

MH loop Modeling of NdFeB Anisotropic Bonded Magnet

F. Akagi and Y. Honkura*,
(Kogakuin Univ. , *Magnetdesign Corp.)

1. Introduction

The NdFeB anisotropic bonded magnet is one of the most important permanent magnets. It enables the achievement of complex shapes and is superior in strength to other magnets¹⁾. Therefore, it is useful for motors of hybrid vehicles (HV) and electric vehicles (EV), which are in demand because of their smaller size and higher-speed rotation. However, we are concerned about its demagnetization, which is called “magnetic fatigue”²⁾. We expect that the magnetic fatigue is caused by a high frequency field of 0.5 kOe at 10 kHz, a DC reverse field from 3 to 4 kOe, and a high temperature over 400 K. In our previous study, we showed that when the anisotropy field (H_k) of a grain-surface is lower than that of a main phase, the coercivity field H_c is much lower than H_k . However, the MH loop did not fit an experimental value.

In this study, the standard deviations of c-axis orientation distribution (σ_{C-axis}) and H_k distribution (σ_{Hk}) were investigated to fit the experimental MH loop of an NdFeB anisotropic bonded magnet.

2. Micromagnetic simulator

In this simulation, a one-grain model was assumed for the MH loop modeling of an NdFeB anisotropic bonded magnet¹⁾. A dynamic magnetic reversal process was calculated by using the Landau-Lifshitz-Gilbert equation as follows.

$$\frac{dM}{dt} = -\gamma(M \times H_{eff}) + \frac{\alpha}{M_s} \left(M \times \frac{dM}{dt} \right) \quad (1)$$

M is the magnetization, and M_s is the saturation magnetization. H_{eff} is the effective field, which is summed up as an external field, a static field, an anisotropy field, and an exchange field. γ is the gyromagnetic ratio, and α is the damping factor.

The one-grain model is shown in Fig. 1. The grain was divided into $16 \times 16 \times 16$ hexagonal prism cells, and each cell was 2 nm in diameter and 2 nm high. The grain was assumed to have a low H_k surface, which was painted grey in Fig. 1. The surface layer was 2 nm wide. The M_s was 1.61 T, the intercell exchange energy was assumed to be 0.5×10^{-11} J/m, and the damping constant was 1.0 at room temperature. The c-axis represented the perpendicular direction (z-axis direction) and changed from 0 to 3° every 1°, and the anisotropy constant K_u changed from 0.8 to 7.0 MJ/m³ every 0.2 MJ/m³ to fit the experimental MH loop of the NdFeB anisotropic bonded magnet. First, MH loops were calculated with every combinations of c-axes and K_u values. Next, each magnetization was multiplied by the constant in accordance with a statistical probability. Last, all magnetizations were summed up, and the MH loop modeling was completed.

3. Results and discussions

Fig. 2 shows the comparison of MH loops between simulations and the experiment. The experimental data was for magnetic particles of the NdFeB bonded magnet³⁾. For the simulation, the $\sigma_{Hk}/\langle H_k \rangle$ was 10 and 30 % when the σ_{C-axis} was 1°. Here, H_k is defined as $2K_u/M_s$. $\langle H_k \rangle$ was the average H_k , and the main phase $\langle H_k \rangle$ was 6077 kA/m. The H_k of the surface layer was 0.135 times lower than the main phase. From this result, the experimental MH loop fit the simulation loop for $\sigma_{Hk}/\langle H_k \rangle$ of 30 %. Therefore, the NdFeB bonded magnet is predicted to have a large distribution of H_k and a low distribution of c-axes.

Acknowledgments

We thank Dr. Mishima of Aichi Steel Corporation for his advice on the experimental bonded magnet. We also thank Hitachi Corp. for providing us with the use of this simulator.

References

- 1) Y. Honkura, Proceeding of 19th International Workshop on Rare Earth Permanent Magnets and Their Application, Beijing, CHINA 2006, p.231.
- 2) F. Akagi and Y. Honkura, Proceeding of 38th Annual Conference on MAGNETICS in Japan, Symposium "Magnetic materials used for high speed motors," 4aB-6, 2014.
- 3) <http://www.magfine.net/magfine/images/MAGFINE%20CATALOG%20A4%20ENG%20BACK.pdf>.

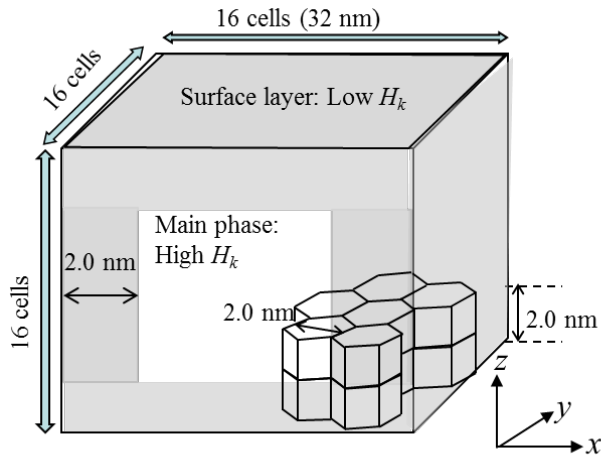


Fig. 1 Structural model of one grain.

