

走査型軟X線 MCD 顕微鏡によるネオジム焼結磁石の磁区観察

中村哲也^{*,**}, 小谷佳範^{*}, 広沢哲^{**}
 (*JASRI/SPring-8, **ESICMM/NIMS)

Development of soft X-ray MCD imaging technique under high magnetic field
 T. Nakamura^{***}, Y. Kotani^{*}, and S. Hirosawa^{**}
 (*JASRI/SPring-8, **ESICMM/NIMS)

緒言

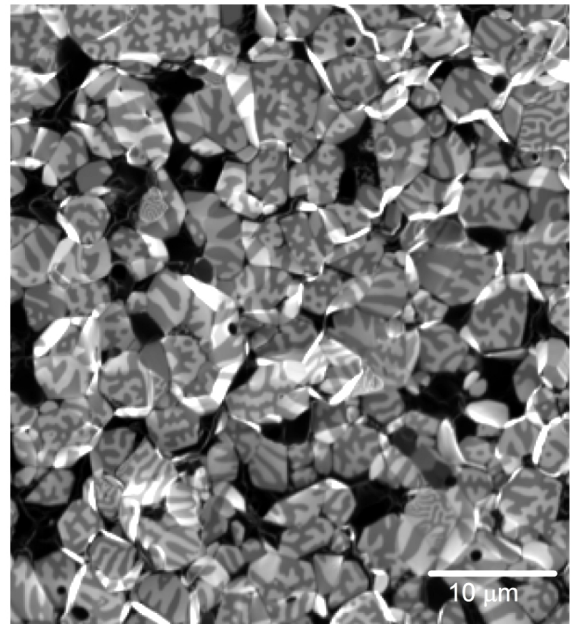
ネオジム永久磁石の研究において、磁区の磁場応答は、保磁力と微細組織の相関を解明するための主要な手掛かりである。特に、飽和磁化状態から残留磁化状態を経て磁化反転に至る過程の磁区変化は、保磁力機構を現象論的に理解する上で注目される。しかし、一般的な磁気顕微鏡では試料条件として平滑面を必要とするため、多くの場合に保磁力が著しく低下した研磨面を観察している。一方、大部分を粒界相で覆われた破断面では、表面であっても研磨面に比べて高い保磁力を維持することが知られている[1]。そこで本研究では、高い保磁力を維持する破断面に対して磁区の外部磁場変化を観察することが可能な走査型軟X線 MCD 顕微鏡を SPring-8 の BL25SU に整備した (MCD: Magnetic Circular Dichroism)。本講演では、装置概要、および、ネオジム焼結磁石の破断面に対する磁区観察結果について報告する。

方法

走査型軟X線 MCD 顕微鏡は、主に、位置調整機構付架台に同架した超高真空チャンバーと、チャンバー内部の軟X線集光光学系で構成される。軟X線集光レンズには、有効径が 310 μm で最外輪帯幅が 40 nm の FZP (Fresnel Zone Plate) を用いた。半値全幅が約 100 nm の円偏光軟X線集光ビームを走査し、全電子収量法による吸収測定を行い、MCD 効果を磁気情報として磁区像を得た。このとき、破断面の凹・凸に依存して合焦点からのズレを生じるが、ビーム径 ϕ 100 nm \sim ϕ 150 nm を許容した場合の焦点深度は約 10 μm であり、一般的なネオジム焼結磁石の平均粒径 5 μm の凹凸にも十分に対応することを確認している。

観察結果

右図は $\text{Nd}_{14.0}\text{Fe}_{79.7}\text{Cu}_{0.1}\text{B}_{6.2}$ 焼結磁石試料の破断面に対し、Fe L_3 吸収端 (707.9 eV) の左回り円偏光軟X線を入射して得た吸収強度分布である。横 45 μm 、縦 50 μm の領域を 150 nm ステップで走査した。濃い暗部は、Fe 濃度が低い Nd-rich 相に相当する。中間階調内のコントラストは軟X線 MCD 効果によるものであり、熱消磁状態の磁区に対応する。



謝辞

本研究の一部は、文部科学省の委託事業である元素戦略磁性材料研究拠点の支援を受けて行われました。また、本測定で用いた磁石試料は日立金属(株)様のご厚意によりご提供いただきました。

参考文献

[1] T. Nakamura *et al.*, Appl. Phys. Lett. **105**, 202404 (2014).

