

技術テーマ（平成23年度設定）

革新的次世代高性能磁石創製 の指針構築



国立研究開発法人

科学技術振興機構

Japan Science and Technology Agency

目次

■ 事業概要	1
• プログラムオフィサー	
• 技術テーマの概要	
• 技術テーマの実施期間	
• 産業ニーズ対応タイプの概要	
• アドバイザー	
• 研究課題	
■ 研究課題の概要	3
• L20FeCo及びL10FePt-bccFeCoに着目した革新的磁石創成に関する基礎研究（石尾 俊二） ..	3
• 磁気構造可視化に基づく保磁力モデルの構築（小野 寛太）	5
• ナノスケール構造制御による高性能磁石創製への指針獲得（加藤 宏朗）	7
• 3次元磁区構造観察装置を用いた、永久磁石の微構造と磁区構造の 相互作用の研究（小林 久理真）	9
• 貴金属フリーL10型規則合金磁石創製の指針構築（高梨 弘毅）	11
• 遷移金属元素の価数に着目した鉄系酸化物磁石の実用材周辺の基礎科学と その高性能化に向けた物質設計指針の提案（中村 裕之）	13
• 軽元素添加による高磁化磁性材料の創製ならびに革新的永久磁石材料の開発（嶋 敏之）	15
• 電子論に基づいたフェライト磁石の高磁気異方性化指針の確立（柳原 英人）	17
• 磁石破断面の3次元磁場イメージングが可能な高分解能・交番磁気力顕微鏡の 開発による保磁力機構の解明（齊藤 準）	19
• 永久磁石の微細組織とその局所磁気特性の解析による高保磁力化の指針構築（中村 哲也） ..	21
• ネオジム磁石の超微結晶化による高温磁石特性の飛躍的改善（宝野 和博）	23

プログラムオフィサー PO



福永 博俊

長崎大学 理事

専門分野 電子材料、磁性体工学

技術テーマの概要

Nd-Fe-B磁石の発表から35年が経過しました。この間、Nd-Fe-B磁石の特性を超える新永久磁石の探索や製造が試みられてきましたが、これを超える新永久磁石の開発には至っておらず、次世代永久磁石の開発が強く望まれています。また、磁石性能に加えて資源的な観点からも既存永久磁石の飛躍的特性改善や新永久磁石の開発が必要とされています。

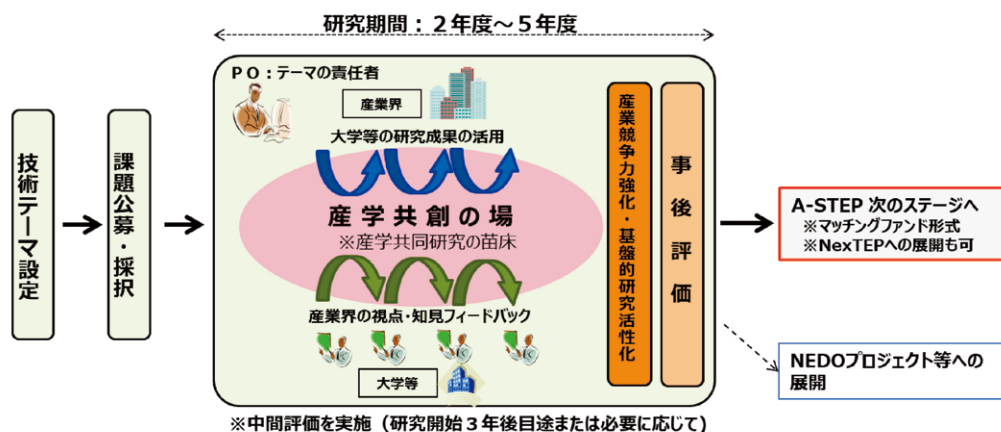
本技術テーマでは、革新的次世代永久磁石の創製のための基盤技術とそれに繋がる指針を確立するために、大学・公的研究機関等での基盤研究を推進し、我が国の産業競争力の維持・強化と社会基盤の強化に資する成果を得ることを目指します。

技術テーマの実施期間

平成23年度～令和2年度

産学共創基礎基盤研究プログラムの概要

産業競争力強化、大学等の基盤的研究の活性化を目指し、産業界から提案された、産業界で共通する技術的課題（技術テーマ）に基づき、プログラムオフィサー（PO）によるマネジメントのもと、基盤的研究開発を実施するとともに、産業界と研究者との積極的対話を促しつつ技術テーマの解決に取り組みます。



アドバイザー

※令和2年11月現在

入山 恭彦	大同特殊鋼株式会社 技術開発研究所 理事
大橋 健	信越化学工業株式会社 研究開発部 主席研究員
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
眞保 信之	TDK株式会社 技術・知財本部 技術企画グループ 基盤技術支援部 シミュレーション室 担当課長
杉本 諭	東北大学 大学院工学研究科 知能デバイス材料学専攻 教授 (レアメタル・グリーンイノベーション研究開発センター センター長)
徳永 雅亮	電気学会 次世代永久磁石の研究開発動向と応用に関する調査専門委員会 副委員長
西内 武司	日立金属株式会社 機能部材事業本部 機能部材研究所 磁性材料研究部 主管研究員
森迫 昭光	信州大学 名誉教授

研究課題

採択課題総数	:	研究課題 13件
研究費	:	1課題あたり年間最大3,000万円程度（間接経費含む）
研究開発期間	:	2～5年度

※この冊子内の各研究課題に記載されている所属・役職は当時のものです。

研究代表者	石尾 俊二（秋田大学 大学院工学資源学研究科 教授）
研究開発担当者	長谷川 崇（秋田大学 大学院工学資源学研究科 助教）
課 題 名	L20FeCo及びL10FePt-bccFeCoに着目した革新的磁石創成に関する基礎研究
研 究 概 要	高結晶磁気異方性と高飽和磁化を有するL20FeCo系金属合金並びにL10FePt-FeCo系金属合金に着目して、希土類元素フリーで高エネルギー積を有する革新的な永久磁石材料を、産学共創の場を活用して開発します。第1原理計算による物性予測と薄膜合成／微細加工を用いた実験研究によりL20FeCo系金属合金の永久磁石特性を明らかにし、また薄膜合成／微細加工およびウェットプロセスによりL10FePt-bccFeCo系金属合金ナノコンポジット磁石を開発します。

研究目標・成果

1. L10FePt-bccFeCoに着目した革新的磁石創成に関する研究

エピタキシャルFePt/FeCo薄膜の一軸磁気異方性

FePt/FeCo薄膜のパターン化と永久磁石特性の評価

L10FePt-bccFeCoに着目した革新的磁石創成の可能性を検討するために、MgO単結晶基板上に[001]配向させたL10FePt薄膜を作製し、その上にFeCo薄膜をスパッタ成膜した試料の磁気特性を調べた。FeCo膜厚依存性を調べたところ、下（左図）に示すように、L10FePtの一軸磁気異方性の大きさは、FeCoの膜厚によらず $6 \sim 9 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ 程度であり、一方FeCoは2 nm以下で正方晶歪に起因する一軸磁気異方性が発現することがわかった。

次に保磁力等の永久磁石特性を評価するために、微細加工でL10FePt/FeCo薄膜のパターン化を行った。直径300 nmのドットパターンを電子顕微鏡写真を下（右図）に示す。FeCo膜厚が0～3 nmの試料において、保磁力は10 kOe程度の大きな値を示した。ドット群が100 %の充填率をもつと仮定した場合のBH曲線から見積もられる最大エネルギー積は、飽和磁化の大きいL10FePt/FeCo(3 nm)で最大値が得られ、その値は約400 kJ/m³であった。この結果は、L10FePtとFeCoの積層比の最適化によって、ネオジム磁石を超える可能性を示している。 参考論文: B. Wang et al., *J. Appl. Phys.* **117**, 17C709 (2015).

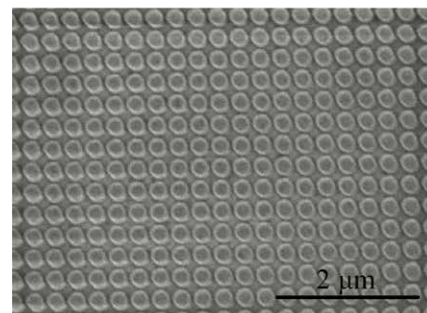
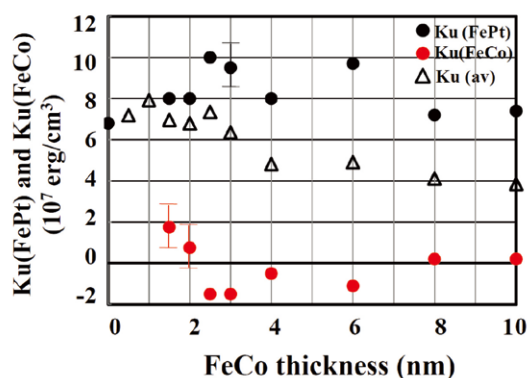


図. L10FePt/FeCo中のL10FePtとFeCoに誘起された一軸磁気異方性Kuの膜厚依存性(左図)と微細加工で作製したL10FePt/FeCo(3 nm)のドットパターンの電子顕微鏡SEM写真(右図).

2. L20FeCoに着目した革新的磁石創成に関する研究

エピタキシャルRh/FeCo薄膜の一軸磁気異方性

L20FeCoに着目した革新的磁石創成の可能性を検討するために、コヒーレントポテンシャル近似による第一原理計算による物性予測と薄膜合成／微細加工を用いた実験研究を行った。第一原理計算では、L20FeCoの磁気特性を計算し、軸比 $c/a = 1.2$ 付近の正方晶歪を有するときに高い磁気異方性が発生すること、規則度が磁気異方性に大きく影響すること等を明らかにした。これらの計算により、L20FeCoの設計指針が与えられ、そのポテンシャルが明らかになった。

実験研究では、MgO単結晶基板上に[001]配向させたRh薄膜を作製し、その上にFeCo薄膜をスパッタ成膜した試料の磁気特性を調べた。FeCo膜厚依存性を調べたところ、下（左図）に示すように、膜厚が2 nm程度のときに軸比 $c/a = 1.2$ 付近が得られた。また軸比 c/a と磁気異方性 K_{u1} との相関を調べたところ、下（右図）に示すように、定性的に第一原理計算の予測と一致する結果が得られた。この結果は、L20FeCoの設計指針とそのポテンシャルを示すものであり、希土類元素を使用しない革新的磁石材料の実現の可能性を示している。

参考論文: H. Oomiya et al., *J. Phys. D: Appl. Phys.* **48**, 475003 (2015).

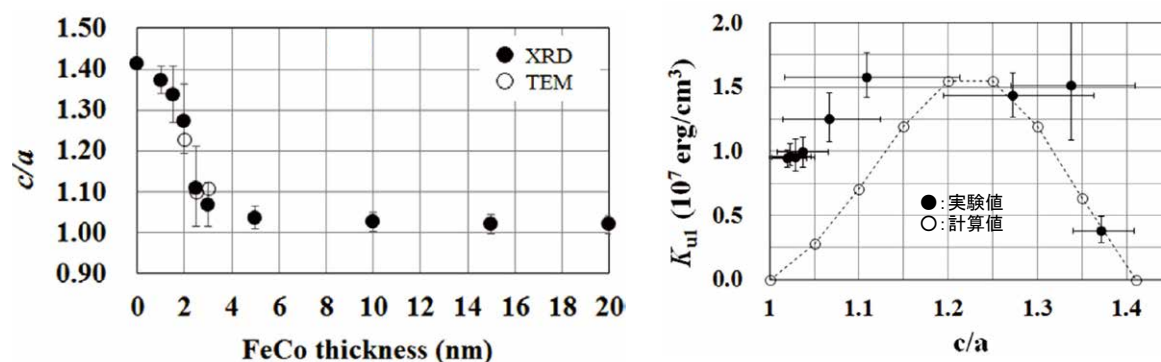


図. Rh/FeCo中のFeCoに誘起された正方晶歪に起因する軸比 c/a の膜厚依存性(左図)と一軸磁気異方性 K_{u1} の軸比 c/a との相関(右図).