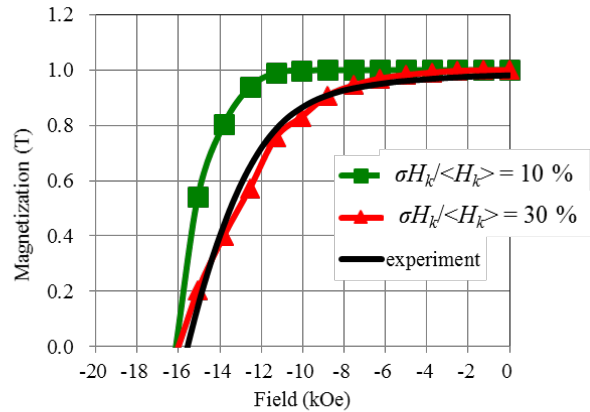


Fig. 2 Comparison of MH loops between experiment and simulations.

Behavior of a permanent magnet used for the high efficiency motor under the high frequency magnetic field

C.Mishima¹, T. Ariizumi², Y.Honkura³

(1 Aichi Steel. Corp. 2 TOEI INDUSTRY CO.LTD, 3 Magnedesign Corporation.)

The development of high efficiency motors is accelerating as energy problems become more serious. Many magnetic materials are used in high efficiency motors, and the demands on the properties of the magnetic materials are changing greatly by the use of power electronics¹⁾.

For example, in soft magnetic materials such as electrical steel, increases in iron losses of 20% to 60% caused by the inverter excitation have been reported¹⁾.

On the other hand, with hard magnets such as permanent magnets, the eddy current loss on the surface of the magnet cannot be neglected as the electric resistivity of rare earth sintered magnets is very low in comparison with ferrite sintered magnets.

As a result, the measurement and numerical analysis of losses under AC magnetic fields based on NdFeB sintered magnets has been studied^{2), 3)}.

With recent high speed motors, larger magnetic fields are applied to the magnet and the frequencies of those fields are higher, and as a result the problem of magnet losses will become more important.

We have manufactured a device to study the magnetic properties in a high AC magnetic field. With the device, we studied the magnetic properties of Nd sintered magnets, anisotropic bonded magnets and ferrite magnets.

The results show that while there is a large delay in the magnetization of Nd sintered magnets, this delay was small in Nd bonded magnets and the ferrite magnets.

This may be attributed to electrical resistivity.

However, it was difficult to perform the comparison of magnetic properties in high AC field with the normal BH tracer, because it was not possible to express the AC hysteresis with a magnetic unit.

This time, we have succeeded in expressing hysteresis with a magnetic unit.

Furthermore, we are remodeling the device to allow high frequency measurements while applying a static magnetic field to the magnet.

In this report, we report the outline of the device and results of a measurement.

Reference

- 1) K.Fujisaki : IEE Japan, MAG-13-149
- 2) K.Itoh, Y.Hashiba, K.Sakai, T.Yagisawa : T.IEE Japan, Vol.118-A (1998) p.182
- 3) K.Yamazaki, A.Abe: T.IEE Japan, Vo.127-D (2007) p.87



Fig.1 Experimental Apparatus

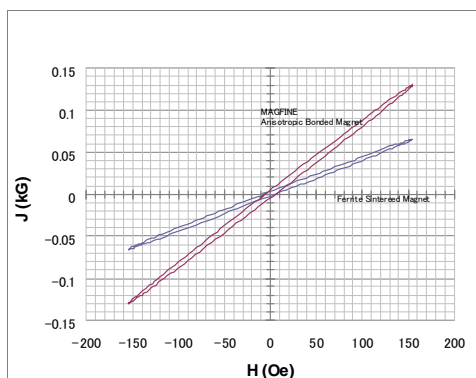


Fig.2 Minor loops in a high frequency magnetic field

Future Trend of Electrical Motor Drive System

Keisuke Fujisaki
(Toyota Technological Institute)

Electrical motors are used more than one-hundred years ago. At first DC motor was used because of battery power source¹⁾. After electrical power network was distributed as AC, AC electrical motors were driven by constant frequency and constant voltage such as 50 Hz or 60 Hz. So they were mainly used in fan, blower and compressor to give some force to water or air in water and sewage plant or so. They are considered to support the industrial revolution in modern society. However, the applications were limited in almost constant force or constant rotation speed condition, and the rotational speed control is difficult to be realized in high efficiency because of electrical power source problem. Power electronics technology²⁾ solves the problem. It makes it possible to realize the variable rotational speed efficiently^{3, 4)}. The variable speed requires the change of voltage and frequency of supplied electrical power source because of the electrical motor theory. The rotating speed should be controlled to be the same as the traveling speed of magnetic field in the stator core, which is decided by supplied frequency. When the frequency increases, supplied voltage should increase because of the Faraday's law of induction. By means of the power electronics technology, variable voltage and frequency are possible to be realized efficiently, and then electrical energy is used widely⁵⁾. Power device is used in it as a switching operation, which makes a high efficient electrical power conversion because voltage or current becomes zero and then the power loss becomes almost zero. Figure 1 shows the inverter circuit, a kind of power electronics technology, and IPM motor. The variable voltage is realized by changing the pulse-width and the variable frequency is realized by changing the pulse-timing in the output voltage as shown in Fig. 2. Then the electrical motor drive system is realized in transportation system such as electrical vehicle, hybrid ship or electrical airplane. Now is considered to be the second stage of electrical motor application. The closed connection between the electrical motor and the power electronics technology is indispensable. So their total system design is required as shown in Fig. 3 because each technology in the motor drive system is usually based on the different background⁶⁻⁸⁾.

