

研究代表者	小林 久理真（静岡理科大学 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

ネオジウム磁石微細試料（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）。

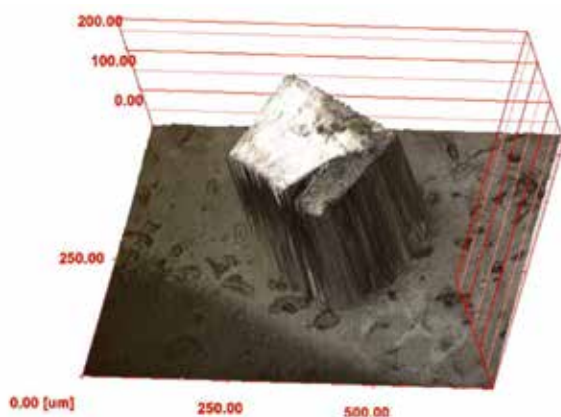


図1 レーザ顕微鏡によって算出した各辺長の測定結果（例）
（微細切断試料）

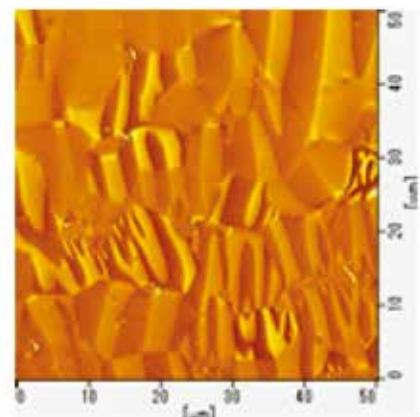


図2 新型MFMによるa-b面磁区画像

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。

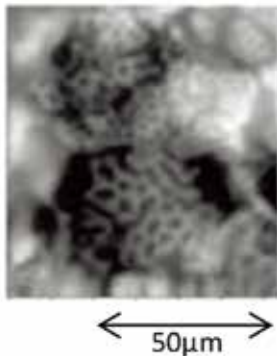


図3 SHPMによる磁区画像
(市販NdFeB磁石：c面磁区構造)

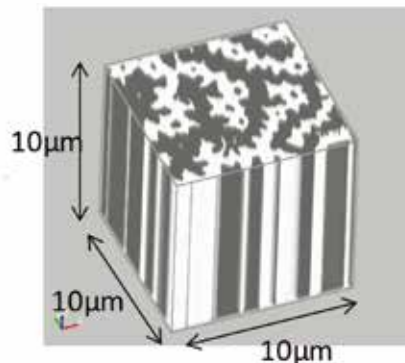


図4 Magdomによる磁区構造解析
(模式図)

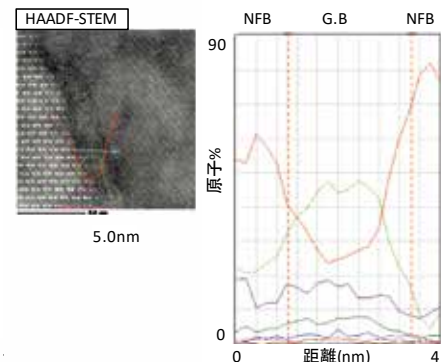


図5 Cs-TEMによるSD-SD及びSD-MD結晶粒界の
観察と解析結果
(着磁(単磁区)-未着磁(多磁区)粒子間)

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