研究課題の終了後の展開

L20FeCoに着目した革新的磁石創成に関しては、研究開発担当者の長谷川崇（現 秋田大学 大学院理工学研究科 講師）が発展的に継続している。

参考論文: T. Hasegawa et al., *Scientific Reports* **9**, 5248 (2019).

想定する分野・用途

- 希土類フリーの高性能永久磁石

最終目標

- 理論計算と実験研究による添加元素・組成・組織の最適化と、バルク磁石の実現

産業界への要望

- バルク磁石の実現後、モーター等への搭載を目指した共同研究による積極的な支援

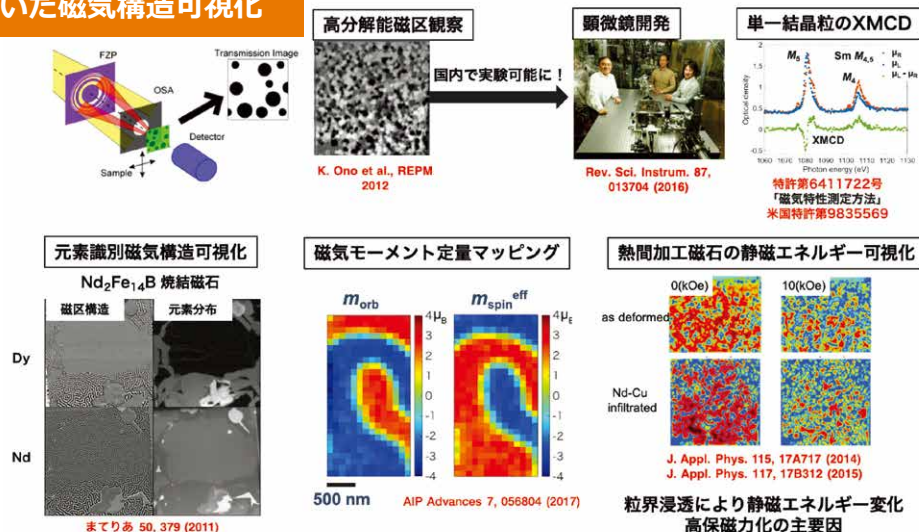
お問合せ 秋田県秋田市手形学園町1番1号 秋田大学 E-mail : takashi@gipc.akita-u.ac.jp

研究代表者	小野 寛太（高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 准教授）
研究開発担当者	三俣 千春（物質・材料研究機構 特別研究員） 喜多 英治（筑波大学 教授） 柳原 英人（筑波大学 教授）
課 題 名	磁気構造可視化に基づく保磁力モデルの構築
研究概要	ハイブリッド自動車などの高性能駆動モーターには高保磁力の磁石が不可欠です。一般に広く用いられている磁石の保磁力は、理論限界値の15%程度であり、これを50%程度へ飛躍的に特性改善することや新規高保磁力磁石の創製が産業界から求められています。本研究では、放射光・中性子を用いた磁気構造可視化と、マイクロ磁気学と非平衡統計物理学の手法の融合により、保磁力メカニズムの解明を目指します。さらに、保磁力モデルの構築を行い、産学共創の場を通じて、次世代の高保磁力磁石の設計指針を産業界に提案します。

研究目標・成果

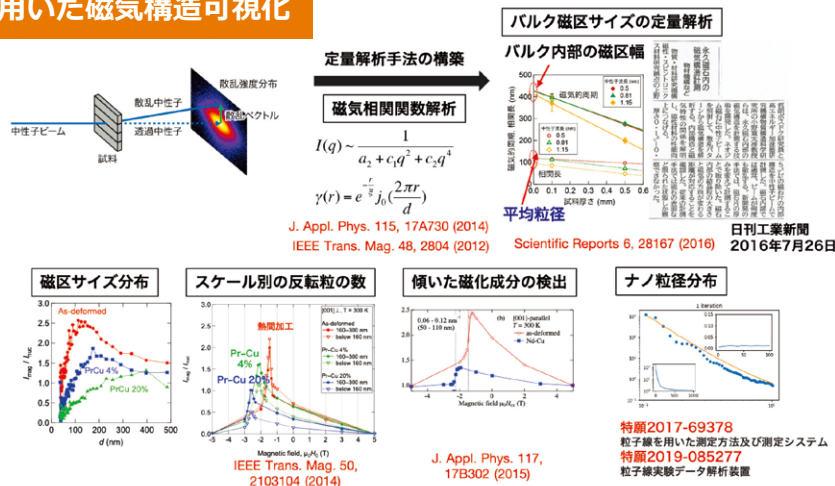
磁気構造可視化

X線顕微鏡を用いた磁気構造可視化



- ・ X線顕微鏡による磁気構造可視化手法を開発し、国内でも実施可能にした

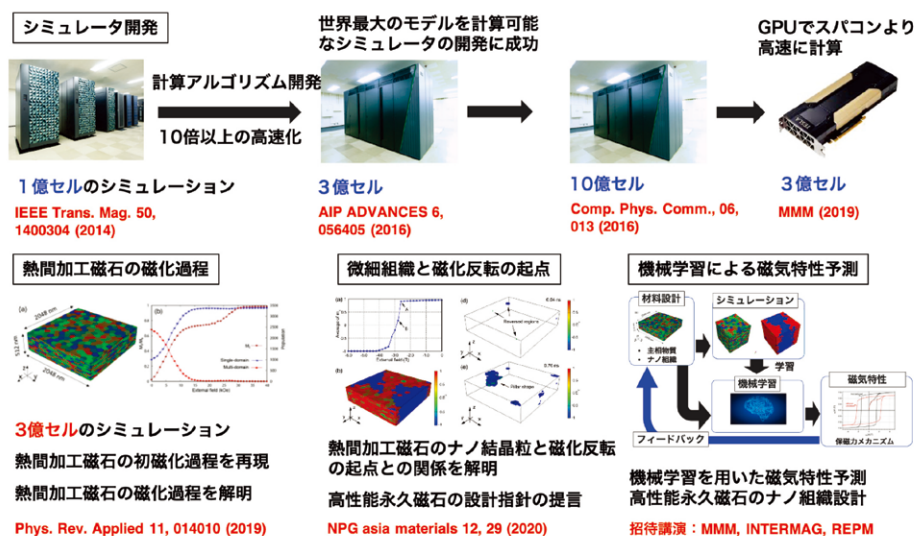
中性子小角散乱を用いた磁気構造可視化



- ・ 中性子小角散乱を用いたバルク磁石の磁気構造可視化手法を開発し定量解析を行った

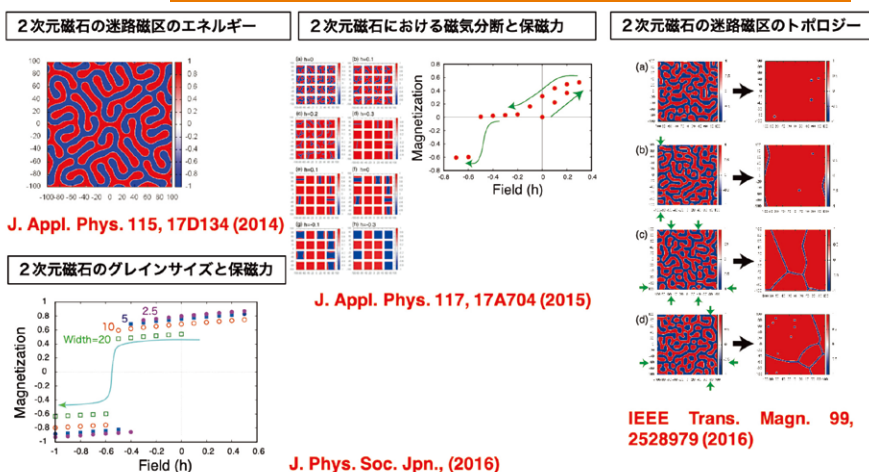
シミュレーションによる保磁力モデル構築

超大規模マイクロ磁気シミュレータの開発と磁気構造可視化



・現実サイズの磁石モデルを正確に計算できるマイクロ磁気シミュレータを開発した

統計物理モデルに基づく磁石の磁気構造可視化



・ギンツブルク・ランダウ理論に基づく磁石の磁気構造可視化を行った

想定する分野・用途

- 希少元素を代替した高性能磁石および低コスト高性能ギャップ磁石

最終目標

- 磁石材料における磁化反転機構の解明と高保磁力磁石の設計指針の確立

産業界への要望

- 磁気構造可視化技術へのニーズの提供

お問合せ つくば市大穂 1-1 E-mail : kanta.ono@kek.jp

研究代表者	加藤 宏朗（山形大学 大学院理工学研究科 教授）
研究開発担当者	安藤 康夫（東北大学 大学院工学研究科 教授） 板倉 賢（九州大学 大学院総合理工学研究院 准教授） 小池 邦博（山形大学 大学院理工学研究科 准教授）
課題名	ナノスケール構造制御による高性能磁石創製への指針獲得
研究概要	現在最強のネオジム焼結磁石は、産業用や医療機器などに広く用いられていますが、更なる高性能化や高耐熱性が求められています。本研究では、薄膜プロセスを用いたナノスケールの構造制御によって、ネオジム磁石を上回り、レアメタルである重希土類元素（Dy, Tb）の使用量を大幅に削減した最強の希土類磁石を創製するための指針を獲得します。更に、産学の対話のもと、高性能磁石の厚膜化やバルク化に取り組みます。

研究目標・成果

ナノスケールの構造制御によって、現在最強のネオジム焼結磁石の最大エネルギー積を上回り、しかも資源的リスクのあるレアメタルであるDyやTbの使用量を大幅に削減した最強の希土類磁石を創製するための指針を獲得し、実験室レベルでの実証に挑戦する。そのための具体的な研究項目と目標を以下のように設定した。

研究項目(1) ナノ構造制御による高品位モデル磁石の創製と高性能化の指針獲得

- (a) ナノ構造制御による磁化増強
- (b) ナノ構造制御による保磁力増強
- (c) 究極の高エネルギー積ナノコンポジット薄膜モデル磁石創製への挑戦
- (d) 異方性ナノコンポジット磁石の厚膜化およびバルク化の検討

研究項目(2) 高品位モデル磁石の高精度磁気特性および構造評価

研究項目(3) 高品位モデル磁石の原子レベル構造評価

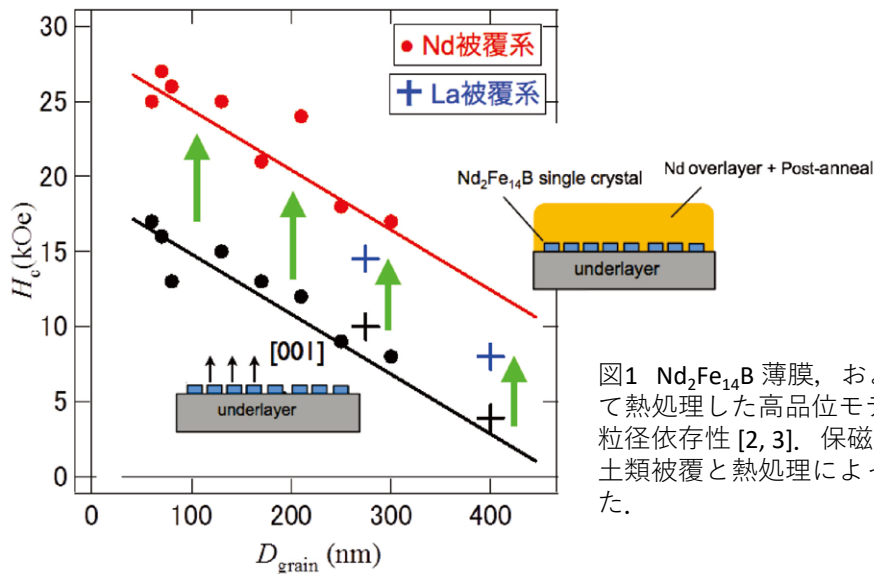


図1 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 薄膜、およびその上部にNd層、La層を被覆して熱処理した高品位モデル薄膜試料における保磁力の結晶粒径依存性 [2, 3]. 保磁力 H_c は結晶粒径 D_{grain} に依らずに希土類被覆と熱処理によって顕著な増加を示すことを見出した。

- [1] D. Ogawa, K. Koike, et al., Appl. Phys. Lett., 107, (2015) 102406(1-4).
- [2] K. Koike, H. Ishikawa, et al., Physics Procedia, 75 (2015) 1294–1299.
- [3] K. Koike, T. Kusano, et al., Nanoscale Res. Lett., 11:33, (2016) (1-8).
- [4] M. Itakura, J. Fukuda, et al., AIP Advances 7(3), 035301-1~9 (2017).

