보자력과 관련된 H_d 분석에 유용한 기법이 될 수 있음을 시사한다.

V. 결 론

영구자석의 보자력에 대한 메커니즘을 이해하기 위해서는 결정학적 미세조직 분석뿐만 아니라 자구 관찰도 필수적으로 이루어져야 한다. 전자선 홀로그래피는 자속 밀도에 의한 입사 전자의 위상차를 결정함으로써, 나노미터 스케일에서 얇은 박막형태의 시편 내외부에 대한 자속 밀도의 분포와 세기

를 관찰하고 측정할 수 있다. 이는 Nd-Fe-B 자석, Sm-Co 자석, Alnico 자석과 같은 다양한 영구자석의 자구 구조와 보자력 결정 요인을 밝혀내는 데에 중요한 역할을 한다. 특히, 위상차 정보를 이용한 자속 밀도의 측정은 Nd-Fe-B 소결 자석 내 결정입계상의 강자성체를 직접적으로 관찰함으로써, 고보자력의 소결 자석 개발을 위한 미세조직 제어에 필수적인 데이터를 제공한다. 또한, 단결정 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 시편의 위상 이미지로부터 반자장 정보를 추출하는 방법을 다루었으며, 이를 통해 얻은 반자장 분포맵은 고전 전자기학과 미소자기 전산모사의 예측과 잘 일치하였다. 이러한 결과는 영구 자석 내 자화반전에 영향을 미치는 반자장 정보를 얻을 수 있는 유용한 방법임을 보여준다. 또한, 반자장 추출법의 정확도뿐만 아니라 자성재료의 위상 이미지의 품질을 향상시키기 위해 노이즈 감소 방법이 적용될 수 있으며, 이를 통해 향후 고성능 영구자석 개발을 위한 고분해능 자구 분석에 중요한 기여를 할 것으로 예상된다.

감사의 글

We sincerely thank all the collaborators, including Prof. Yasukazu Murakami (Professor, Kyushu University), Prof. Kazuhiro Hono (President, NIMS), Dr. Tadakatsu Ohkubo (Deputy director of Research Center for Magnetic and Spintronic Materials, NIMS), and Dr. Taisuke Sasaki (Group leader of Research Center for Magnetic and Spintronic Materials, NIMS). This work was partly supported by a grant of the Nano & Material Technology Development Program through the National Research Foundation of Korea (NRF) funded by Ministry of Science and ICT (RS-2023-00282096) and Korea Evaluation Institute of Industrial Technology (KEIT) grant funded by the Korea government (MOTIE) (No. 20010817).

