

産学共創基礎基盤研究プログラム 令和元年度中間評価結果

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、高飽和磁化と高磁気異方性を併せ持つ Mn 系合金（飽和磁気分極 $> 1.5 \text{ T}$ 、磁気異方性定数 $> 1 \text{ MJ/m}^3$ ）を開発することを目標としている。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磁石の開発に繋がる可能性がある。研究では、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。

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_{22} 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／物理的圧力印加を用いた格子収縮による Mn 系ホイスラー合金のフェロ磁性化を目的とした、薄膜材料及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、薄膜及びバルク合金作製技術を用いた正方晶 XA 構造フェロ磁性 Mn 系合金の開発、及び第一原理計算を確認するための化学的／物理的圧力印加による格子収縮に基づく、 D0_{22} 型合金のフェロ磁性化に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

平成 30 年度中間評価時点で、第一原理計算においては、 D0_{22} 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 系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^3 、キュリー温度も 1047 K と見積もられることを示した。しかしながら、実験で正方晶 XA 構造 Mn 系合金が得られておらず、フェロ磁性 Mn 系合金と高磁気異方性の実現に向けて研究を行った。

この課題に対して、さらに、合金組成を変化させながら、立方晶 L2_1 、正方晶 L2_1 、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、安定性が保たれる組成範囲では、飽和磁気分極 1.28 T 、磁気異方性定数 2.0 MJ/m^3 、異方性磁界 2800 kA/m を超える特性が得られると計算している。これらの計算結果は、高飽和磁気

分極、高磁気異方性を併せ持つ 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 系合金を実現するために、バルク $D0_{22}$ 型 Mn 系合金での元素置換及び合金への軽元素添加、多層膜成膜技術を利用した $D0_{22}$ 型 Mn 系合金での元素置換など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 Mn 系合金を発見しているものの、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。

エピタキシャル成長により格子歪を導入した Mn 系合金薄膜では、膜厚を 1 nm まで減少させたときに、飽和磁気分極 1.38 T、磁気異方性 2.01 MJ/m³ を示唆する実験結果を得ている。しかしながら、当該薄膜では c 軸が膨張しており、XA 構造の実現には a 軸の膨張が必要との第一原理計算の結果とは一致していない。

化学的／物理的圧力印加を利用した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 を基準に僅かな格子膨張と約 14 % の格子収縮を実現し、格子膨張が磁気分極の増加を、収縮が磁気分極の減少をもたらすことを示しているが、フェロ磁性化には至っていない。

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、高磁気異方性を併せ持つ Mn 系合金開発の方向性を示す結果を得ている。一方、フェロ磁性 Mn 系合金の実現のために、多くの実験を系統的に行っているが、その実現には至っていない。

4-2. 今後の研究に向けて

高飽和磁気分極、高磁気異方性を併せ持つ正方晶 XA 構造の Mn 系合金の存在が第一原理計算で示され、当該合金の実現は新しい希土類フリー磁石開発に繋がる可能性を有している。今後もその実現に向けた努力を継続いただきたい。また、格子歪を導入した 1 nm 厚の Mn 系合金で、高飽和磁気分極と高磁気異方性を示唆する結果が得られたことも、新しい希土類フリー磁石に繋がる可能性を示しており、今後の研究進展に期待する。

4-3. 総合評価及び研究継続の可否

総合評価 B、研究継続 否

本研究課題では、フェロ磁性 Mn 系合金の実現という非常に高い目標が設定され、平成 30 年以降は、XA 構造を有する Mn 系合金の創製を目的に、多くの系統的实验が行われたと評価する。しかしながら、今回の中間評価に於いて「研究継続を可」とするための条件（平成 30 年度中間評価に於いて提示）、

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

が達成されていない。また、達成に向けた今後の計画も十分ではないことから、令和 2 年

度以降の「研究継続を不可」と判断した。

本研究課題では、フェロ磁性 Mn 系合金の実現に向けて、バルク材料と薄膜材料を対象に、多くの実験結果が得られている。残りの研究期間を利用して、実験結果を総合的に整理・解析し、将来に残すべき学術的知見を抽出するとともに、Mn 系合金の磁性に関する理解を深め、知的財産権の確保にも配慮いただきたい。その際は、アドバイザーに相談・助言に対応頂くようサポート体制を強化する。

これまでの研究を総括し、今後の研究戦略を立てることで、次世代の希土類フリー磁石開発へと繋がることを期待する。

以上