Nd-Fe-B 系焼結磁石の磁区構造と結晶組織の関係

永石 知也、森本 祐治、竹澤 昌晃
(九工大)

Relationship between magnetic domain structure and crystal structure of Nd-Fe-B sintered magnet

T. Nagaishi, Y. Morimoto, M. Takezawa
(Kyushu Institute of Technology)

はじめに

Nd-Fe-B 系焼結磁石の微細な結晶組織は、その保磁力に大きな影響を及ぼすことが報告されている¹⁾。この保磁力発現の原理を明らかにするため、結晶組織と磁区構造の因果関係を解明する必要がある。本研究では、Nd-Fe-B 系焼結磁石について、同一視野で磁区観察と結晶組織の観察を行い、その相関を調べることで微細な結晶組織が、その保磁力にどのような影響を及ぼすかを明らかにすることを目的とした。そのために、観察結果から磁化反転領域を抽出し、結晶組織との比較を行ったので報告する。

実験方法

観察試料は、保磁力約 14 kOe、残留磁束密度約 13.9 kG の Nd-Fe-B 系焼結磁石で、観察面の寸法は着磁方向の長さ 5 mm、幅 1.8 mm である。試料は樹脂に埋め込まれており容易軸方向と平行な観察面を鏡面研磨している。磁区観察には、Kerr 効果顕微鏡を用いた。まず試料を磁化容易軸方向に+20 kOe で着磁し、そこから印加磁界を 1 kOe ずつ減少させ-20 kOe まで変化させた際の磁化過程の磁区観察を行った。その後、磁化反転箇所を各磁界強度ごとに抽出し、着色を施した。この結果と同一視野の EBSD による結晶方位分布測定結果、及び EPMA による組成分布の測定結果との比較を行った。

実験結果と考察

磁化過程の観察結果を Fig.1、EBSD 測定結果と Nd の EPMA 測定結果を Fig.2 と Fig.3 にそれぞれ示す。Fig.2 に示す、c 軸が配向方向に揃っている濃い赤色の部分において、結晶粒が集団で磁化反転する傾向があることが分かった。すなわち、配向が良い箇所ほど、磁化反転およびその周辺への伝播が容易に発生する結果が得られた。

しかし、c 軸が配向方向からずれている薄い赤色の部分でも磁化反転は起こっている。この場合、Fig.2 内の黒色の箇所が磁化反転箇所の周辺に存在することが多かった。Fig.3 に示す EPMA との比較を行ったところ、Fig.2 での黒色で示される磁化反転箇所周辺の粒界相あるいは欠陥相と考えられる部分で Nd などの希土類元素の濃度が高く、さらに O の濃度も高くなっていることが確認された。このため希土類酸化物が存在する粒界相あるいは欠陥相部分は、磁化反転の起点となり磁化過程に影響を与えていることが分かった。

参考文献

- 1) 宝野和博、大久保忠勝、H. Sepehri Amin : 日本金属学会誌, **76**, 2(2012).

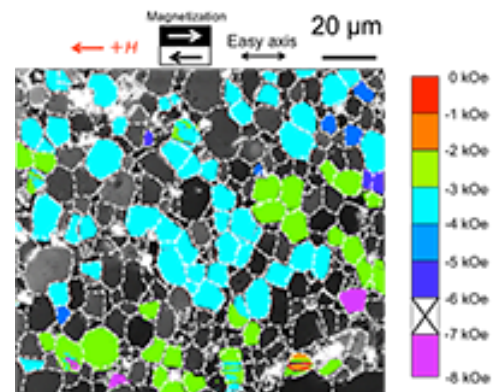


Fig.1 Magnetization reversal area at a the magnetization process.

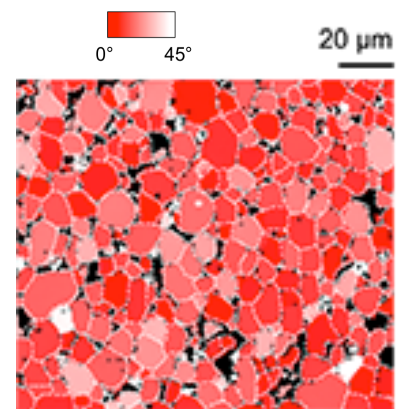


Fig.2 EBSD image.

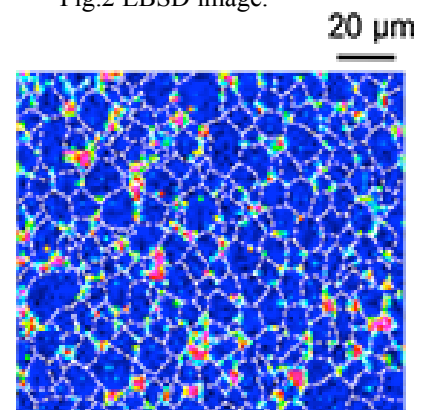


Fig.3 EPMA elemental map of Nd.