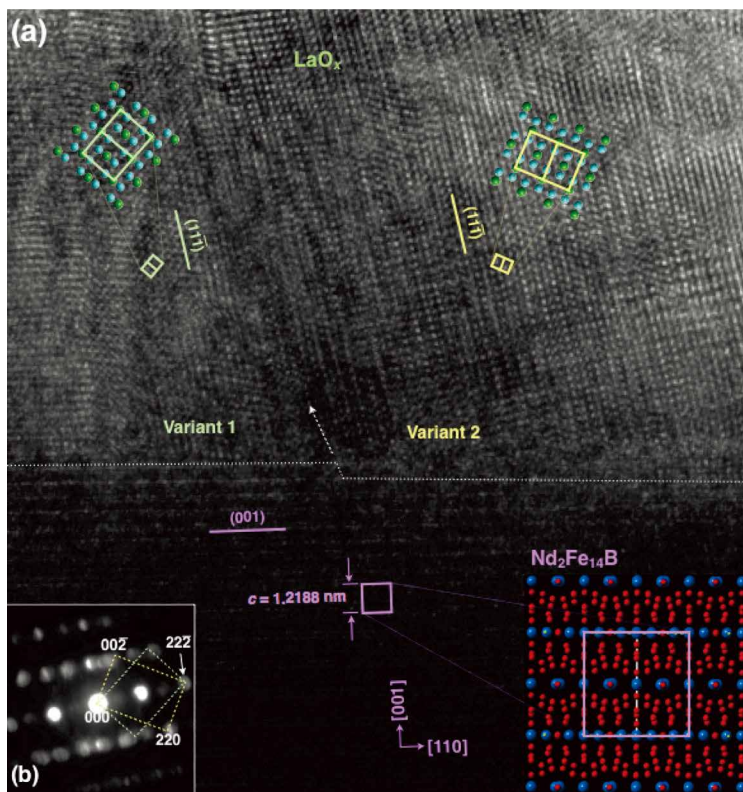
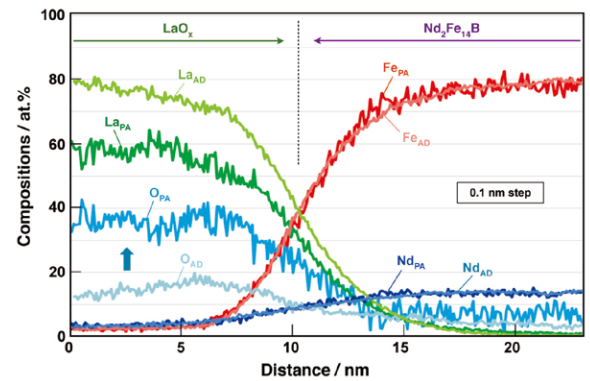


図2 La被覆したNd₂Fe₁₄B薄膜におけるNd₂Fe₁₄B層とLaO_x層の界面のTEM画像. [4]

(a) EDS profiles (with O)



(b) EDS profiles (without O)

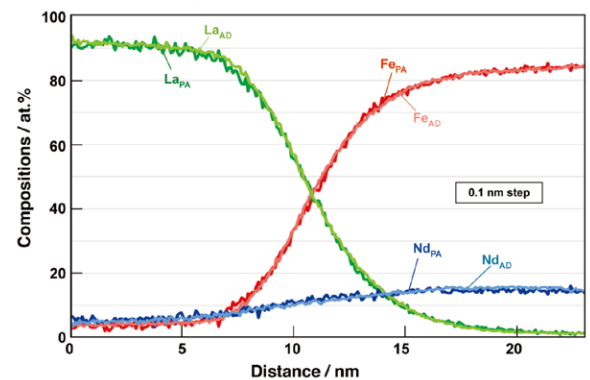


図3 図2の界面での濃度プロファイル. (a)酸素を含む場合(b)酸素を除いた場合. 熱処理で酸素濃度のみが増加(15%→35%)している. [4]

c軸が配向したNd₂Fe₁₄B薄膜をNd被覆またはLa被覆して熱処理したモデル試料では、図1のように保磁力が結晶粒径に依らずに顕著な増加を示す現象 [2, 3] を見出した. 上記モデル試料の界面構造を高分解能TEM観察によって調べたところ、図2のように被覆したNd層やLa層は酸化物相NdO_x, LaO_xになっていることや、その酸素濃度は図3のように熱処理に伴って20 at%程度増加すること [4] を発見し、保磁力と酸素濃度の相関を強く示唆した.

想定する分野・用途

- 短期的：小型・超小型で高性能な永久磁石（アクチュエータ, Magnetic Drug Delivery System）
- 長期的：HV, EV駆動モータ用高耐熱高性能磁石, 超高効率風力発電機用永久磁石

最終目標

- ナノスケールの構造制御と原子レベルでの構造評価によって高品位モデル磁石を創製し、資源的リスクのあるレアメタルの使用量を大幅に削減した最強の希土類磁石を創製するための指針を獲得する

産業界への要望

- 軽希土類元素は重希土類に比べてそれ程希少ではなく、永久磁石の高性能化にとって不可欠です. 軽希土類永久磁石は今後更なる性能向上のポテンシャルを秘めていることが明らかになってきました.

お問合せ 山形大学大学院理工学研究科 米沢市城南4-3-16 E-mail : kato@yz.yamagata-u.ac.jp

研究代表者	小林 久理真（静岡理科大学 理工学部 物質生命科学科 教授）
研究開発担当者	漆畑 貴美子（静岡理科大学 総合技術研究所 特別研究員） 鈴木 俊治（静岡理科大学 総合技術研究所 特別研究員）
課題名	3次元磁区構造観察装置を用いた、永久磁石の微構造と磁区構造の相互作用の研究
研究概要	永久磁石の3次元磁区構造を観察することは、その保磁力発現機構解明の最重要課題の1つです。本研究では、粒界における磁壁の安定性を中心に、微構造と磁区構造の相互作用をエネルギー論的に解明します。微小なNd-Fe-B系焼結磁石粒子（20-100 μm 径）を雰囲気制御下で成形し、その全表面に各種金属をスパッタ、熱処理して調製する試料の磁気特性測定と3次元磁区構造観察を行うことで、同磁石の保磁力向上の方策を見出します。

研究目標・成果

本研究テーマの研究は平成23年末（予算上23年7月）～平成27年3月の期間行った。ただし、以下の記述のとおり、平成25年度後半の中間評価で、研究の目標を絞り込むこととなり、実用磁石を用いた研究に集中することとなった。中間評価前の検討、特に磁区構造観察、磁気特性解析法などの装置群の整備と、解析法の開発は、評価後の絞り込んだ実用磁石試料の研究にも適用でき、研究期間全体で有効であった。はじめに、中間評価前の準備、装置の整備について述べ、後半では実用磁石にテーマを絞り込んだ後に得られた成果をまとめる。

1. 当初目標

ネオジム磁石微細試料（50～100 μm サイズ）を切り出し、その微細試料表面をスパッタ原子（NdやDy）で被覆、熱反応処理する。このようにして磁気特性を整えた微細試料で、人工的に形成した粒界相を持つ試料群を調製して、VSM（磁力計）で磁気特性を解析（本グループのStep法も用いる）し、MFM（磁気力顕微鏡）やSHPM（ホールプローブ顕微鏡）で磁石試料の磁区構造を観察して、保磁力と磁区構造や微構造の相関関係を明らかにすることで、実用磁石における保磁力増加の指針を明らかにする。

1. 1 解析装置

微細磁石の切り出し調製用の、Arイオンを用いる試料切断装置（大型グローブボックス内設置）、被覆原子（Nd, Dy）スパッタ装置、熱処理炉（雰囲気制御用、自作）、新高感度MFM（磁気力顕微鏡）の整備、SHPMの作製、整備、操作習熟などを行った（特に平成24～25年度）。

1. 2 解析内容

調製試料のサイズ、微構造の観察、同試料の磁区構造（とくに試料表面）の観察（MFM及びSHPM）、磁区構造モデルの作成とそれによる試料内部の磁区構造の可視化の検討、試料表面のNd及びDyによるスパッタ被覆と熱処理による物性変化（とくに保磁力回復）の検討等を、装置の整備とともに行った。

- ・結果 切断装置で微細試料の切り出し（図1）、加工が可能となり、スパッタ装置による、その表面被覆も可能となった。また、表面磁区構造は新MFMを用いて極めて明瞭に観察できるようになった（とくに、試料側面（a-b面）の磁区も観察可能となった（図2））。またSHPM像も得られるようになった（図3）。磁区構造モデルと実測磁区構造の対応関係の検討も進めた（図4）。

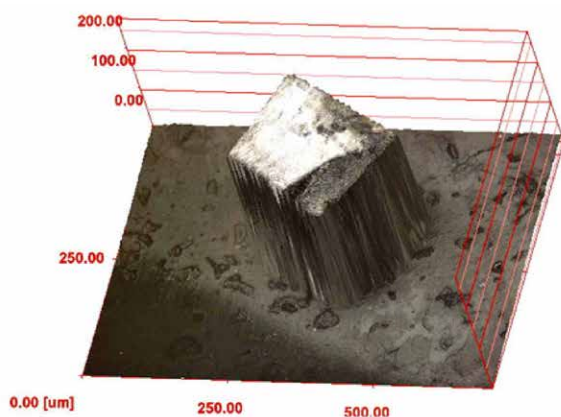


図1 レーザ顕微鏡によって算出した各辺長の測定結果（例）
（微細切断試料）

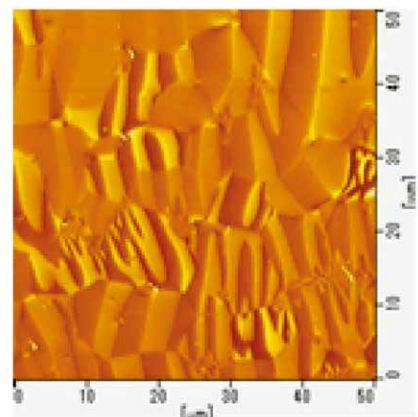


図2 新型MFMによるa-b面磁区画像

2. 中間評価後の目標

上述の微細試料の切り出し、表面被覆（スパッタによる）、熱処理後の人工的試料ではなく、実用磁石（通常ネオジム磁石（NEOMAX-48）、微細粒子径ネオジム磁石（保磁力2T級）、Tb粒界拡散高保磁力磁石（保磁力3T級））mmサイズの3試料を試料とすることになった。また、中間評価前までに整備した装置以外に、試料の粒界はTEM（透過型電子顕微鏡）、Cs-TEM、EBSD（後方散乱電子回折装置）を用いて解析することを評価委員の方々から提案され、それらの装置の解析結果も生かした総合的解析を行うことを推奨された。

2. 1 測定内容

この時期までに、VSMが最大5T印可可能に改善されたため、Step法の測定や、高保磁力磁石の減磁曲線測定も十分に可能となった。また、TEM、Cs-TEM、EBSDの解析により、表面粒子群の結晶方位、粒界層の厚さ、組成、相同定も可能となった。また、微構造は試料の漸次研磨表面の観察で深さ方向の解析が可能になり、Voronoi図形による解析なども可能となった。また、表面磁区構造は新MFMの操作習熟が進み、さらに明瞭に観察、解析できるようになった。

2. 2 解析内容

上述の実用磁石試料の着減磁過程で、表面磁区構造について、着磁状態の粒子間や、着磁状態と未着磁（減磁した）の粒子間の粒界について、構造、厚さ、組成を解析した（図5）。さらに、結晶方位の分布状態がEBSDで解析できるようになったため、配向不良の粒子とその周囲での着減磁挙動を詳しく検討した。さらに、試料の深さ方向の磁区構造の変化も、3次元的に解析できる可能性を確認した。