References

- [1] E. Völkl, L. F. Allard, and D. C. Joy, *Introduction to Electron Holography*, Kluwer Academic/Plenum Publishers, New York (1999).
- [2] A. Tonomura, *Electron Holography* (2nd edn.), Springer, Heidelberg (1999).
- [3] D. Garbor, *Proc. R. Soc. Ser. A (London)* **197**, 454 (1949).
- [4] G. Möllenstedt and H. Düker, *Z. Physik* **145**, 377 (1956).
- [5] A. Tonomura, N. Osakabe, T. Matsuda, T. Kawasaki, J. Endo, S. Yano, and H. Yamada, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 792 (1986).
- [6] J. E. Bonevich, K. Harada, T. Matsuda, H. Kasai, T. Yoshida, G. Pozzi, and A. Tonomura, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 2952 (1993).
- [7] A. Tonomura, *Adv. Phys.* **41**, 59 (1992).
- [8] T. Hirayama, Q. Ru, T. Tanji, and A. Tonomura, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 418 (1993).
- [9] A. Tonomura, T. Matsuda, J. Endo, H. Todokoro, and T. Komoda, *Microscopy* **28**, 1 (1979).
- [10] W. J. De Ruijter and J. K. Weiss, *Ultramicroscopy* **50**, 269 (1993).
- [11] K. Harada and A. Tonomura, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 3229 (2004).
- [12] T. Tanigaki, Y. Inada, S. Aizawa, T. Suzuki, H. S. Park, T. Matsuda, A. Taniyama, D. Shindo, and A. Tonomura, *Appl. Phys. Lett.* **101**, 043101 (2012).
- [13] F. Röder, F. Houdellier, T. Denneulin, E. Snoeck, and M. Hÿtch, *Ultramicroscopy* **161**, 23 (2016).
- [14] W. J. De Ruijter, *Micron* **26**, 247 (1995).
- [15] S. L. Chang, C. Dwyer, J. Barthel, C. B. Boothroyd, and R. E. Dunin-Borkowski, *Ultramicroscopy* **161**, 90 (2016).
- [16] M. R. McCartney and Y. Zhu, *Appl. Phys. Lett.* **72**, 1380 (1998).
- [17] M. R. McCartney and Y. Zhu, *J. Appl. Phys.* **83**, 6414 (1998).
- [18] Y. Zhu and M. R. McCartney, *J. Appl. Phys.* **84**, 3267 (1998).
- [19] D. Shindo, Y. G. Park, and Y. Yoshizawa, *J. Magn. Magn. Mater.* **238**, 101 (2002).
- [20] Z. Akase, K. Kimura, T. Saito, K. Niitsu, T. Tanigaki, Y. Iwasaki, P. Sharma, A. Makino, and D. Shindo, *J. Magn. Magn. Mater.* **541**, 168519 (2022).
- [21] M. J. Hÿtch, R. E. Dunin-Borkowski, M. R. Scheinfein, J. Moulin, C. Duhamel, F. Mazaleyrat, and Y. Champion, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 257207 (2003).
- [22] K. Yamamoto, S. A. Majetich, M. R. McCartney, M. Sachan, S. Yamamuro, and T. Hirayama, *Appl. Phys. Lett.* **93**, 082502 (2008).
- [23] E. Snoeck, C. Gatel, L. M. Lacroix, T. Blon, S. Lachaize, J. Carrey, M. Respaud, and B. Chaudret, *Nano. Lett.* **8**, 4293 (2008).
- [24] Y. Takeno, Y. Murakami, T. Sato, T. Tanigaki, H. S. Park, D. Shindo, R. M. Ferguson, and K. M. Krishnan, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 183102 (2014).
- [25] M. Ammar, M. LoBue, E. Snoeck, M. Hÿtch, Y. Champion, R. Barru, and F. Mazaleyrat, *J. Magn. Magn. Mater.* **320**, e716 (2008).
- [26] S. L. Tripp, R. E. Dunin-Borkowski, and A. Wei, *Angew. Chem. Int. Ed.* **42**, 5591 (2003).