マイクロマグネティクスによる Nd-Fe-B 薄膜磁石の熱消磁状態の磁区構造解析

藤崎淳、古屋篤史、上原裕二、清水香老、安宅正、田中智大、大島弘敬*
(富士通株式会社、*株式会社富士通研究所)

Micromagnetic Simulation of Thermally Demagnetized Nd-Fe-B Magnet Thin-Films
J. Fujisaki, A. Furuya, Y. Uehara, K. Shimizu, T. Ataka, T. Tanaka, H. Oshima*
(Fujitsu Limited, *Fujitsu Laboratories Limited)

はじめに

近年環境問題への関心から、モータや発電機等に使用される永久磁石である Nd-Fe-B 磁石⁽¹⁾の高性能化への注目が高まっている。Nd-Fe-B 磁石の保磁力は磁化過程における反転核生成や磁壁のピンニング等に大きく依存し、またそれらは熱消磁状態や着磁状態での磁区構造に起因することが知られている。これまで Nd-Fe-B 磁石の特性に関して多くの数値シミュレーションが行なわれているものの、磁壁を詳細に取り扱った磁区構造の解析は今のところ十分にはなされていない。永久磁石の磁壁を表現する手法の一つとして、マイクロマグネティクスの手法がある。これは磁石内部を非常に細かい領域に分割し、その磁化状態を計算する手法である。ただし Nd-Fe-B 磁石では結晶粒径が数百 nm~数 μm である一方、磁壁厚さが 5nm 程度と薄いことが知られているため、磁壁を正しく扱うには 1nm 程度のメッシュ分割が必要となり、計算に用いるメッシュ数は非常に膨大になる。そこで我々は PC クラスタを用いた並列計算により、現実的な時間内での大規模シミュレーションを可能にした。今回は Nd₂Fe₁₄B 薄膜磁石における熱消磁状態を計算し、その磁区構造について考察を行う。

計算手法

本シミュレーションでは各磁化ベクトル \mathbf{m} について以下の Landau-Lifshitz-Gilbert(LLG)方程式⁽²⁾を解き、その磁化状態を求める。

$$(1 + \alpha_G^2) \frac{\partial \mathbf{m}}{\partial t} = -\gamma (\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}) - \gamma \alpha_G \mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}), \quad \mathbf{H}_{\text{eff}} = \mathbf{H}_{\text{app}} + \mathbf{H}_{\text{ani}} + \mathbf{H}_{\text{exc}} + \mathbf{H}_d,$$

$$\mathbf{H}_{\text{ani}} = \frac{2K_u}{\mu_0 M_s} (1 - \mathbf{k} \cdot \mathbf{m}) \mathbf{k}, \quad \mathbf{H}_{\text{exc}} = \frac{2A}{\mu_0 M_s} \nabla^2 \mathbf{m}, \quad \mathbf{H}_d = -\nabla U, \quad \nabla^2 U = \nabla \cdot (M_s \mathbf{m}),$$

ここで \mathbf{H}_{eff} は有効磁界、 α_G はダンピング定数、 γ はジャイロ磁気定数、 \mathbf{k} は異方性ベクトル、 K_u は異方性定数、 μ_0 は真空透磁率、 M_s は飽和磁化、 A は交換結合定数、 U は静磁ポテンシャルである。

計算結果

Fig. 1 に今回の計算の一例を示す。これは大きさ 960 nm × 960 nm × 30 nm の Nd₂Fe₁₄B 薄膜磁石モデル (要素数 5000 万) を用いて、PC クラスタにて 1500 コアを用いた並列計算を行った結果である。初期の磁化ベクトルを z 軸方向に上下ランダムに設定し、外部磁界をゼロに保った状態で磁化変化が収束するまで計算を行った。Fig. 1 は熱消磁状態の磁化を可視化したものであり、+z 方向を向く磁化ベクトルを赤色で、-z 方向の磁化ベクトルを青色で表現している。この例では、迷路磁区とバブル磁区が入り混じった複雑な多磁区状態が得られた。当日は、多結晶磁石や他の形状の磁石モデルも含めて、それらの計算結果について報告する。

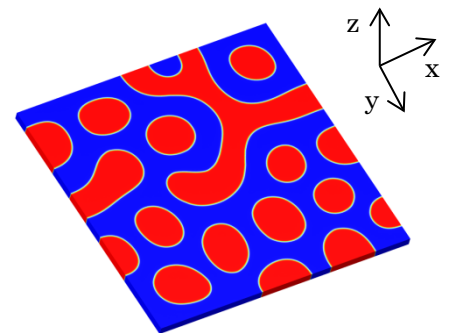


Fig.1 Thermally demagnetized state of Nd₂Fe₁₄B magnet thin-film in the micromagnetic simulation