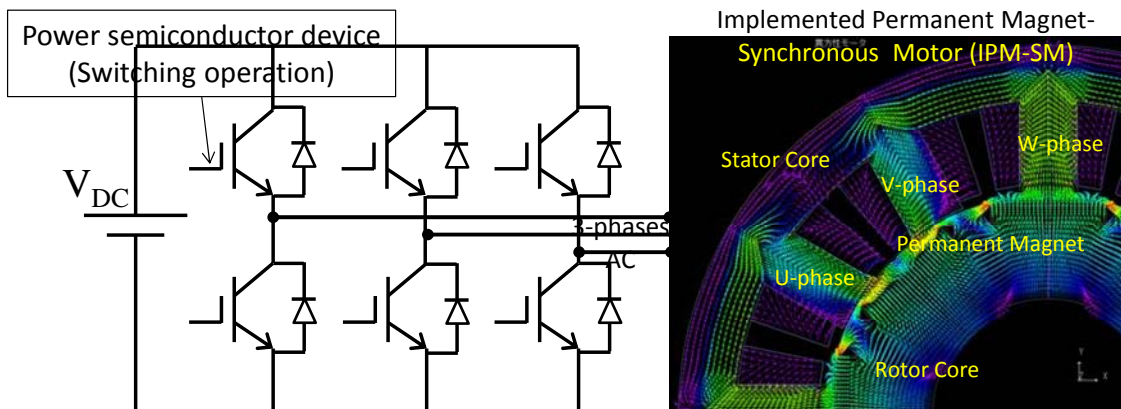


Fig. 1 Electrical motor drive system for speed control of electrical motor by power electronics technology.

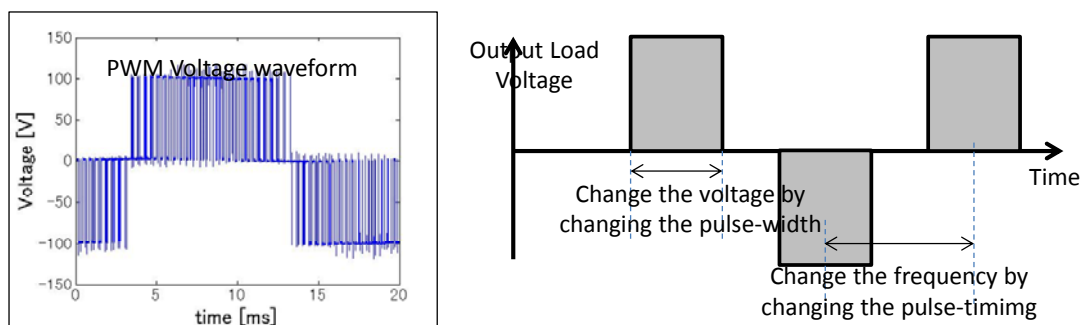


Fig. 2 Variable voltage and variable frequency realization by switching operation of power semiconductor device.

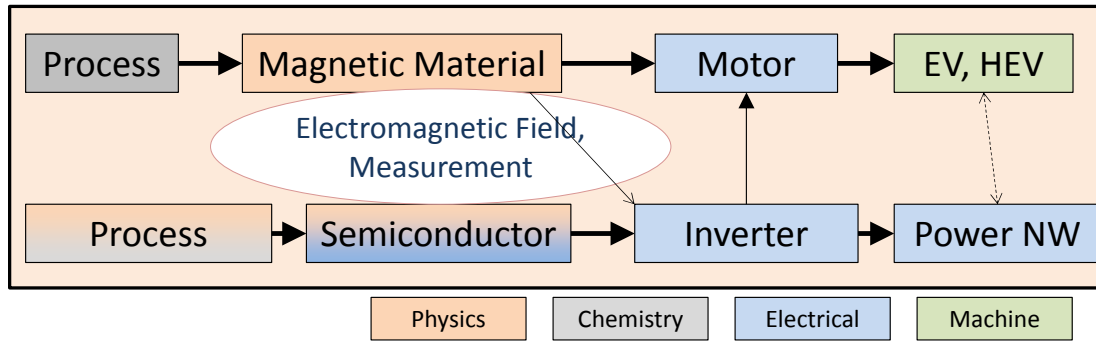


Fig. 3. Elementary technologies of motor drive system in electrical motor and power electronics.

