

## 産学共創基礎基盤研究プログラム 平成 30 年度中間評価結果

1. 研究課題名：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

2. 研究代表者：嶋 敏之（東北学院大学 工学部 教授）

### 3. 研究概要

高磁気異方性を有する Mn 系ホイスラー合金の Mn-Mn 間の距離を制御することにより、フェリ磁性からフェロ磁性へと変化させ、高飽和磁化および高磁気異方性 Mn 系磁性材料（飽和磁気分極  $> 1.5$  T、磁気異方性定数  $> 1$  MJ/m<sup>3</sup>）を開発することを目標とし、第一原理計算、薄膜技術、高静圧印加技術、合金作製技術を融合利用して目標達成を目指している。極めて高い目標を掲げており、実現すれば希土類金属フリーの新しい磁石の開発に繋がる可能性がある。

研究初期の段階において、Mn 間距離の 40% 程度の伸長あるいは数 % 程度の収縮によって D0<sub>22</sub> 型合金のフェロ磁性化が可能であることが第一原理計算で示された。これを受けて、化学的/物理的圧力を用いた格子収縮を行い、高飽和磁化・高磁気異方性を目的とした薄膜材料およびバルク材料の開発が進められた。

その後、第一原理計算によりフェロ磁性状態が安定となる正方晶逆ホイスラー型（正方晶 XA 構造）Mn 系合金が見出され、平成 30 年度からは、薄膜およびバルク合金作製技術を用いて、正方晶 XA 構造フェロ磁性 Mn 系合金の開発および第一原理計算を確認するための化学/物理圧力による格子収縮に基づく D0<sub>22</sub> 型合金のフェロ磁性化に研究ターゲットを絞って、研究が進められた。

### 4. 中間評価結果

#### 4-1. 研究の進捗状況及び研究成果の現状

第一原理計算においては、D0<sub>22</sub> 型の Mn 系合金を 8 % 程度体積膨張できれば、フェロ磁性を有する正方晶逆ホイスラー構造（正方晶 XA 構造）を持つ Mn 合金が存在することを見だし、この合金の飽和磁気分極、磁気異方性定数は、それぞれ、1.67 T と 2.12 MJ/m<sup>3</sup> と計算され、キュリー温度も 1047 K と見積もられることを示している。さらに、合金組成を変化させながら、立方晶 L2<sub>1</sub>、正方晶 L2<sub>1</sub>、正方晶 XA、fcc 構造の安定性を計算し、正方晶 XA 構造が最も安定となる合金を見だし、飽和磁気分極 1.63 T、磁気異方性定数 2.23 MJ/m<sup>3</sup>、キュリー温度 1049 K と計算している。これらの計算結果は、高飽和磁気分極、高磁気異方性、高キュリー温度を有する Mn 系合金開発の方向性を示す結果として高く評価できる。

上記正方晶 XA 構造 Mn 合金を実現するために、D0<sub>22</sub> 型 Mn 合金への軽元素添加（バルク）、D0<sub>22</sub> 型 Mn 合金における元素置換（バルク）、および多層膜成膜技術を利用した D0<sub>22</sub> 型 Mn 合

金への軽元素添加等の多くの実験が行われている。その中で、高飽和磁気分極を有する合金が発見されてはいるものの、いずれも低磁気異方性である。発見された高飽和磁気分極の合金の中にはその構造が明らかにされていないものもあるが、いずれも低磁気異方性であることから、目的である正方晶 XA 構造の合金は得られていないと考えられる。

格子収縮によるフェロ磁性化に関しては、軽元素置換と 10 GPa までの圧力印加により、 $Mn_3Ga$  を基準に約 14 % の格子収縮が実現されたが、フェロ磁性化を確認するには至っていない。

以上のように、第一原理計算では、フェロ磁性 Mn 系合金を得るための条件を明らかにするなど、高飽和磁気分極、高磁気異方性、高キュリー温度を有する Mn 系合金開発の方向性を示す結果が得られている。一方、フェロ磁性 Mn 系合金の実現のために、多くの実験が系統的に行われてはいるもののその実現には至っていない。

#### 4-2. 今後の研究に向けて

第一原理計算では、高飽和磁気分極、高磁気異方性、高キュリー温度を有する正方晶 XA 構造の Mn 系合金の存在が示されているので、その実現に向けて注力して頂きたい。現在までも系統的な実験が進められはいるが、得られた情報が飽和磁気分極等に限定されているものもあり、フェロ磁性 Mn 系合金実現に近づいているか明確ではない。目的の合金が正方晶 XA 構造を有することを考慮すれば、合金組成等の変化に応じた Mn 磁気モーメントの方向、結晶構造、磁気異方性の変化も極めて重要である。これらの情報も得ながら研究を進めることがフェロ磁性 Mn 系合金実現を加速すると考えられる。

正方晶 XA 構造の Mn 系合金実現に注力する観点から、格子収縮によるフェロ磁性化については、第一原理計算からフェロ磁性化が期待されるレベルの高圧力の印加が可能な場合限定して研究を進めて頂きたい。

なお、知的財産の確保にも配慮頂きたい。

#### 4-3. 総合評価及び研究継続の可否

##### 総合評価 B、研究継続 可（条件付き継続）

本研究課題では、フェロ磁性 Mn 系磁石合金の実現という非常に高い目標が設定されている。そのための方向性として、格子膨張、格子収縮を目指した後、XA 構造を有する Mn 系合金の創製を目的に、多くの系統的実験が行われたと評価する。一方で、現在の実験結果からは、 $DO_{22}$  型の Mn 系合金に対する軽元素添加、元素置換、成膜技術等の適用により、正方晶 XA 構造を有する Mn 系合金の創製に近づいているのか否かの評価が困難である。したがって、平成 31 年度上半期を目処に再評価を行うこととする。その評価に於いて「再評価以降の研究継続を可」とする条件は、

1. 正方晶 XA 構造が実現していること
2. 高磁気異方性が実現していること

とする。

なお、正方晶 XA 合金 の形成エネルギーは正であるとされているので、平衡状態での作製に対するハードルは高いと考えらる。この観点からは、薄膜技術の適用は有効であり、特に注力して研究を進めて頂きたい。

以上