- ・結果 3種類の試料で、粒子径の減少に対して粒界層は薄くなるが、厚さは平均的に約2nm、Fe含有量は30~40at%、酸素（O）含有量では20~30at%であった。いずれの数値も測定数は限られており、かつ、バラツキもあった。結論的には、磁石の高保磁力化については、粒子径の微細化と、Tb添加の場合のように各粒子の磁氣的独立性の向上（単磁区化とも言える）が有効であることが明らかになった。ただし、減磁過程で多磁区領域が広がる場合などには、磁壁の留まりやすい（磁壁のピンニングを起こす）粒界が特に存在するわけではなく、減磁過程で、確率的に領域の境界が決まるように見えた。

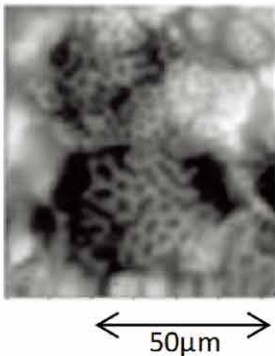


図3 SHPMによる磁区画像
(市販NdFeB磁石：c面磁区構造)

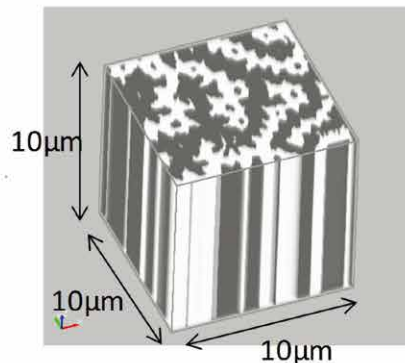


図4 Magdomによる磁区構造解析
(模式図)

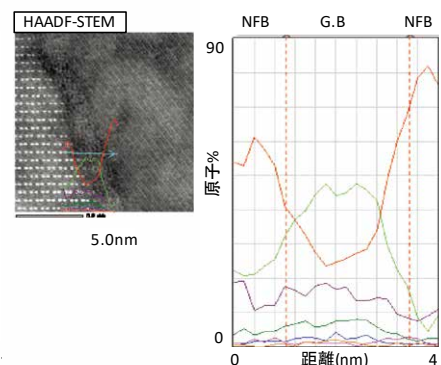


図5 Cs-TEMによるSD-SD及びSD-MD結晶粒界の
観察と解析結果
(着磁(単磁区)-未着磁(多磁区)粒子間)

想定する分野・用途

- 磁石試料の研磨表面の磁区構造観察方法としてMFMやSHPMを用いる場合の方法論確立。
- 表面の磁区構造と内部の磁化状態変化の相関性の明瞭化ができた（磁気測定でStep法を利用）。

最終目標

- 磁石の保磁力と磁区構造の相関性を明らかにする。
- さらに、磁石に高保磁力をもたらす磁区構造や微構造を見出す。

産業界への要望

- 研磨表面の磁区構造観察方法が、保磁力の発現機構などの解析と関連して、産業界に有効な観察法となるには、何が必要かご教授いただきたい。

お問合せ 静岡県袋井市豊沢22002 E-mail : kobayashi.kurima@sist.ac.jp

研究代表者	高梨 弘毅（東北大学 金属材料研究所 教授）
研究開発担当者	堀田 善治（九州大学 大学院工学研究院 教授） 小嗣 真人（高輝度光科学研究センター 研究員） 白井 正文（東北大学 電気通信研究所 教授）
課 題 名	貴金属フリーL1 ₀ 型規則合金磁石創製の指針構築
研究概要	Fe、Co、Niのみから成るL1 ₀ 型規則合金を作製し、産業界の要望である希少金属を用いない高性能磁石材料としての可能性を探究します。そのために、薄膜試料を用いた基礎研究と、新しい製造法として巨大ひずみ加工技術を用いたバルク試料の研究を、連携して推進します。また、放射光を用いた構造・磁性の高精度評価および第一原理計算による最適物質設計により研究を支援し、産学の対話のもと、新磁石創製の指針を構築します。

研究目標・成果

高規則度・高磁気異方性 L1₀型FeNi規則合金薄膜の作製

単原子層交互積層法による作製と評価

- 分子線エピタキシー法を用いて Fe および Ni の単原子層を交互積層させ、L1₀型FeNi規則合金単結晶薄膜の作製を行い、長距離規則度 S および一軸磁気異方性エネルギー K_u との間に明瞭な相関関係を見出しました。
(T. Kojima et al., Jpn. J. Appl. Phys., 2012)
- 下地層と基板温度の最適化によって、 $S=0.5$ で $K_u=7 \times 10^5 \text{ J/m}^3$ を得ましたが、目標の $S>0.9$ かつ $K_u>10^6 \text{ J/m}^3$ には到達しませんでした。
- Fe と Ni の組成比を変えた試料を作製した結果、Ni 組成 40 at.%において、飽和磁化 M_s 、 K_u とともに最大値を取り、 K_u は $9 \times 10^5 \text{ J/m}^3$ になることが分かりました (図 1)。
(T. Kojima et al., J. Phys. C, 2014)

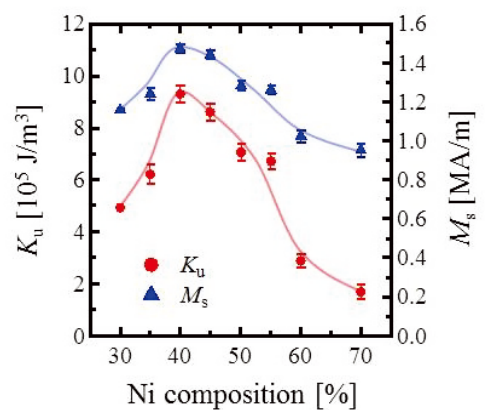


図1. Fe-Ni の組成を変化させた試料における飽和磁化 M_s および一軸磁気異方性エネルギー K_u .

第3元素添加効果

- Fe および Ni の単原子層を交互積層する際に、Fe 層に Co を添加した場合、Ni 層に Co を添加した場合、両方の層に Co を添加した場合の3通りの試料を作製し、比較したところ、Ni 層に Co を添加することで、 K_u が増加することが分かりました。
(T. Kojima et al., J. Phys. D, 2014)

磁気異方性の起源解明

- 単原子層交互積層法によって作製したL1₀型FeNi規則合金薄膜に対して、放射光を用いたX線磁気円二色性測定 (XMCD) を行い、磁気総和則を用いて導出した軌道磁気モーメントとスピン磁気モーメントの角度依存性を調べたところ、Fe の軌道磁気モーメントに有意な角度依存性が認められ、L1₀型FeNi規則合金の一軸磁気異方性は、Fe の 3d 軌道磁気モーメントに由来するスピン軌道相互作用が起源であることが分かりました。この結果は、第一原理計算による理論予測とも一致しました。
(M. Kotsugi et al., J. Magn. Magn. Mater., 2013)

スパッタ法と急速昇温熱処理による作製と評価

- ・スパッタ法を用いて作製した Fe と Ni の同時蒸着膜および多層膜に急速昇温熱処理 (RTA) を施すことによって、 $L1_0$ 規則相の形成を確認しました。
- ・組織観察の結果から、スパッタ法と RTA によって作製した薄膜では、高規則度 ($S > 0.8$) を有するナノスケールのクラスターが不規則相中に分散していることが分かりました。 $L1_0$ 規則相の体積分率と保磁力との間には、ばらつきはあるものの、正の相関関係が見られました (図2)。
(K. Takanashi et al., J. Phys. D, 2017)
(T. Y. Tashiro et al., J. Alloys & Comp., 2018)

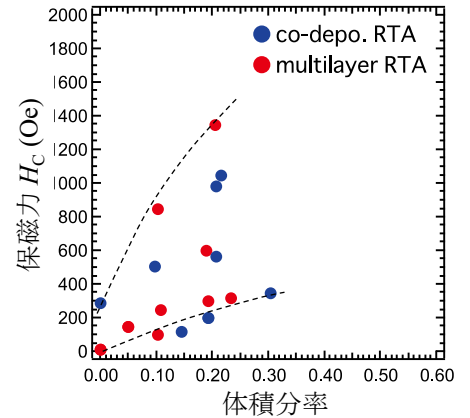


図2. スパッタ+RTA で作製した試料の $L1_0$ 規則相の体積分率と保磁力 H_c .

巨大ひずみ加工によるバルク試料の作製

$L1_0$ -FeNi規則相の確認

- ・Fe と Ni の混合粉末試料にHPT (High Pressure Torsion) 加工により巨大ひずみを導入し、熱処理を行うことで、 $L1_0$ 規則相の形成を確認できました。しかし、規則度が低い、あるいは規則相の体積分率が低いために、大きな保磁力は得られませんでした。
(S. Lee et al., Phil. Mag. Lett., 2014)

第3元素添加効果

- ・第一原理計算による理論予測を参考にして、巨大ひずみ加工したバルク試料において、第3元素の添加効果を調べたところ、 $L1_0$ 規則相の形成に Co の添加は効果的ですが、Ti 添加の効果は見られませんでした。

プロジェクト終了後の進捗

- ・MagHEM/NEDO の委託を受け、(株)デンソーとの共同研究を行っており、窒化・脱窒素法により、高規則度の $L1_0$ -FeNi 合金粉末の合成に成功し、磁石応用への道が拓けました。(S. Goto et al., Sci. Rep., 2017)

想定する分野・用途

- 高保磁力バルク試料 → 完全非希土類磁石としての応用
- 垂直磁化膜 → 磁気記録・スピントロニクス分野への応用

最終目標

- 高規則度 ($S > 0.9$) 単結晶試料の作製と基礎物性評価
- バルク試料の組織制御と高保磁力化

産業界への要望

- 研究の進展を長い目で見守っていただければありがたいです。

お問合せ 仙台市青葉区片平2-1-1 東北大学金属材料研究所 高梨弘毅 E-mail:koki@imr.tohoku.ac.jp

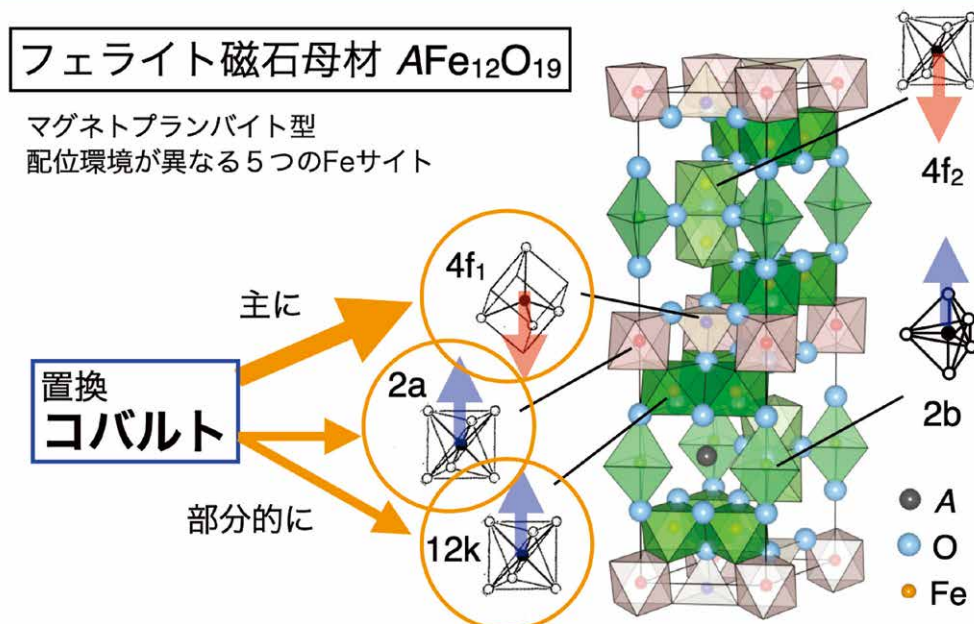
研究代表者	中村 裕之（京都大学 大学院工学研究科 教授）
研究開発担当者	和氣 剛（京都大学 大学院工学研究科 助教） 田畑 吉計（京都大学 大学院工学研究科 准教授） 池野 豪一（大阪府立大学 工学研究科 准教授） 吉村 一良（京都大学 大学院理学研究科 教授） 植田 浩明（京都大学 大学院理学研究科 准教授） 道岡 千城（京都大学 大学院理学研究科 助教） 小林 寿夫（兵庫県立大学 物質理学研究科 教授） 池田 修悟（兵庫県立大学 物質理学研究科 助教） 高橋 慶紀（兵庫県立大学 物質理学研究科 教授） 酒井 宏典（日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター 研究主幹）
課題名	・ 鉄系酸化物磁石の飛躍的高機能化を目指した微視的評価技術の開発と保磁力機構の解明 ・ 遷移金属元素の価数に着目した鉄系酸化物磁石の実用材周辺の基礎科学とその高性能化に向けた物質設計指針の提案
研究概要	フェライト磁石では母物質の鉄原子の一部をコバルトに置換することで性能を高めていますが、従来の常識と異なり、鉄やコバルトの価数が不安定で、そのことが磁石の性能に深く関わっている可能性があります。本研究ではコバルト置換磁石の鉄・コバルトの価数を実験的に明らかにするとともに、価数を積極的に制御することで磁石の性能を向上できないか検証します。その結果を前提に、産学共創の場を活用して、高機能鉄系酸化物磁石の開発を目指します。