The motor drive system usually moves with the vehicle in the transportation system. So there is a requirement for the downsizing and weight reduction of drive system. Because of electrical motor theory, the high rotational speed and then the high frequency operation are demanded in motor drive system as well as magnetic material⁸⁾. Usually electrical power of motor (P) is shown as

$$P = \omega T$$

Here, ω is rotational angle velocity, and T is electrical torque. Since magnetic saturation of magnetic material is usually limited as 2 [T] or so, the torque per unit volume is said to be almost constant. Maxwell stress's law shows that electrical force is proportion to the square of magnetic flux density. So in order to increase the electrical power, the increase of rotational speed is required.

However, the high frequency demand derives some new problems to be solved; 1. Increase of supplied voltage (extra step-up converter is required), 2. Increase of mechanical gear, 3. Bearing problem for high rotation, 4. Increase of iron loss of the motor, 5. Increase of centrifugal force of the rotor (high tensile strength steel superior to magnetic property is required).

Direct drive system is considered to be another trend for high rotational speed and high frequency. Electrical motor directly rotates the wheels. So it has superior characteristics as; 1. Low voltage, 2. Gear less or so, 3. No bearing problem, 4. Iron loss reduction, 5. Centrifugal force reduction. Vehicle weight is reported to deduce more than 30%. Which system is better is not now decided. But magnetic material is considered to be a key technology for future vehicle, because it is used not only in electrical motor but also in power electronics circuit⁹⁾.

Table 1 EV comparison of high speed and direct drive

	High Speed	Direct Drive
Electrical motor size	Small	Large
Supplied voltage	Large	Small
Mechanical gear	Large	Small
Mechanical bearing	Difficult	Easy
Iron loss	Large	Small
Centrifugal force	Large	Small
Drive shaft	Large	Small

Reference

- 1) Gee, William (2004). "Sturgeon, William (1783–1850)". *Oxford Dictionary of National Biography*. Oxford, England: Oxford University Press.
- 2) Robert W. Erickson, Dragan Maksimovic "Fundamentals of Power Electronics, second edition," Kluwer Academic Publishers, 2001.
- 3) K. Fujisaki, "Advanced magnetic material requirement for higher efficient electrical motor design," The 38th Annual Conference on Magnetics in Japan, Symposium "Challenge of Magnetics to Improve Energy Efficiency", 4aB-2, 2014.9
- 4) K. Fujisaki, "Electrical Energy and Magnetics," The 37th Annual Conference on Magnetics in Japan, Symposium "Challenge of Magnetics to Improve Energy Efficiency", 6pB-2, 2013. 9
- 5) Keisuke FUJISAKI, "Energy Management in Industry," The Journal of The Institute of Electric I Engineers of Japan Vol. 133(2013) No. 12, pp.821-824, 2013. (in Japanese)
- 6) K. Fujisaki, "Required Magnetic Property for Energy Magnetic Material," Oct.29-31, 2014, 3rd International Conference of Asian Union of Magnetics Societies (IcAUMS), A1-03, 2014.10.
- 7) K. Fujisaki, "Necessity and problem of Magnetic Material for Electromagnetic Actuator System," S22(1)-S22(4), Vol. 5, Annual Meeting of IEEJ, 2015.3. (in Japanese)
- 8) Yoshinobu HONKURA, Keisuke FUJISAKI, "Development on Recent Magnetic Material," The Journal of The Institute of Electrical Engineers of Japan Vol. 134(2014) No. 12, pp.828-831, 2014. (in Japanese)
- 9) K. Fujisaki, "Relation between future magnetic materials and power electronics technologies", The 202st Topical Symposium of the Magnetic Society of Japan, 2015.5. (in Japanese)

Hysteresis Model and Eddy Currents in FEM Analysis

Fumiaki Ikeda
Photon Co., Ltd.

Highly accurate analysis of magnetic fields requires faithful reproduction of the magnetization characteristics of magnetic materials. In the thermodynamic hysteresis model found in our last proposal to achieve such an analysis, the magnetization characteristics in three dimensions are determined by free energy and their history dependence is assumed to be associated with friction and other irreversible processes. The hysteretic magnetic field corresponding to friction determines the coercivity of a magnetic material. Application of the variational method to the thermodynamic potential not only enables us to formulate finite elements for numerical analysis, but also offers the advantage of simpler handling of spontaneous magnetization and hysteresis as compared to the conventional FEM analysis based on the weighted residual method. This model assumes a static nature of magnetic materials. The validation was made by extrapolating the static behavior of hysteresis based on the frequency characteristics of the measured data. However, in reality magnetic materials are generally subject to dynamic magnetic fields. Such dynamic elements must be introduced to the model in order to express the dynamic nature of the hysteresis.

The actual dynamic characteristics of a magnetic material are largely influenced by eddy currents, which are divided into two types. The first are macroscopic eddy currents by induced electromotive force from variable magnetic fields. The second are eddy currents caused by displacement of a domain wall (i.e., an interface separating domains), which does not affect the magnetic field at the macro level while contributing to the loss of the magnetic material.

Similar to the ordinary analysis of dynamic magnetic fields, the effects of the former type of eddy currents can be taken into account in FEM or other numerical methods designed for analyzing macroscopic phenomena when the electric conductivity of a target magnetic material is given.

