

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 とともに最大値をとり、 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)

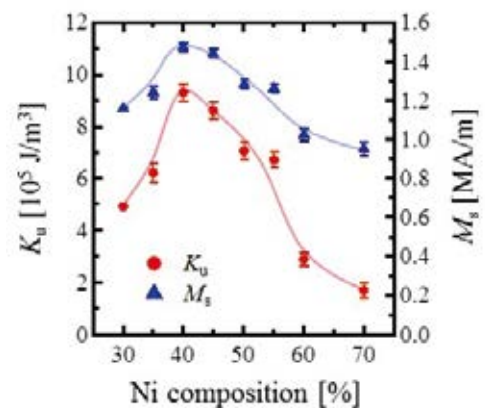


図1. Fe-Ni の組成を変化させた試料における飽和磁化 M_s および一軸磁気異方性エネルギー K_u .

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)

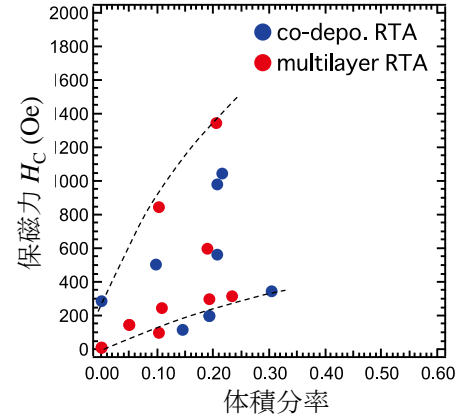


図2. スパッタ+RTA で作製した試料の $L1_0$ 規則相の体積分率と保磁力 H_c .

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