- [27] S. Yamamuro, K. Yamamoto, D. L. Peng, T. Hirayama, and K. Sumiyama, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 242510 (2007).
- [28] A. Tonomura, T. Matsuda, J. Endo, T. Arie, and K. Mihama, *Phys. Rev. Lett.* **44**, 1430 (1980).
- [29] H. S. Park, X. Yu, S. Aizawa, T. Tanigaki, T. Akashi, Y. Takahashi, T. Matsuda, N. Kanazawa, Y. Onose, D. Shindo, A. Tonomura, and Y. Tokura, *Nature Nanotech.* **9**, 337 (2014).
- [30] J. C. Loudon, A. C. Twitchett-Harrison, D. Cortes-Ortúo, M. T. Birch, L. A. Turnbull, A. Štefancić, F. Y. Ogrin, E. O. Burgos-Parra, N. Bukin, A. Laurenson, H. Popescu, M. Beg, O. Hovorka, H. Fangohr, P. A. Midgley, G. Balakrishnan, and P. D. Hatton, *Adv. Mater.* **31**, 1806598 (2019).
- [31] F. Zheng, H. Li, S. Wang, D. Song, C. Jin, W. Wei, A. Kovacs, J. Zang, M. Tian, Y. Zhang, H. Du, and R. E. Dunin-Borkowski, *Phys. Rev. Lett.* **119**, 197205 (2017).
- [32] T. Denneulin, J. Caron, M. Hoffmann, M. Lin, H. K. Tan, A. Kovacs, S. Blügel, and R. E. Dunin-Borkowski, *Ultramicroscopy* **220**, 113155 (2021).
- [33] D. Song, L. Wang, W. Wang, F. Zheng, J. Tang, S. Wang, C. Zhu, J. Caron, A. Kovacs, Z. Liu, D. Mandrus, M. Tian, H. Du, and R. E. Dunin-Borkowski, *Phys. Rev. B* **102**, 064432 (2020).
- [34] F. Zheng, F. N. Rybakov, A. B. Borisov, D. Song, S. Wang, Z.-A. Li, H. Du, N. S. Kiselev, J. Caron, A. Kovács, M. Tian, Y. Zhang, S. Blügel, and R. E. Dunin-Borkowski, *Nature Nanotech.* **13**, 451 (2018).
- [35] J. D. Livingston, *J. Appl. Phys.* **52**, 2544 (1981).
- [36] A. Tonomura, T. Matsuda, J. Endo, T. Arie, and K. Mihama, *Phys. Rev. B* **34**, 3397 (1986).
- [37] Y. Murakami, T. Tanigaki, T. T. Sasaki, Y. Takeno, H. S. Park, T. Matsuda, T. Ohkubo, K. Hono, and D. Shindo, *Acta Mater.* **71**, 370 (2014).
- [38] K. Niitsu, A. Sato, T. T. Sasaki, R. Sawada, Y. Cho, Y. Takada, T. Sato, Y. Kaneko, A. Kato, T. Ohkubo, D. Shindo, K. Hono, and Y. Murakami, *J. Alloys Compounds* **752**, 220 (2018).
- [39] Y. Cho, T. Sasaki, K. Harada, A. Sato, T. Tamaoka, D. Shindo, T. Ohkubo, K. Hono, and Y. Murakami, *Scripta Materialia* **178**, 533 (2020).
- [40] P. B. Hirsch, A. Howie, R. B. Nicholson, D. W. Pashley, and M. J. Whelan, *Electron Microscopy of Thin Crystals*, Butterworths, London, UK (1965).
- [41] P. J. Grundy and R. S. Tebble, *Adv. Phys.* **17**, 153 (1968).
- [42] Y. G. Park and D. Shindo, *J. Magn. Magn. Mater.* **238**, 68 (2002).
- [43] D. Shindo, Y. G. Park, Y. Gao, and H. S. Park, *J. Appl. Phys.* **95**, 6521 (2004).
- [44] F. Okabe, H. S. Park, D. Shindo, Y. G. Park, K. Ohashi, and Y. Tawara, *Mater. Trans.* **47**, 218 (2006).
- [45] J. J. Kim, H. S. Park, D. Shindo, S. Hirose, and H. Morimoto, *Mater. Trans.* **47**, 907 (2006).
- [46] B. D. Cullity, *Introduction to Magnetic Materials*, Addison-Wesley (1972) pp. 565~575.
- [47] E. P. Wohlfarth, *Ferromagnetic Materials*, Vol. 3, North-Holland Publishing Company (1982) pp. 107~188.
- [48] M. Sagawa, S. Fujimura, N. Togawa, H. Yamamoto, and Y.