研究目標・成果

性能を向上させる置換コバルトの置換サイトの同定

コバルトは一般には複数の鉄サイトを置換、主には四面体配位サイトを占有

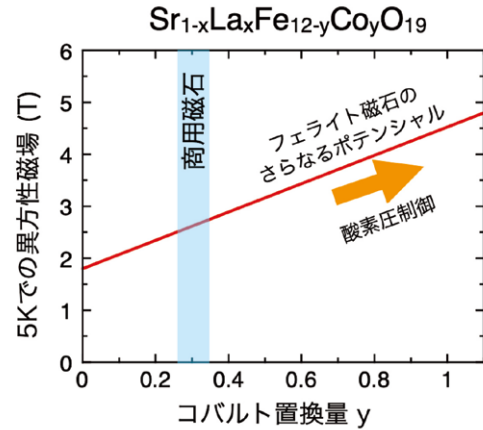
・ 5種類の鉄サイトのうちコバルトがどのサイトを置換するか混乱があったが、各種実験、計算を組み合わせ、占有サイトを決定。少なくとも2a, 4f1, 12kの3サイトを置換し、主には四面体配位に4f1を占有。



コバルト増量法

性能はコバルト量に比例
コバルト量を増やすには酸素圧が鍵

・性能はコバルト量に比例して向上するが、これまで置換量には上限あり。作製時の酸素分圧をコントロールすることで、置換量の大幅増が可能。



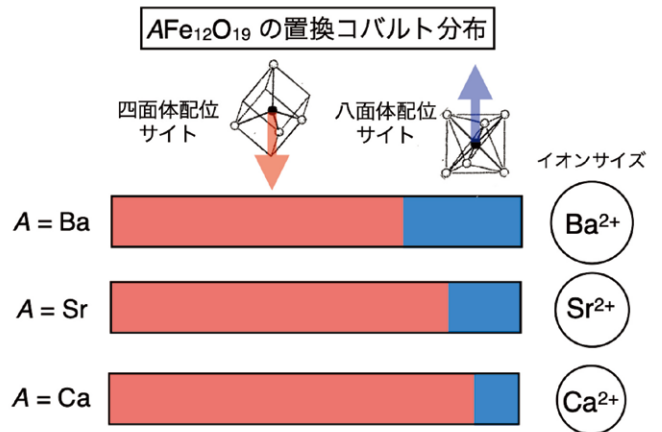
サイト選択コバルト置換が性能とコストの両立に重要（課題終了後の展開）

特定のサイトのコバルトのみが役立っている

・強磁性核共鳴を利用し各サイトを占有するコバルトの局所磁気異方性を評価。性能向上に寄与するのは特定のサイト（四面体配位サイト）のコバルトのみであることが明らかに。

コバルトを特定のサイトに集める方法

・コバルトの分布は実は物質によって異なる。その理由がはっきりすれば、コバルトを特定のサイトに積極的に集めることが可能。



想定する分野・用途

- 鉄系酸化物磁石の高性能化により、コストパフォーマンス・化学的安定性・高温安定性が求められる永久磁石の応用分野への展開が期待される。代表的用途は高温・湿潤環境でのモータ等。

最終目標

- コバルト置換サイト選択性の支配因子を学術的に検証し、高性能化と低価格化を両立させる。
- 従来のフェライト磁石と希土類磁石の隙間を埋める新世代の希土類フリー磁石の提案。

産業界への要望

- 本研究で確立した要素技術（物質設計指針）を活用した次世代高性能フェライト磁石の実現。

お問合せ 京都市左京区吉田本町町 京都大学工学研究科 中村裕之
E-mail : nakamura.hiroyuki.2w@kyoto-u.ac.jp

研究代表者	嶋 敏之（東北学院大学 工学部 教授）
研究開発担当者	土井 正晶（東北学院大学 大学院工学研究科 教授） 岡田 宏成（東北学院大学 大学院工学研究科 准教授） 白井 正文（東北大学 電気通信研究所 教授） 辻川 雅人（東北大学 電気通信研究所 助教）
課 題 名	・ ラティスエンジニアリングによる高磁化磁性材料の創製および高性能永久磁石材料の開発 ・ 軽元素添加による高磁化磁性材料の創製ならびに革新的永久磁石材料の開発
研究概要	高性能永久磁石の需要は増加し続けており、従来型Fe系希土類系磁石の性能を超えるブレークスルー技術が要求されている。本研究開発では、高機能性が期待される軽元素添加による新しいマンガン（Mn）基高飽和磁化・高磁気異方性磁性材料の創製の可能性を、エビタキシャルモデル薄膜および第一原理計算から得られた知見を基にバルク材料へ展開することによって革新的次世代高性能永久磁石の開発を目指す。

研究目標・成果

1. 強磁性を示す正方晶逆ホイスラー合金の理論設計

高磁化・高磁気異方性を示す正方晶逆ホイスラー型Fe₂MnGa合金の理論設計

・ Fe₂MnGa合金を体積拡張させる方策として、Fe, Mnと比較して原子半径の大きなGa組成の増加が考えられる。そこでGa組成増大による体積への影響を調べた結果、Fe_{1.5}Mn_{1.0}Ga_{1.5}, Fe_{2.0}Mn_{0.5}Ga_{1.5}組成の立方晶L2₁構造において、それぞれ5.4%, 3.6%まで体積が膨張することを確認した。下図に立方晶L2₁構造と正方晶XA構造の形成エネルギー差の組成依存を示す。青丸の組成領域では、正方晶XA構造が最安定構造であることを見出した。また、正方晶XA型Fe-Mn-Ga合金の磁化および磁気異方性エネルギーについて組成依存を調べた結果、FeをGaと置換した場合に、磁化はGa組成の増大に伴い単調に減少するが、磁気異方性エネルギーは組成に依らず大きな値が保たれることを明らかにした。また、Fe_{1-x}MnGa_{1+x} (x ≤ 0.5) 合金においては、異方性磁界は磁化に対して線形に減少することを明らかにした。このように、正方晶構造が安定であるFe_{1-x}MnGa_{1+x} (0.1 ≤ x ≤ 0.5) 合金において、いずれの組成においても、B_s = 1.28T, K_u = 2.0 MJ/m³, H_k = 2800kA/mを超える特性が得られることが期待される。参考論文) M. Tsujikawa et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **56**, 055506 (2020).

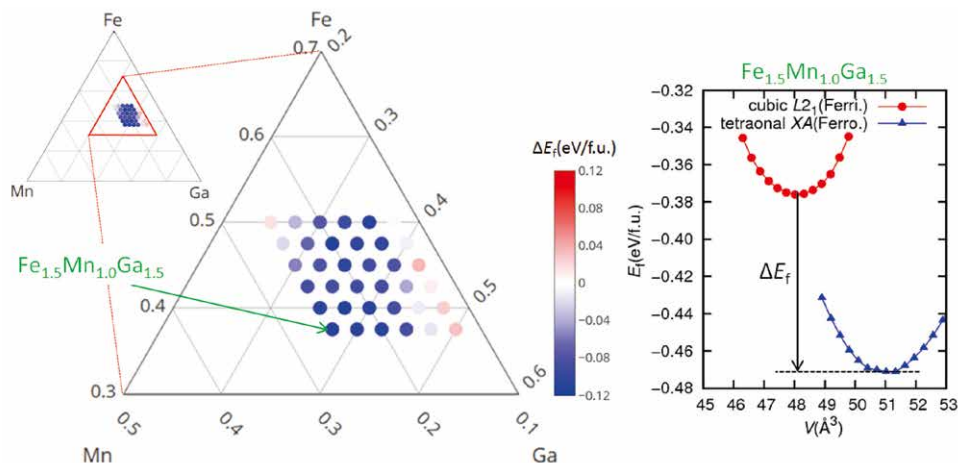


図. Fe-Mn-Ga合金における立方晶L2₁構造と正方晶XA構造の形成エネルギー(E_f)の比較(左図)とFe_{1.5}Mn_{1.0}Ga_{1.5}合金における形成エネルギーの体積依存性(右図).

2. 軽元素添加による正方晶逆ホイスラー型高飽和磁化・高磁気異方性磁性薄膜・合金材料の開発

高飽和磁化を示す $\text{Mn}_{3-x}\text{Fe}_x\text{Ga}$ 合金薄膜の作製

軽元素(N)添加bcc系Fe-Mn-Ga-N薄膜における高飽和磁化

・ 正方晶逆ホイスラー化を念頭にMn原子をFe原子で置換し、格子歪による磁気特性の変化を調べる目的でMgO単結晶基板上に超高真空電子ビーム蒸着装置を用いて $\text{Mn}_{3-x}\text{Fe}_x\text{Ga}$ 合金薄膜を作製した。 $\text{Mn}_{1.0}\text{Fe}_{2.0}\text{Ga}$ 薄膜の試料において膜厚を薄くし、 $t_{\text{Mn-Fe-Ga}} \leq 3 \text{ nm}$ において面内磁化容易軸から垂直磁化容易軸へと変化し、磁気異方性が大きくなることを確認した（高飽和磁化（0.94 T）、高磁気異方性（1.43 MJ/m³）。さらに、Fe, Gaリッチ $\text{Mn}_x\text{Fe}_y\text{Ga}_{1.5}$ 合金薄膜（1 nm）において高飽和磁化（1.38 T）、高磁気異方性（2.01 MJ/m³）を示唆する実験結果が得られたことから、目標値である高飽和磁束密度（ $B_s > 1.6 \text{ T}$ ）・高磁気異方性（ $K_u > 2 \text{ MJ/m}^3$ ）達成の足がかりが得られた。

・ Fe-Mn層とFe-Ga-N層を多層化し、総膜厚が20nmになるように調整した試料を作製した。その結果、Fe-Mn層のMn量を80%から徐々に減少させることにより飽和磁化は徐々に増加し（下右図）、Mn量が40%においてFe-Mn/Fe-Ga-N系で最大の飽和磁化である1159 emu/cm³=1.45 Tが得られた。高い飽和磁化が発現した機構を詳細な構造解析により調べる必要がある。