Nevertheless, the latter type of eddy currents occurs within one domain at most. It is difficult for FEM to take these effects into account without any modification. For this reason, a model needs to be devised for expressing such a phenomenon on a macro scale.

Accordingly, an attempt was made to devise a necessary macro model by performing theoretical calculation of domain wall displacement in a simple one-dimensional model. The study proved that eddy currents do not manifest themselves on a macro scale and only negligibly influence the field distribution in a small domain as most of them cancel out each other.

Therefore, in a small domain the loss associated with this type of eddy currents can be evaluated by post-processing of the results of an analysis that ignores these currents. In a larger domain toward more macro scale, effects of these eddy currents are no longer negligible and must be taken into account during the analysis.

In some cases, conducting FEM analysis with macroscopic eddy currents is met with difficulties, as is the case with laminated electrical steel sheets. In order to make such an analysis possible, preliminary research was carried out as a part of necessary systematic research.

High density soft magnetic composite core of nanocrystalline FeSiBPCu alloys

A. Urata¹, Y. Kanamori¹, M. Yamaki¹, K. Okamoto¹, S. Sato¹, N. Nakamura², M. Nakaseko² and Y. Ozaki²

¹NEC TOKIN Corporation, Advanced Materials Research & Development Division, 7-1 Koriyama 6-chome, Taihaku-ku, Sendai 982-8510, Japan

²JFE Steel Corporation, Steel Research Laboratory, Iron Powder & Magnetic Materials Research Department, 1 Kawasaki-cho, Chuo-ku, Chiba 260-0835, Japan

Recently, growing concern about the global environmental and energy issues, the next generation vehicles (HEV, EV and FCV) and renewable energy (solar photovoltaic and wind generation) have been developed and become popular throughout the world. Therefore, down-sizing, high efficiency, and high power are demanded for those motor and power supply parts. As one of the candidate to meet the demand is a soft magnetic composite core manufactured by press forming process using soft magnetic alloy powder coated with insulating resin. There are several advantages of these cores, such as 3-dimensional magnetic isotropy, high flexibility of core design, high efficiency by reduction of eddy current loss and, low cost by a near net shape manufacture process. So, we have developed a composite core with high packing density and low loss using new high B_s nanocrystalline alloy powder produced by a high packing density forming method. In this paper, we have investigated magnetic properties of toroidal soft magnetic nanocrystalline composite cores and clarified the possibility of using high packing density nanocrystalline composite cores for high performance applications.

The base powder consists of FeSiBPCu nanocrystalline alloy powder with nearly 50 μm in median particle diameter and silicone resin of 2 wt% for electrical insulator and binder between the particles. The toroidal cores were formed by our method. Core loss at 400 Hz was evaluated by AC-BH curve tracer. Nanocrystalline structures were examined by X-ray Diffraction (XRD) with Cu- K_α radiation and analyzed by whole-powder-pattern decomposition method (WPPD).

Fig.1 shows the photo image of a nanocrystalline toroidal composite core of 56 mm in outer diameter 36 mm in inner diameter and 7 mm in thickness. In general, nanocrystalline alloy shows high hardness and it is difficult to high packing density forming. On the other hand, this composite core has high packing density of 83.4 %, as compared with normal press core of about 70 % in packing density.

Fig.2 shows the core loss at 400Hz of the nanocrystalline composite core as a function of maximum induction (B_m). The data of an Fe-Si composite core and non-oriented magnetic steel are also shown for comparison. The core loss at 400 Hz-1.0 T of the nanocrystalline composite core is 9.8 W/kg, corresponding to one-fourth of that of Fe-Si composite core, and superior to non-oriented magnetic steel²⁾.

Fig.3 shows the XRD patterns of the nanocrystalline composite core. The core consists of α -Fe grains of about 30 nm in diameter estimated by WPPD. As a result, the magnetocrystalline anisotropy³⁾ and magnetostriction⁴⁾ of this alloy are reduced, and the nanocrystalline core exhibits excellent magnetic properties.

In conclusion, the soft magnetic composite core with high packing density and nanocrystalline structure shows low core loss and large core B_s and is suitable for high performance next generation magnetic devices.

This work was supported by the NEDO project "Developing high-performance magnetic materials in pursuit of high-efficiency motors".

Reference

- 1) A. Makino, H. Men, T. Kubota, K. Kubota and A. Inoue, Mater. Trans., **50** (2009) 204.
- 2) K. Sadahiro, S. Gotoh and S. Uenosono, JFE TECHNICAL REPORT, 6 (2005) 1.
- 3) G. Herzer, IEEE Trans. Magn., **25** (1989) 3327.
- 4) G. Herzer, Mat. Sci. and Eng., **A133** (1991) 1.



Fig. 1 Photo image of nanocrystalline composite core.