- Matsuura, J. Appl. Phys. **55**, 2083. (1984).
- [49] K. Hono and H. Sepehri-Amin, Scripta Mater. **67**, 530. (2012).
- [50] J. M. D. Coey, Scripta Mater. **67**, 524. (2012).
- [51] O. Gutfleisch, M. A. Willard, E. Bruck, C. H. Chen, S. G. Sankar, and J. P. Liu, Adv. Mater. **23**, 821 (2011).
- [52] Y. Matsuura, J. Magn. Magn. Mater. **303**, 344 (2006).
- [53] Y. Sun, G. B. Han, M. Liu, B. P. Han, and R. W. Gao, Mater. Lett. **61**, 4294 (2007).
- [54] O. Gutfleisch, J. Phys. D: Appl. Phys. **33**, R157 (2000).
- [55] W. F. Li, T. Ohkubo, and K. Hono, Acta Mater. **57**, 1337 (2009).
- [56] T. Schrefl, H. F. Schmidts, J. Fidler, and H. Kronmüller, J. Magn. Magn. Mater. **124**, 251 (1993).
- [57] F. Vial, F. Joly, E. Nevalainen, M. Sagawa, K. Hiraga, and K. T. Park, J. Magn. Magn. Mater. **242**, 1329 (2002).
- [58] R. K. Mishra, J. K. Chen, and G. Thomas, J. Appl. Phys. **59**, 2244 (1986).
- [59] H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo, T. Shima, and K. Hono, Acta Mater. **60**, 819 (2012).
- [60] T. Nakamura, A. Yasui, Y. Kotani, T. Fukagawa, T. Nishiuchi, H. Iwai, T. Akiya, T. Ohkubo, Y. Gohda, K. Hono, and S. Hirose, Appl. Phys. Lett. **105**, 202404 (2014).
- [61] T. Kohashi, K. Motai, T. Nishiuchi, and S. Hirose, Appl. Phys. Lett. **104**, 232408 (2014).
- [62] T. T. Sasaki, T. Ohkubo, Y. Takada, T. Sato, A. Kato, Y. Kaneko, and K. Hono, Scripta Mater. **113**, 218 (2016).
- [63] L. Zhao and J. M. Grenèche, J. Phys. D: Appl. Phys. **53**, 095002 (2020).
- [64] Y. Ainai, S. Kou, Y. Tatetsu, and Y. Gohda, Jpn. J. Appl. Phys. **59**, 060904 (2020).
- [65] W. Rave, K. Ramstöck, and A. Hubert, J. Magn. Magn. Mater. **183**, 329 (1998).
- [66] T. Schrefl, J. Fidler, and H. Kronmüller, J. Magn. Magn. Mater. **138**, 15 (1994).
- [67] J. Thielsch, D. Suess, L. Schultz, and O. Gutfleisch, J. Appl. Phys. **114**, 223909 (2013).
- [68] J. Li, Lihua Liu, H. Sepehri-Amin, Xin Tang, T. Ohkubo, N. Sakuma, T. Shoji, A. Kato, T. Schrefl, and K. Hono, Acta Mater. **161**, 171 (2018).
- [69] T. L. Gilbert, Phys. Rev. **100**, 1243 (1955).
- [70] L. D. Landau and E. M. Lifshitz, Phys. Z. Sowjet. **8**, 153 (1935).
- [71] M. Grönefeld and H. Kronmüller, J. Magn. Magn. Mater. **80**, 223 (1989).
- [72] S. Bance, B. Seebacher, T. Schrefl, L. Exl, M. Winklhofer, G. Hrkac, G. Zimanyi, T. Shoji, M. Yano, N. Sakuma, M. Ito, A. Kato, and A. Manabe, J. Appl. Phys. **116**, 233903 (2014).
- [73] J. Fidler and T. Schrefl, J. Appl. Phys. **79**, 5029 (1996).
- [74] J. Fidler and T. Schrefl, J. Phys. D: Appl. Phys. **33**, R135 (2000).
- [75] H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo, M. Gruber, T. Schrefl, and K. Hono, Scr. Mater. **89**, 29 (2014).
- [76] W. Li, Q. Zhou, L. Z. Zhao, Q. X. Wang, X. C. Zhong, and Z. W. Liu, J. Magn. Magn. Mater. **451**, 704 (2018).
- [77] S. Lee, A. Sato, T. Tamaoka, K. Yubuta, M. Auchi, T. Sasaki, T. Ohkubo, K. Hono, and Y. Murakami, Microscopy **72**, 343 (2023).
- [78] K. M. Krishnan, Fundamentals and Applications of Magnetic Materials, Oxford Univ. Press, New York (2016).
- [79] S. Lee, Y. Midoh, Y. Tomita, T. Tamaoka, M. Auchi, T. Sasaki, and Y. Murakami, Applied Microscopy **54**, 4 (2024).