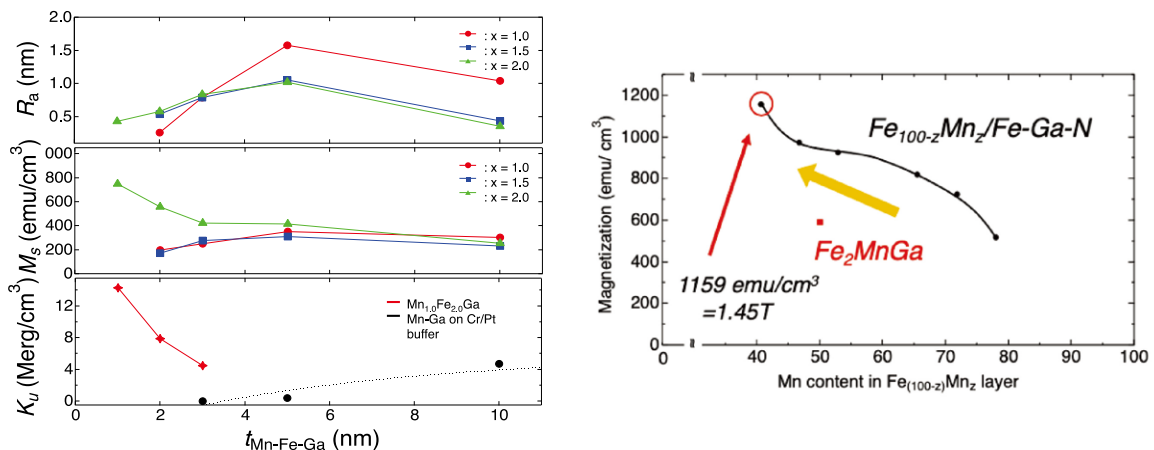


図. 膜厚に対する表面粗さ R_a 、飽和磁化 M_s および異方性 K_u （左図）および $[\text{FeMn}/\text{FeGaN}]$ 薄膜のMn量による磁化曲線および飽和磁化の変化（右図）。

想定する分野・用途

- 脱化石燃料・低炭素時代における省エネルギー、クリーンエネルギーに関わる技術開発
- レアメタルを含まない高性能永久磁石材料を開発するための革新的な技術

最終目標

- 理論計算により安定構造を示すと予測されている正方晶逆ホイスラー構造を有する合金の合成
- 軽元素添加・格子伸長による高い飽和磁化かつ高い結晶磁気異方性を有する磁石材料の発現

産業界への要望

- 組織制御によるバルク合金の高保磁力化・永久磁石化プロセスへの展開
- 研究を継続し優れた磁石材料を実現するための共同研究・委託研究実施による積極的な支援

お問合せ 宮城県多賀城市中央1-13-1 東北学院大学 E-mail : shima@mail.tohoku-gakuin.ac.jp

研究代表者	柳原 英人（筑波大学 数理物質系 教授）
研究開発担当者	石橋 隆幸（長岡技術科学大学 大学院工学研究科 教授） 清野 智史（大阪大学 大学院工学研究科 准教授）
課題名	電子論に基づいたフェライト磁石の高磁気異方性化指針の確立
研究概要	立方晶スピネルフェライトは、OP磁石として実用化された最初の酸化物磁石です。この研究では、磁気異方性の起源に立ち返って物質設計をおこない、結晶場とスピン軌道相互作用を制御することでスピネルフェライトの磁気異方性を最大化させ、スピネルフェライトの磁石としてのポテンシャルを引き出すことを目指します。大きな一軸性磁気異方性を発現させる指針を確立することで、スピネルフェライトの新たな高性能磁石材料としての可能性を示します。

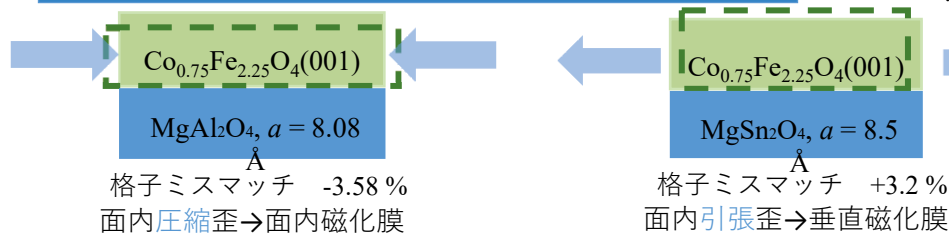
研究目標・成果

フェライト磁石の再認識と結晶構造制御による高磁気異方性化

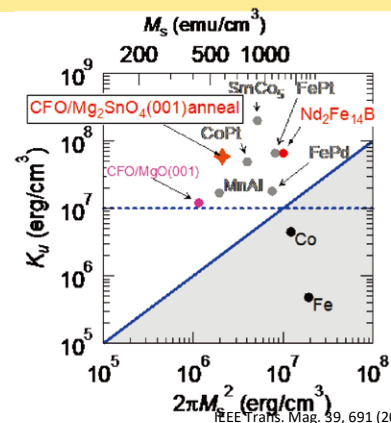
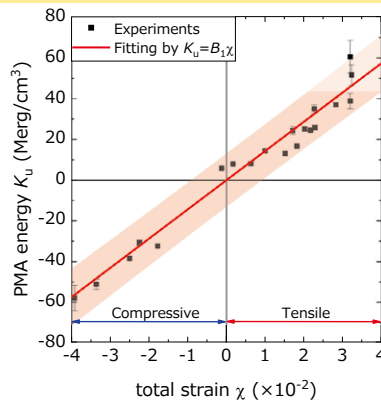
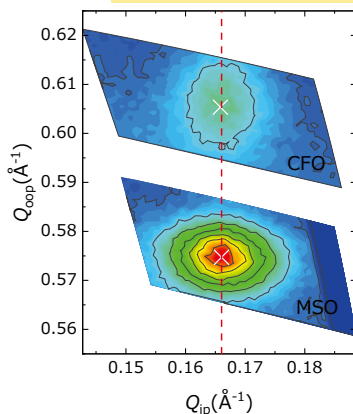
道角運動量の増大→“スピネルフェライトの正方晶化”
“正方晶化スピネルフェライト(Co^{2+} を含む)磁石”の開発

エピタキシャル歪を用いた $(\text{Co,Fe})_3\text{O}_4$ への巨大歪の導入

反応性スパッタリング法による高品位酸化物薄膜成膜技術の確立

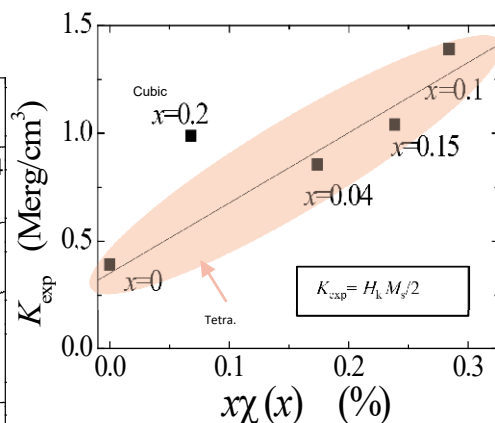
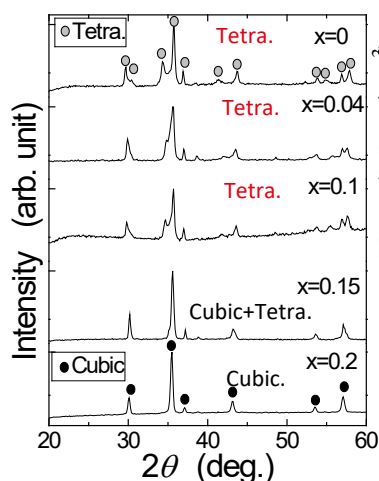
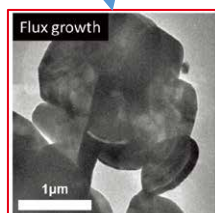
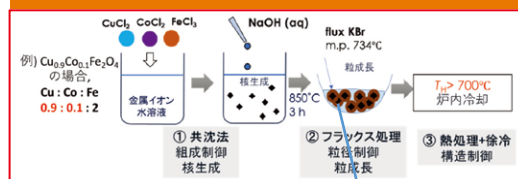


- スピネルフェライト薄膜に適した下地層の開発 (MgSn_2O_4 , $a = 8.5 \text{ \AA}$)
- 巨大な圧縮・引張歪導入に成功



- 格子歪が±4%程度では、誘導磁気異方性は歪に比例していることを確認
- 最大で $K_u \sim 40 \text{ Merg/cm}^3$ の磁気異方性を誘導→ $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ に匹敵！
- より大きな歪を導入することで巨大磁気異方性を実現可能

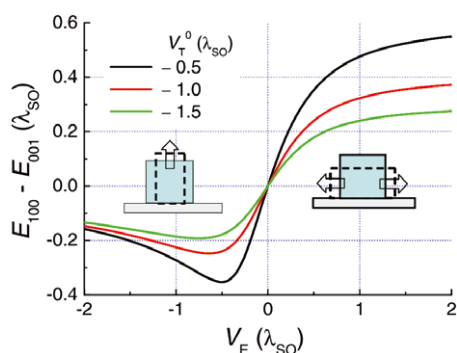
正方歪スピネルフェライト微粒子



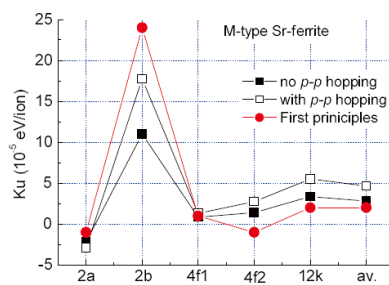
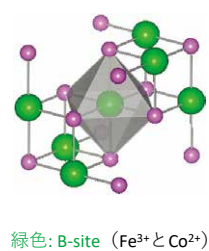
歪 (χ) と Co^{2+} 濃度 (x) に比例して、磁気異方性 (K_u) が発現

- ・ ヤーン・テラーイオン導入に伴い立方晶→正方晶へ
- ・ 微粒子形態において、誘導磁気異方性を付与する材料設計指針の確立

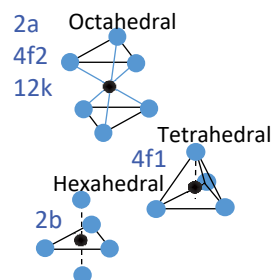
クラスターモデルによるイオン種・サイト別磁気異方性計算



スピネルフェライトの正方歪と誘導磁気異方性



M型六方フェライトのサイトごとの誘導磁気異方性
実験値は本計算結果と良い一致を示した。



- ・ 結晶構造 (と原子位置)、イオン種を決めるだけで、各種フェライト (や磁性酸化物) の磁気異方性を良い精度で予測可能

想定する分野・用途

- 新規スピネルフェライト磁石
- スピントロニクス材料、MEMS材料

最終目標

- 巨大歪の導入方法の確立と超磁気異方性材料の開発
- 格子歪による磁性制御と新機能探索

産業界への要望

- フラックス法による微粒子成長技術の応用
- 磁気異方性材料の共同開発

お問合せ つくば市天王台 1-1-1 E-mail : yanagiha@bk.tsukuba.ac.jp

研究代表者	齊藤 準（秋田大学 大学院理工学研究科 数理・電気電子情報学専攻 教授）
研究開発担当者	河上 肇（秋田大学 大学院理工学研究科 数理・電気電子情報学専攻 教授） 吉村 哲（秋田大学 大学院理工学研究科 附属革新材料研究センター 准教授）
課 題 名	磁石破断面の3次元磁場イメージングが可能な高分解能・交番磁気力顕微鏡の開発による保磁力機構の解明
研究概要	研究代表者が開発した高分解能・交番磁気力顕微鏡技術を基盤に、直流磁場により磁化状態を連続的に変化させた破断面などのさまざまな表面状態の磁石に交流磁場を印加することで、印加磁場に対して可逆的および不可逆的に変化する磁化から発生する磁場を試料表面からの距離を連続的に変化させて3次元イメージングする技術を新たに確立し、磁性結晶粒の表面から内部に渡る断面方向の磁気情報を解析することで保磁力機構の解明に取り組む。

研究目標・成果

交番磁気力顕微鏡を基盤とした永久磁石の磁区観察・解析法の開発

磁気力顕微鏡は磁性探針を用いて観察試料から発生する磁場を検出する非接触原子間力顕微鏡の一形態であり、磁場は遠距離力であることから計測信号には磁性結晶粒の表面から内部に渡る断面方向の磁気情報が含まれる特徴がある。研究代表者がこれまでに独自開発した交番磁気力顕微鏡は、磁気力顕微鏡分野で困難であった試料表面近傍での磁場検出を、探針試料間の交番磁気力の利用により可能にすることで空間分解能を飛躍的に向上させたものであり、大気中においても10nm以下の高い空間分解能を簡便に得ることができる。本課題では、次世代永久磁石開発に求められる磁区観察・解析のニーズを背景として、永久磁石観察用に開発した高磁化・超常磁性探針（磁化が強磁場で飽和せず、磁化値が磁場に比例して磁場方向に発生。残留磁化ゼロ・ヒステリシスなし）を用いることで、永久磁石開発に資する新たな磁気イメージング技術を開発した。