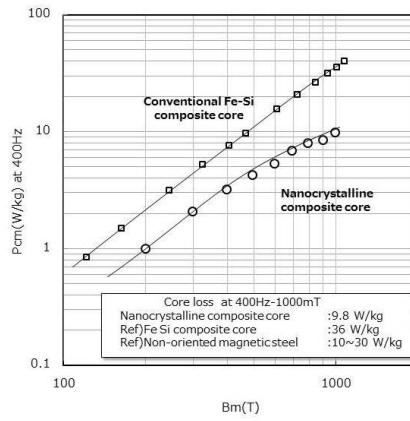


Fig. 2 Core loss at 400Hz of nanocrystalline composite core.

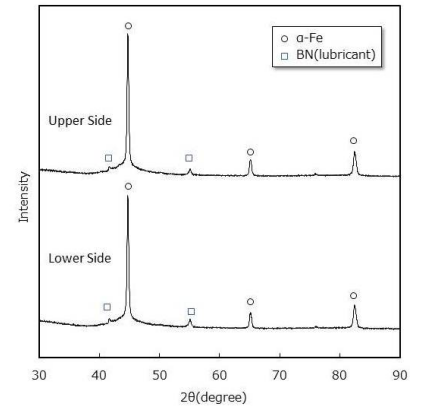


Fig. 3 XRD patterns of nanocrystalline composite core.

High-efficiency IPM motor design and iron loss evaluation

M. Nakagawa¹, Y. Sanga¹, T. Kondo¹, Y. Asano¹, A. Yamagiwa¹

Y. Inoue², M. Sanada², S. Morimoto²

¹Technology Research Association of Magnetic Materials for High-Efficiency Motors (MagHEM)

²Osaka Prefecture Univ.

The expectation for higher-efficiency motors has been increased because the demand for the motorized vehicles and the energy-saving consumer electrical appliances has been grown. For that reason, Motors and Magnetic Materials R&D Center, which is a branch of Technology Research Association of Magnetic Materials for High-Efficiency Motors (MagHEM), develops the design technology of high-efficiency interior permanent magnet synchronous motors (IPMSMs) applying the newly developed magnetic materials and the magnetic material evaluation technology. It is important to develop the design technology of high-efficiency IPMSMs to utilize the newly developed magnetic materials (i.e. high-remanence permanent magnets). High-remanence permanent magnets tend to be adopted as the motor structure is the same, because it is thought that the high efficiency motors can be obtained by using the high-performance materials. However, as shown in Table I, the efficiency of this motor decreases due to increase in the iron loss by using high-remanence permanent magnets in order to reduce the copper loss. Furthermore, the motor structures have a significant influence on the efficiency of the motor if the same magnets are adopted. Therefore, in order to increase the motor efficiency, it is necessary to evaluate the iron loss generated by the magnetic flux including the fundamental components and the harmonic components.

First, the authors developed an ultra-high-precision motor loss analysis system equipped with magnetic bearing in which there is no mechanical friction loss because the rotor is levitated. It enables to reduce the variation in the mechanical friction loss that is a cause of an error of motor loss evaluations, because the iron loss is estimated by subtracting obtained losses, such as the copper loss and the mechanical loss, from the total loss.

Second, because the iron loss density is distributed in the motor, it is necessary to develop a technique for evaluating local iron loss in order to design motors. Therefore, by using search coils and sensors (H coil) for measuring the magnetic field strength, we have developed a technique for evaluating local iron loss under excitation by an inverter. As measurement examples, we report the comparison result of the loss of the ring core using conventional electromagnetic steel sheets and FeBPCu nanocrystalline alloy ribbon.






Acknowledgments

The work is based on results obtained from the future pioneering program "Development of magnetic material technology for high-efficiency motors" commissioned by the New Energy and Industrial Technology Development Organization (NEDO).

[1] Y. ASANO, S. ARAKI, A. YAMAGIWA, K. OHYAMA "Trend of the Amount of Heavy Rare-earth Elements used in IPMSM for Air-conditioner and Action for the Future." The papers of Joint Technical Meeting on Motor Drive, Rotating Machinery and Vehicle Technology, IEE Japan, MD-14-074, RM-1-037, VT-1-009 (2014)

[2] M. Sanada, Y. Inoue, S. Morimoto, T. Kosaka "High efficiency IPM motor, high efficiency variable field motor" 35th Motor Technology Symposium (2015)

Table I Influences of remanence and rotor structures on motor losses (City-driving evaluation point)

Model	Type 1V-1	Type 1V-2	Type 1V-3	Type 2D	Type ∇
Rotor structure					
Remanence Br[p.u.]	1	1.143	1.268	1	
Current [p.u.]	1	0.892	0.813	1.054	0.973
Copper loss [p.u.]	1	0.796	0.660	1.110	0.947
Iron loss [p.u.]	1	1.152	1.327	0.786	0.914
Total loss [p.u.]	1	0.984	1.016	0.938	0.929

^{57}Fe -NMR による M 型 Ca フェライトの研究

高尾健太、宇治克俊、和氣剛、田畑吉計、中村裕之
(京大院工)

