

宝野 和博

物質・材料研究機構 磁性材料ユニット
フェロー

ネオジム磁石の高保磁力化

§ 1. 研究実施体制

(1)「宝野」グループ

- ① 研究代表者:宝野 和博(国研)物質・材料研究機構・磁性材料ユニット、フェロー)
- ② 研究項目:微細構造解析及びモデル実験による保磁力発現機構の解明
 - ・焼結磁石界面の原子構造と界面組成
 - ・微細構造と保磁力
 - ・高保磁力 Nd リッチ Ga 添加 Nd-Fe-B 系磁石の微細構造解析
 - ・熱間加工磁石の保磁力向上に向けた共晶合金拡散法の最適化
 - ・マイクロマグネティクス計算による磁化反転シミュレーション

(2)「佐久間」グループ

- ① 主たる共同研究者:佐久間 昭正(東北大学大学院工学研究科・応用物理学専攻、教授)
- ② 研究項目:電子状態の第一原理計算による界面磁性の研究
 - ・第一原理による粒界相の電子状態計算

(3)「嶋」グループ

- ① 主たる共同研究者:嶋 敏之(東北学院大学・工学部・教授、工学総合研究所・所長)
- ② 研究項目:薄膜による保磁力メカニズム解明とナノコンポジットのモデル実験

(4)「村上」グループ

- ① 主たる共同研究者:村上 恭和(九州大学・大学院工学研究院・教授)
- ② 研究項目:粒界相に対する磁束評価技術の構築と焼結磁石を用いた実測
 - ・電子線ホログラフィと高分解能電顕法による格子歪解析

・電子線ホログラフィによる Ga ドープ Nd-Fe-B 磁石の粒界相磁束密度解析

(5)「Schrefl」グループ

- ① 主たる共同研究者: Thomas Schrefl (Danube University Krems、教授)
- ② 研究項目: Nd-Fe-B 磁石のマイクロマグネティックシミュレーションの大規模化
・有限要素マイクロマグネティクス計算手法の高度化

§ 2. 研究実施の概要

1. ネオジム磁石の微細構造解析と保磁力向上

高い保磁力を示す Nd リッチ Ga 添加 Nd-Fe-B 系磁石中に存在する副相、および 2 粒子粒界に形成される Nd リッチ粒界相の微細組織を SEM、TEM を用いて観察し、保磁力向上の要因について検討を行った。その結果、最適化熱処理を施した Nd リッチ Ga 添加焼結磁石では 3 種類の非磁性粒界相が $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 粒を完全に覆い粒間交換結合が分断されることが、1.8 T もの保磁力が発現メカニズムであることが特定された。

昨年度までに、微細結晶粒を有する熱間加工磁石に、膨張拘束のもと Nd-Cu 等の低温共晶合金を拡散させる手法によって、磁化の減少を最小限に抑えて Dy4%含有焼結磁石と同等の保磁力、高温特性を持つ Dy フリーネオジム磁石の開発に成功していたが、様々な Nd-TM 共晶合金を拡散源として粒界相の改質を行ったところ、Nd-Al 合金で 2.5 T に達する保磁力が得られることが分かった。これらの熱間加工磁石では $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ ハード相の粒子が扁平になるために反磁界の影響を受けて、向上できる保磁力に限界があると考えられる。そこで、等軸粒形状を有する HDDR 磁石粉に注目し、極めて高い配向性を持つ HDDR 磁粉のプロセス条件を確立した。また、その微細構造を SEM、TEM により詳細に解析し、保磁力と微細構造の関係について検討を行った。

2. モデル実験

高い保磁力を得るための理想構造を実験的に確立するための薄膜モデル実験として、単磁区粒子径焼結磁石を模した多結晶配向膜を超高真空スパッタ装置により作製し、それらの粒間結合を希土類元素および非磁性元素等の添加元素を拡散させることにより、粒間結合による保磁力変化の実験を行った。また、粒界相を構成する Nd-Fe 系合金の磁性を明らかにするとともに、永久磁石の動作温度を向上させるために必要不可欠な Co 添加による $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 薄膜の磁化温度特性を評価し、高性能永久磁石の原理検証を行った。

3. マイクロマグネティック計算

有限要素法を用いたマイクロマグネティクス計算のプログラム開発を行い、これまで使用してきた LLG 方程式の時間展開を解く方法に加えて、与えられた外部磁場の元、エネルギーの極小値を計算するエネルギー最小化法を取り入れ計算手法の高度化を行い、大幅な高速化を達成した。また、実際の磁石の磁化反転過程を再現するために、温度上昇による熱活性化過程を計算に取り入れ、核生成過程の検討を行った。

一方で、現実的な組織を計算するためのモデルの構築を推進し、同時に、マルチ CPU あるいは GPU を使った大規模並列計算を実施し、実験的に決定された結晶配向、結晶粒径・形状、粒界組成などをマイクロマグネティクス計算のパラメータとして、磁化反転挙動の計算機実験をおこない、微細構造の保磁力に及ぼす影響について検討し、実験的にどのような微細組織を実現するのが良いかという方針を得るための検討を行った。

4. 電子状態の第一原理計算による界面磁性の研究

今年度は、結晶粒界表面の Nd イオンの結晶場パラメータ A_2^0 (\propto 磁気異方性定数 K_u) が粒界層の原子 (O や Cu) との相対位置によってどのような影響を受けるかについて調べた (Y. Toga, T. Suzuki, and A. Sakuma, *J. Appl. Phys.* **117**, 223905 (2015))。その結果、表面の面方位に関わらず Nd イオンへの付着原子が Nd 原子からみて c 軸方向にある場合は $A_2^0 > 0$ 、そこから垂直方向に傾くにつれて A_2^0 は負側に移行していくことが結論された。

5. 粒界相に対する磁束評価技術の構築と焼結磁石を用いた実測

走査透過電子顕微鏡像 (STEM 像) に生じるモアレ縞を利用して、焼結磁石における格子歪を実測した。解析の結果、 $Nd_2Fe_{14}B$ 相 (主相) が最も大きく歪む領域は金属 Nd 相との界面付近であり、歪量は約 1.2 % と決定された。 Nd_2O_3 や NdO_x など酸化物との界面における歪は 0.5% 程度であり、主相同士が接する二粒子粒界では測定精度 (0.2%) の範囲内で有意な歪が観測されなかった。佐久間グループの理論計算を参照すると、今回観測された程度の歪が誘発する結晶磁気異方性の変化は僅かであり、格子歪が保磁力に与える影響は無視できるほど小さいと言える。一方、宝野グループによる Ga ドープ Nd-Fe-B 磁石の高保磁力に関わる報告を踏まえて、電子線ホログラフィによる粒界相の磁束解析に着手した。20 nm 幅の粒界相における電子位相変化を測定・解析したところ、これまで評価した商用磁石に比べて磁束密度が著しく弱いことを確認し、宝野グループの研究結果を支持するデータを得ている。現在、計算機シミュレーションを併用した数値解析を進めており、次年度の研究では粒界相の磁束密度を正確に決定する。