結晶粒径 10 μm までの磁石の破断面の磁区観察法の開発

磁石の磁区構造の観察には観察面として平滑面がほとんどの磁区観察法で必須となるが、通常の機械研磨等により作製した平滑面では、保磁力が磁石内部と比較して低下することが多くの磁石材料で報告されていることから、粒界破断面等での磁区観察が求められている。本項目では交番磁気力顕微鏡に超常磁性探針を用いた場合に磁場検出方向が変化することなく固定化できる特長を利用し、表面凹凸が10 μm 程度までの粒界破断面の磁区観察を可動距離の大きな顕微鏡スキャナを用いて実現した。図1に結晶粒径が10 μm 弱の異方性NdFeB焼結磁石の破断面における交番磁気力顕微鏡像(30 μm 角)を示す。図(b)の磁気力顕微鏡像では観察されていない磁区構造が、交番磁気力顕微鏡を用いることにより、図(c),(d)に示すように磁場の極性（磁場の向上/ 下向き）を含めて明瞭に観察されていることがわかる。本手法は表面凹凸が大きな粒界破断面等での磁区観察に有用となる。

(Y. Cao et al., J. Appl.Phys.,123, 224503 (2018))

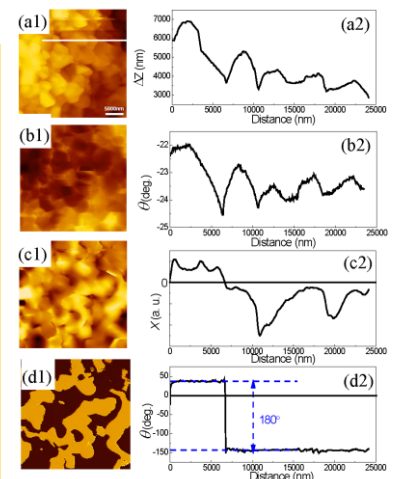


図1 表面形状像(a)、磁気力顕微鏡像(b)、交番磁気力顕微鏡像[(c)磁場像、(d)磁場極性像(磁場の向上/下向き)]

交流磁場印加時の可逆/不可逆磁化の同時観察法の開発

磁石の減磁過程の解析は保磁力機構を考える上で重要である。磁石の減磁過程は磁場の増加により磁化が不可逆的に反転する不可逆磁化過程と、磁化が磁場に追従して可逆的に変化する可逆磁化過程からなる。本項目では、交番磁気力顕微鏡の直流磁場/交流磁場の同時検出機能を利用して、磁石の局所的な交流磁場応答性の違いを可視化できる可逆/不可逆磁化の同時観察法を開発した。図2に異方性NdFeB焼結磁石の破断面において、交流磁場の強度を変化させて観察した直流磁場像および交流磁場

像(30 μ m角)を示す。印加する交流磁場を300 Oeから700 Oeに増加させても、試料からの直流磁場像はほぼ同様であり試料の磁区構造は変化していないが、交流磁場像は交流磁場の増加に伴い変化しており、交流磁場を試料に印加することで局所的に磁化方向が可逆的に変化し試料から交流磁場が発生する場所が現れることがわかる。このことは交流磁場の増加により磁区構造を保ったままで不可逆な磁化反転は発生しないが、磁化方向が磁場により可逆的に変化しやすい場所（磁化率が大きい場所）があることを示している。本手法は磁石の保磁力機構に及ぼす磁氣的不均一性の影響の評価に有用となる。
(Y. Cao et al., Appl. Phys. Lett.,112, 223103 (2018))

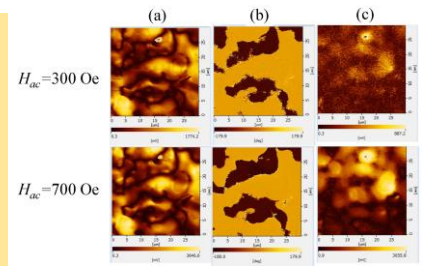


図2 直流磁場像 (a:磁場強度像、b:磁場極性像(磁場が上向き/下向き))、(c) 交流磁場像

3次元磁場計測法の開発及びニューラルネットワークを用いた機械学習による内部磁区構造の推定

磁気力顕微鏡の計測信号に含まれる試料内部からの寄与を分離・解析するために、試料面上での3次元空間で磁石試料の測定点ごとに探針試料間距離を変化させながら交番磁気力顕微鏡像を取得できる3次元磁場計測システムを開発した。取得像に対して研究代表者が以前に明らかにした磁極を発生源とする交番磁気力顕微鏡像の探針伝達関数を利用した探針試料間距離変換を適用し、探針試料間距離の増加により試料内部の磁極からの磁場が減衰し顕微鏡の検出限界以下になることを利用して、異なる探針試料間距離で測定した像の探針試料間距離変換像の差分をとることで、探針試料間距離の増加により失われる内部の磁極情報の可視化に成功した。しかしながら内部磁極分布の深さ推定は単純な内部分布モデルを用いたシミュレーションで可能性を確認したのみであり、観察像での解析には至っていない。

交番磁気力顕微鏡像のデータを用いた内部解析の可能性を探るため、ニューラルネットワークを用いた機械学習による内部磁区構造の推定結果を図3に示す。5×5×5（125個）の正方メッシュで、10万個のデータセット（磁化方向が上向き/下向きで、半数が上向き）を用意し、その内の80%の8万個の磁化配置と磁場勾配の対応データを用いて機械学習を行い、残り20%の2万個の磁場勾配データから機械学習の結果を用いて磁化配置を推定し、磁場勾配データを計算した磁化配置と比較することで正答率を評価した結果、異方性磁石を仮定し、磁化方向が上向きあるいは下向きである制約条件を課すことで、50%以上の正答率が得られることがわかった。交番磁気力顕微鏡像の推定にはさらに観察する磁石を特徴付ける付加情報を加えた学習が必要となる。

内部磁区構造の推定による保磁力機構の解明は今後の課題である。

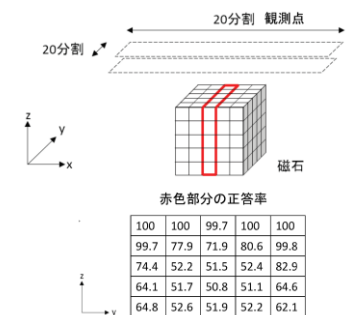


図3 ニューラルネットワークを用いた機械学習による磁石内部の磁区構造の推定結果

想定する分野・用途

- 永久磁石の高分解能・3次元磁場イメージング（観察面の表面凹凸が大きくても磁区観察が可能）
- 永久磁石の磁化過程解析（交流磁場に対する可逆/不可逆磁化の同時観察）

最終目標

- 永久磁石の磁性結晶粒の表面から内部に渡る断面方向の磁気情報の解析
- 磁区観察・解析手法を用いた保磁力機構の解明

産業界への要望

- 永久磁石の磁化状態解析に係わるニーズの教示
- 永久磁石の磁化状態解析に係わる共同研究

お問合せ 秋田市手形学園町 1-1 E-mail : hsaito@gipc.akita-u.ac.jp

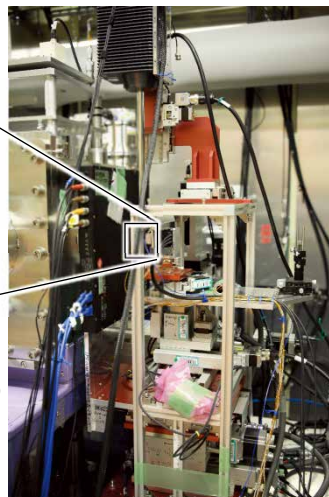
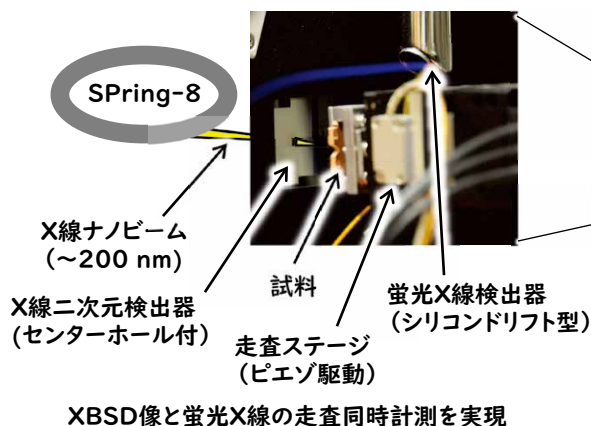
研究代表者	中村 哲也（高輝度光科学研究センター 研究プロジェクト推進室 客員主席研究員）
研究開発担当者	松浦 裕（応用科学研究所 特別研究員） 田村 隆治（東京理科大学 基礎工学部 教授） 梶原 堅太郎（高輝度光科学研究センター 放射光利用研究基盤センター 主幹研究員） 隅谷 和嗣（高輝度光科学研究センター 放射光利用研究基盤センター 研究員） 石上 啓介（高輝度光科学研究センター 放射光利用研究基盤センター 博士研究員） 中村 哲也（東北大学 国際放射光イノベーション・スマート研究センター 教授）
課題名	永久磁石の微細組織とその局所磁気特性の解析による高保磁力化の指針構築
研究概要	Nd-Fe-B磁石やSm-Co磁石をはじめとする高性能永久磁石では、磁石内部の微小な磁石粒子の粒径や結晶方位が不均一に分布しており、この不均一組織が保磁力性能に影響すると考えられている。本研究では、大型放射光施設（SPring-8）を活用して粒子毎の結晶方位と磁気特性を詳細に解析することで、高保磁力化の指針を構築する。

研究目標・成果

新計測技術：放射光走査型X線後方散乱回折(XBSD)顕微法の開発

XBSD: X-ray Back Scattering Diffraction

計測システムの開発



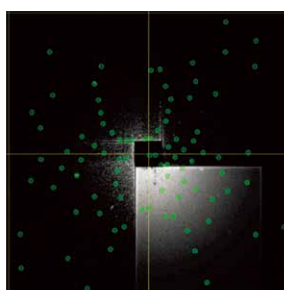
計測手法の特徴

電子線を用いた既存の結晶方位分布解析法である電子線後方散乱回折法 (EBSD) と比較して、XBSDは以下の特徴を有する。

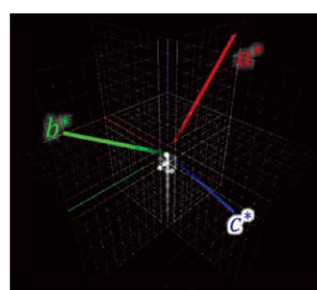
- ① 検出深度が大きい ($>1\ \mu\text{m}$)
- ② 凹凸のある表面にも適用可能 (材料の破断面や非研磨面等)
- ③ 原理的に角度分解能が高い
- ④ 多様なオペランド計測が可能 (加熱, 冷却, 磁場, 湿潤, ガス)

特に本課題では、②の特徴を活かし、永久磁石の破断面に対する磁区観察と同じ試料を同じ観察領域で解析するために開発。

永久磁石試料への適用



結晶方位解析



結晶方位解析

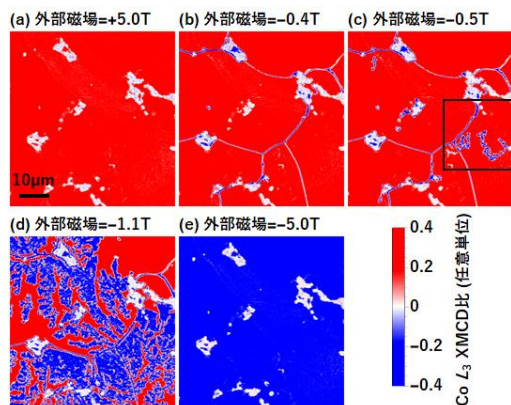
X線回折原理に基づき、XBSD像から結晶方位を決定。多結晶試料に対する走査型マッピングでは、多数のXBSD像に対して同様の解析を行うため、スパコン等の利用も想定される。