^{57}Fe NMR study of M-type calcium ferrites

K. Takao, K. Uji, T. Waki, Y. Tabata, H. Nakamura
(Kyoto Univ.)

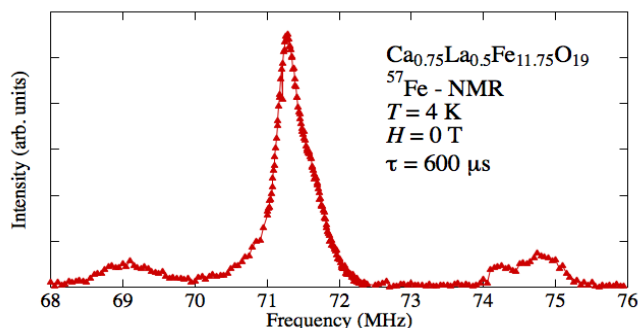
【背景】

M 型フェライトは鉄原子が磁性を担う鉄系酸化物磁石であり、安価な磁石材として広範囲の用途に使われている。M 型フェライトは異なる 5 つの Fe サイトを有する複雑な構造を持ち、微視的磁性の情報を得ることは容易ではない。これまで M 型フェライトの微視的磁性評価には ^{57}Fe -メスバウア分光がよく用いられてきた [1]。メスバウア分光は測定が簡便な手法である。しかし、原理的なことが理由で分解能に限界があり、四重極効果によるスペクトルの分裂もあるため、構造が複雑な M 型フェライトではデータの解釈に曖昧さを残す欠点がある。一方で、NMR は分解能が高く、 ^{57}Fe -NMR では四重極効果もないため内部磁場の大きさを直接的に観測できるメリットがある。しかし、M 型フェライトは内部磁場が広く分布しているため、広い周波数領域の測定が必要であり、実験には多大な労力を要する。そのため NMR は微視的な評価手法として積極的には利用されてこなかった。我々は周波数自動掃引 NMR 装置を用いて測定労力を軽減し、M 型フェライトの系統的な測定を行っている。

本研究では Ca を含む M 型フェライトに ^{57}Fe -NMR 実験を適用した。Ca を含むフェライトは M 型フェライトの中でも高い磁気特性を有しており、近年製品化されている [2]。一方、その母物質である Ca フェライトの基礎物性は不明な点が多く、特に微視的な磁性は全く知られていない。本研究では La 置換 Ca フェライトの ^{57}Fe -NMR 測定を行い、微視的な磁性を評価する。

【実験方法】

La 置換の Ca フェライト ($\text{Ca}_{0.75}\text{La}_{0.5}\text{Fe}_{11.75}\text{O}_{19}$) の粉末試料 ^{57}Fe -NMR 測定を行った。試料は固相反応法により作製した多結晶試料と、CaO 自己フラックス法により作製した単結晶試料を砕いたものを用意した。それぞれの測定結果および他の M 型フェライトの ^{57}Fe -NMR 測定結果を比較し、Ca フェライトの 5 つの Fe サイトの内部磁場の強さや La 置換による電子状態の変化を評価する。



【結果・考察】

図 1 は La 置換 Ca フェライト多結晶試料の NMR 測定の結果である。測定は 4 K、ゼロ磁場下で行い、Fe サイト由来のスペクトルの詳細な形状が判明した。非置換 Sr フェライトの NMR 測定結果 [3] と比較すると $12k$ 、 $2a$ サイトはほぼ同じ周波数に観測されたが、 $4f_1$ 、 $4f_2$ サイトは低い周波数で観測された。また、69 MHz 付近に強度が小さく幅広いスペクトルが観測された。このスペクトルは Sr フェライトには存在しないものであり、その起源に興味を持たれる。Sr フェライトで、60 MHz 付近に観測される $2b$ サイトの信号の周波数が上昇した可能性や、Ca-La サイトの不均化に伴う新たな局所環境の Fe サイトの出現などが考えられるが、現在のところ不明である。今後の系統的实验が待たれる。

参考文献

- 1) G. Wiesinger et al., Phys. Stat. Sol. a **189** (2002) 499.
- 2) Y. Kobayashi et al., J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy **55** (2008) 7-541.
- 3) M. Küpferling et al., Phys. Rev. B **73** (2006) 144408.

La-Co 置換系 M 型 Sr フェライトの ^{57}Fe 核 NMR酒井宏典, 服部泰佑, 徳永陽, 神戸振作, 下田愛子*, 和氣剛*, 田畑吉計*, 中村裕之*
(原子力機構,* 京大) ^{57}Fe NMR study in La-Co substituted M-type Sr FerriteH. Sakai, T. Hattori, Y. Tokunaga, S. Kambe, A. Shimoda, T. Waki, Y. Tabata, and H. Nakamura
(JAEA,* Kyoto Univ.)