参考文献

- 1) M. Sagawa, S. Fujimura, M. Togawa, H. Yamamoto and Y. Matsuura: J. Appl. Phys. 55 (1984) 2083
- 2) H. Kronmüller and M. Fähnle, "Micromagnetism and the Microstructure of Ferromagnetic Solids", Cambridge University (2003)

Dy フリー異方性 NdFeB 磁粉を用いた

高耐熱性、高磁気特性を有する射出成形ボンド磁石の開発

新宅雅哉、野口健児、三嶋千里、御手洗浩成
(愛知製鋼株式会社)

Development of Dy free NdFeB anisotropic injection molding magnet with high heat resistance and high magnetic properties

M.Shintaku, K.Noguchi, C.Mishima, H.Mitarai
(Aichi Steel Corporation)

はじめに

NdFeB 異方性ボンド磁石は 160kJ/m^3 の高い磁気特性と優れた形状自由性を有しており、これらの特性を活かして、モータの小型・軽量化に貢献してきた⁽¹⁾。NdFeB 焼結磁石では、通常 Dy を添加することによって耐熱性を付与させているが、三嶋らは d-HDDR 処理後の NdFeB 磁石粉末に NdCuAl 合金粉末を混合し、高温で粒界拡散処理することによって耐熱性(高 iHc)の獲得に成功している⁽²⁾。磁石成形方法としては高密度化が可能な圧縮成形法と、複雑形状と一体成形が可能な射出成形法が知られている。射出成形磁石では、主に PA12 と PPS がマトリクスとして使用されるが、車載用等の耐熱性が要求されるモータ等には高融点を有する PPS のみが適用可能である。しかし、PPS では磁気特性が不十分であるため、適用が難しく、この点が NdFeB 異方性ボンド磁石の普及の障害の一つであった。今回は、磁気特性と耐熱性を併せ持つことが可能な熱可塑性樹脂として、PA66 をマトリクスとして用いた異方性ボンド磁石を開発したので、報告する。

実験

d-HDDR 処理後、NdCuAl を高温で粒界拡散処理することによって得られた NdFeB 異方性磁粉を 6.5wt% の PA66、20wt% の SmFeN 磁石粉末と混合し、その後、二軸混練機で混練することによってコンパウンドを作製した。さらにこれを金型キャビティに 1.8T の配向磁場を印加しながら射出成形することによって、ボンド磁石を得た。得られたボンド磁石は 4.0T で着磁後、直流 BH トレーサーを用いて磁気特性の測定を行った。

結果

図 1 に PA12、PPS、PA66 を用いて作製したボンド磁石の減磁曲線を示す。PA12 を用いた磁石は 8.7kG と高い Br を有しているが、PA12 の融点が 180°C であるため、使用可能温度は 120°C までとなっている。一方、PPS を用いた磁石は 7.4kG と Br が低くなっているが、PPS の融点が 280°C と非常に高いため 150°C の環境まで耐えることが可能である。最後に PA66 を用いた磁石は、Br が 8.3kG と PPS よりも 12% 高くなっている。また、PA66 の融点は 260°C であるため、PPS と同様で使用環境は 150°C まで可能である。当日は樹脂選定の背景、ロータに磁石をインサート成形したときの Flux 値についても、併せて報告する。

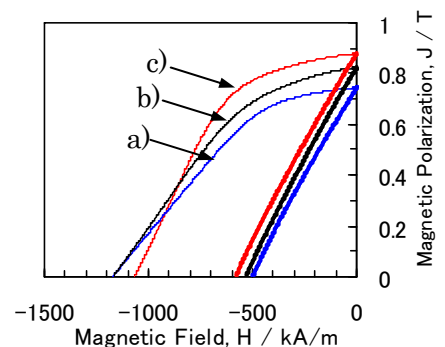


Fig.1. Demagnetization curve of various binder resin as a) PPS, b) PA66 and c) PA12

この成果は独立行政法人新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)の委託業務の結果得られたものです。

参考文献

- 1) Y.Honkura, Proceeding of 19th International Workshop on Rare Earth Permanent Magnets and Their Application, Beijing, CHINA 2006, pp. 231-239.
- 2) C.Mishima, K.Noguchi, et.al. Proceeding of 21st Workshop on Rare Earth Permanent Magnets and Their Application, Bled Solvenia 2010, pp. 253.