- ・ 蛍光X線強度とXBSD像の走査同時計測システムを開発。
- ・ XBSD像から結晶方位を導出する解析アルゴリズムを開発。

放射光磁区観察によりSm₂Co₁₇系磁石の保磁力向上指針を提示

Appl. Phys. Lett. 117, 022409 (2020)

放射光軟X線による磁区観察

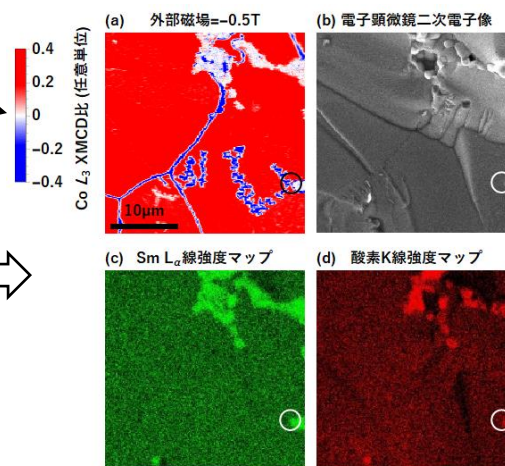


文部科学省・元素戦略プロジェクト・磁性材料研究拠点により開発された磁区観察技術を利用

異方性(Sm, Ce)₂(Co, Fe, Cu, Zr)₁₇磁石の破断面に対して放射光軟X線を用いて観察した磁区像。(a)~(e)は、それぞれ、(a)+5.0 T (b)-0.4 T, (c) -0.5 T, (d) -1.1 T, (e)-5.0 Tの磁場下での測定。

観察結果より、まず結晶粒界から磁化反転が起こることを確認した。また(c)においては、非磁性領域(図で白い部分)の周辺からも逆磁区が発生して結晶粒内に侵入していく様子を捉えた。

拡大



SPring-8プレスリリース(2020年7月13日)より転載
http://www.spring8.or.jp/ja/news_publications/press_release/2020/200713/

保磁力の低下要因を特定

外部磁場-0.5 Tにおける(a)磁区像。(b)~(d)は走査型電子顕微鏡による観察結果であり、(b)磁区像に対応する領域の電子顕微鏡の二次電子像、(c)Sm Lα線強度マップ、(d)酸素K線強度マップ。非磁性領域は、SmとOを多く含む希土類酸化物相であると判明。

磁化反転しやすい結晶粒界の磁性を改質するとともに、希土類酸化物の析出を抑えることで、保磁力の向上が可能と予測される。

- ・ 結晶粒界相と希土類酸化物粒の周囲で逆磁区が発生しやすいことが分かった。
- ・ 粒界相の磁性を改質し、希土類酸化物を低減することで保磁力向上が可能なことを提示。

想定する分野・用途

- 産学の材料・素材分野
- 材料科学の基礎となる物質科学分野

最終目標

- XBSD顕微鏡法による結晶方位分布解析技術の確立
- 永久磁石材料の結晶方位分布と磁区の相関解明による保磁力向上の指針獲得

産業界への要望

- 本課題で開発したXBSD顕微鏡法のニーズ提案と利活用
- 永久磁石開発領域における放射光解析と産学連携研究の提案

お問合せ 兵庫県佐用郡佐用町光都1-1-1 E-mail : naka@spring8.or.jp

研究代表者	宝野 和博（物質・材料研究機構 理事・フェロー）
研究開発担当者	大久保忠勝（物質・材料研究機構 磁性・スピントロニクス材料研究拠点 磁性材料解析グループリーダー） Amin, Sepehri Hossein（同 主幹研究員） 佐々木泰祐（同 主幹研究員）
課 題 名	ネオジム磁石の超微結晶化による高温磁石特性の飛躍的改善
研究概要	液体急冷／熱間加工法ならびに水素吸蔵分解反応法で微細化したNd-Fe-B系超微結晶異方性磁石を試作し、それらの結晶粒界を改質することにより、従来のネオジム磁石よりも優れた磁気特性・耐熱性を実現するための原理検証を行う。微結晶化により保磁力の温度依存性を改善し、重希土類元素を使わず160℃においても保磁力0.8Tを確保できる磁石を試作する課程で、微細化による保磁力・耐熱性改善のメカニズムを理解しその結果を公表することにより、産業界における開発研究の指針を示す。

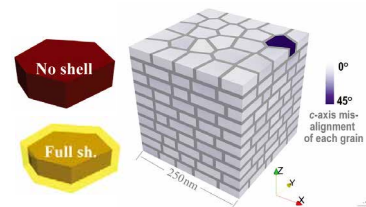
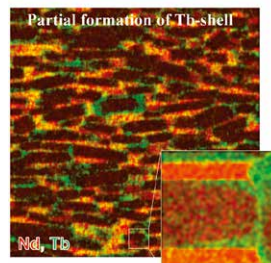
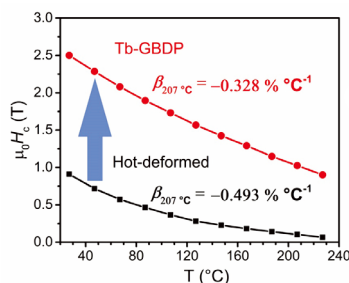
研究目標・成果

高保磁力、高残留磁化バルク磁石の創製

超微細結晶Nd-Fe-B磁石の試作と粒界エンジニアリング

Nd₆₀Tb₂₀Cu₂₀低温共晶合金を用いて熱間加工磁石の粒界拡散処理を行った結果、室温で保磁力2.5 T、残留磁化が1.38T、160℃で1.3 Tの保磁力を達成した。組織解析の結果、個々の粒子を取り囲む粒界相と、Tbリッチシェル組織の形成が確認され、保磁力向上に貢献したことが明らかになった。

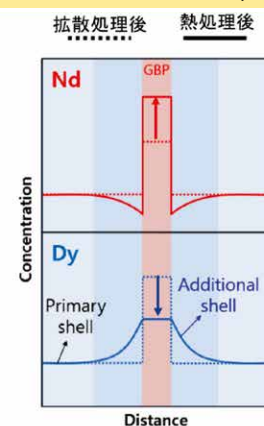
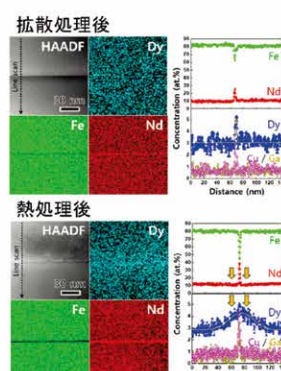
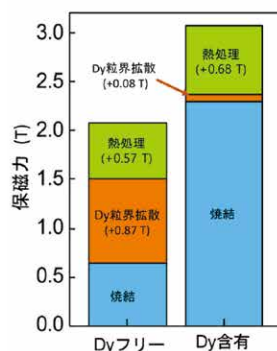
J. Li et al. Acta Mater. 161 (2018) 171.



Nd-Fe-B磁石の微細構造のマルチスケール解析

Dy粒界拡散処理を施した焼結磁石の微細組織を解析したところ、拡散処理とその後の低温熱処理によって、Nd₂Fe₁₄B相の表面付近で、2層のDyリッチシェルが形成することが、保磁力向上のキーポイントであることを明らかにした。

T-H Kim et al., Acta Mater. 172(2019)139.

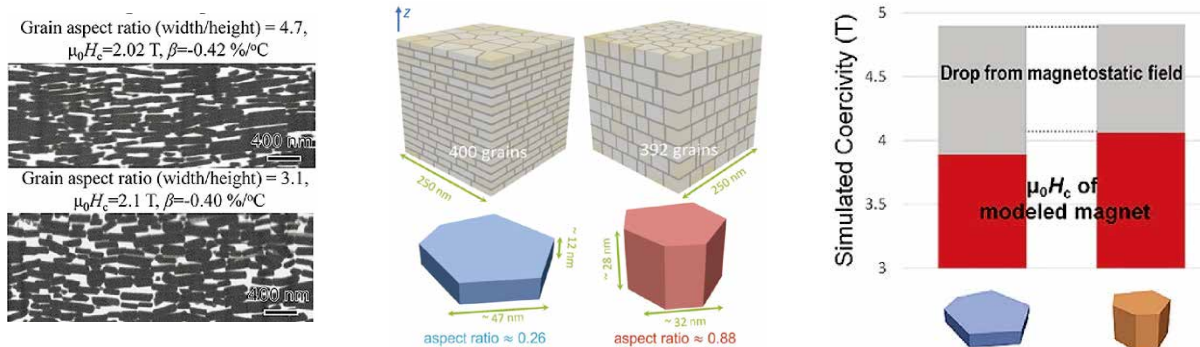


高保磁力化のための保磁力メカニズムに関する基礎研究

Nd-Fe-B磁石の磁化反転シミュレーションと動的観察

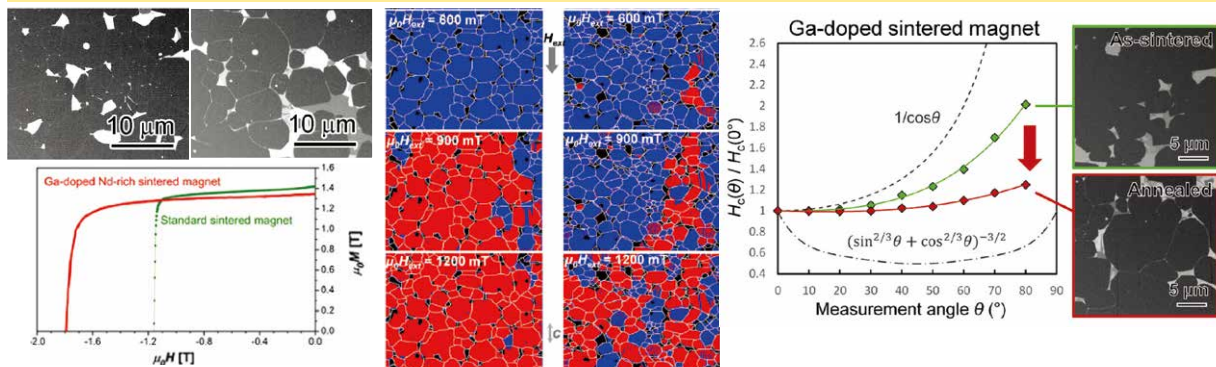
熱間加工磁石の微細構造をモデルとしたマイクロマグネティクスシミュレーションにより、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 結晶粒の形状が保磁力とその温度依存性に及ぼす影響を調べ、耐熱性に優れたネオジム磁石設計の指針を示した。

X. Tang et al. Acta Mater. 183 (2020) 408.



焼結後の熱処理により大きく保磁力が変化するGa添加Nd-Fe-B焼結磁石の、残留磁化状態から外部磁場印加による磁区像の変化を光磁気力効果顕微鏡で動的に観察した結果、最適化熱処理後に形成される非強磁性の粒界相により磁化反転挙動が磁壁のピンギングから核生成タイプに近づくことが確認された。その後の保磁力の磁界印加角度依存性から、粒間の磁気結合は完全には切断されていないことが判明、結晶粒の完全な磁気的分断によりさらに高保磁力化が可能であることを示した。

M. Soderznik et al. Acta Mater. 135 (2017) 68. J. Li et al. Acta Mater. 287 (2020) 66.



想定する分野・用途

- 電気自動車、風力発電、ドローンなど動作温度が上昇する応用での省希少元素高性能磁石

最終目標

- 産業界での高性能磁石開発に資する保磁力メカニズムと耐熱性に関する基盤研究
- Nd-Fe-B系磁石で、室温残留磁化1.4 T, 保磁力2.5 T, $\mu_0 H_c > 0.8 \text{ T}$ @160°C同時達成

産業界への要望

- Nd-Fe-B系磁石の高性能化のために解決しなければならない基盤研究ニーズの提供
- 保磁力メカニズム解明のために適した試料の提供

お問合せ つくば市千現1-2-1 物質・材料研究機構 E-mail : kazuhiro.hono@nims.go.jp

お問合せ



産学連携展開部 テーマ型研究グループ
(〒102-0076 東京都千代田区五番町7 K's 五番町)

TEL : 03-3238-7682

E-mail : [kyousou@jst.go.jp](mailto:kyousoou@jst.go.jp)

URL : <https://www.jst.go.jp/kyousou/theme/kc.html>