Nd-Fe-B 系 HDDR 粉末の磁気特性に及ぼす Pr 置換の影響

片山信宏、金子翔平、重岡都美、森本耕一郎
(戸田工業株式会社)

Influences of Pr substitution on magnetic properties of Nd-Fe-B HDDR powder

N. Katayama, S. Kaneko, K. Shigeoka, K. Morimoto
(Toda Kogyo Corp.)

はじめに

Dy フリーの Nd-Fe-B 系 HDDR 粉末に高保磁力を発現させる方法として、Nd-Cu や Nd-Al などの低融点共晶合金を粒界拡散させる方法¹⁾や原料合金に Al を添加し HDDR 条件を制御する方法²⁾が報告されている。しかしながらこれらの方法は、保磁力(H_{cj})を増大させると残留磁束密度(B_r)の減少を招くという問題点があった。著者らは、Nd 系磁性相とほぼ等しい飽和磁化(I_s)と 30%程度高い異方性磁界(H_a)をもつ Pr 系磁性相に着目し、Nd の一部を Pr で置換して粉末の磁気特性を調べた。その結果、粉末の B_r の低下を抑えながら約 18kOe まで H_{cj} の改善が可能であることを確認したので報告する。

実験方法

Nd-Pr-Fe-Co-B-Ga-Zr 系合金を作製し、均質化熱処理後、水素吸蔵崩壊及び機械粉砕を行って粒径 150 μ m 以下の合金粉末とした。この粉末に既報の HDDR 処理²⁾を施し磁性粉末を得た。粉末の磁気特性は振動試料型磁力計により測定し、微細組織は FE-TEM により観察した。

実験結果

Fig. 1 に Pr 置換量を変化させて得た HDDR 粉末の磁気特性を示す。Pr 置換量の増加により、粉末の B_r をほぼ一定に保ちながら、 H_{cj} を 3.0at%Pr で 11%、5.2at%Pr で 18%まで増大させることができた。この H_{cj} 向上率は、Pr 置換量から予想される磁性相の H_a 増大率より大きく、保磁力増大には金属組織的要因もあることが示唆された。Fig. 2 には Pr 量が 0 及び 5.2at% の粉末の TEM 像を比較して示す。再結合磁性相結晶粒間の薄い Nd-rich 相の厚さが Pr 置換により増加しており、このことが H_{cj} 向上に寄与していると考えられる。学会の際には得られた粉末の射出成形ボンド磁石の諸特性についても報告する。

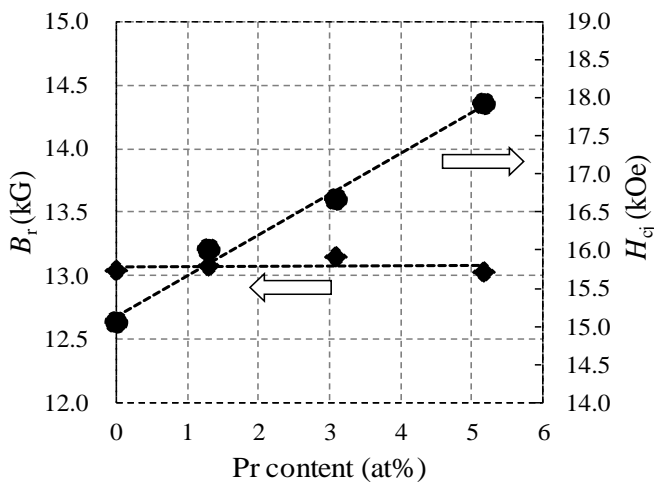


Fig. 1 Pr content dependence of magnetic properties for the HDDR powder.

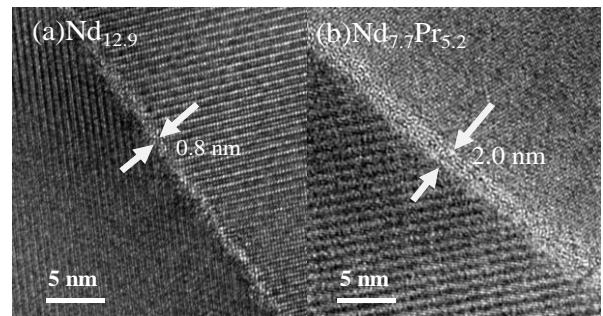


Fig. 2 FE-TEM images of the HDDR powders with Pr content of 0at% (a) and 5.2at% (b).

参考文献

- 1) H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo, T. Nishiuchi, S. Hirosawa, K. Hono: Scripta Mater. 63 (2010) 1124
- 2) N. Katayama, K. Morimoto, H. Akamine, and M. Itakura, Proceedings of the 22nd International Workshop on Rare-Earth Permanent Magnets and Their Applications, 2012, pp. 221-224.