1 はじめに

M 型フェライト $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ は、六方晶系マグネトプランバイト型 (M 型) 結晶構造を有し、Sr の一部を La で、Fe の一部を Co で同時に置換すると磁気異方性が大きく向上し、飽和磁化も大きくなることを見いだされ、磁気応用上、有用な材料となった。しかしながら、この共置換系において、磁気異方性が向上する理由についてはよく分かっていない。M 型フェライトには、5 つの結晶学的に異なる Fe サイトが存在し、Co が Fe のどのサイトと置換しているのか、価数はどうなっているのか、中性子散乱¹⁾、Mössbauer 効果²⁻⁴⁾、核磁気共鳴 (NMR)⁵⁾ などの微視的磁気プローブ毎に、見解が異なっているのが現状である。本研究では、 ^{57}Fe 核 NMR 及び ^{59}Co 核 NMR を行い、他の微視的実験結果や第 1 原理計算結果などを相補的に考慮しながら、整合性のある解を目指している。本講演では、主に ^{57}Fe 核 NMR の実験結果について発表する。

2 結果および考察

$\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ 及び、La-Co 共置換系 $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_{12-x}\text{Co}_x\text{O}_{19}$ の粉末試料、フラックス法で育成された単結晶を用いて、ゼロ磁場 NMR 実験を行った。 ^{57}Fe 核は、自然存在比 2.2% で核スピン $I = 1/2$ をもち、強磁性体中の各 Fe サイトにおける内部磁場に呼応して、外部磁場ゼロで NMR を行うことが出来る。核磁気回転比が $\gamma_n = 1.4 \text{ MHz/T}$ と低いため、NMR 敏感核ではないが、強磁性体では巨視的磁気モーメントが高周波に対して大きく応答し NMR 強度が増強する効果があり、実験可能となる。特に、この NMR 信号増強効果は、典型的に磁区内で約 10^4 倍、磁壁内で約 10^{10} 倍と見積もられており、粉末 NMR スペクトルでは、磁区・磁壁からの NMR 信号を区別することが必要となる。

Fig. 1 に、温度 4 K で測定した $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ の粉末試料、単結晶におけるゼロ磁場 ^{57}Fe 核 NMR スペクトルを示した。磁区内の信号に関しては、磁化容易軸が c 軸であるために NMR 励起用高周波 (rf) が c 軸垂直であるときに最も NMR 信号が観測され、完全に rf が c 軸平行であれば NMR 信号は消える。一方、磁壁では、磁化方向が隣接する磁区間で回転しているため、たとえ $rf \parallel c$ とセットしていても、磁壁増強 NMR 信号が観測されることが予想される。実際、Fig. 1 に示したように、単結晶 NMR スペクトルに明瞭な rf 方向依存性が観測され、磁区・磁壁信号の分離に成功した。NMR スペクトルの横緩和時間測定、外部磁場依存性などからも、この分離が妥当であることを確認した。このように単結晶試料を用いることで、各 Fe サイトにおける内部磁場を微視的に決定することが可能である。当日は、共置換系における ^{57}Fe 核 NMR の結果についても報告し、Mössbauer 効果の実験等との比較についても検討したい。

References

- 1) Y. Kobayashi, E. Oda, T. Nishiuchi and T. Nakagawa, *J. Cer. Soc. Jpn.* **119**, 285 (2011).
- 2) G. Wiesinger, M. Müller, R. Grössinger, M. Pieper, A. Morel, F. Kools, P. Tenaud and J. M. Le Breton and J. Kreisel, *physica status solidi (a)* **189**, 499 (2002).
- 3) A. Morel, J. M. Le Breton, J. Kreisel, G. Wiesinger, F. Kools and P. Tenaud, *J. Magn. Mater.* **242-245**, 1405 (2002).
- 4) J. M. Le Breton, J. Teillet, G. Wiesinger, A. Morel, F. Kools and P. Tenaud, *IEEE Transactions on Magnetics* **38**, 2952 (2002).
- 5) M.W. Pieper, F. Kools and A. Morel, *Phys. Rev. B* **65**, 184402 (2002).

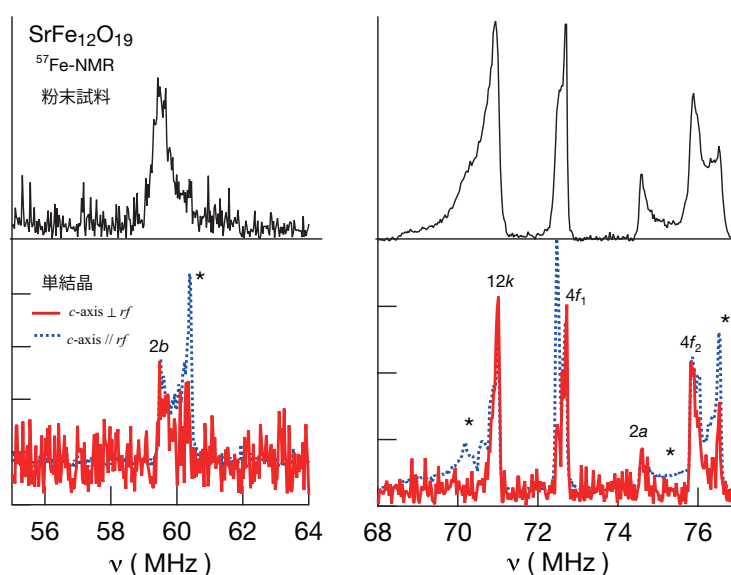


Fig. 1 温度 4 K で測定した $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ の粉末試料、単結晶におけるゼロ磁場 ^{57}Fe 核 NMR スペクトル。単結晶のスペクトルは、高周波 (rf) 方向を磁化容易軸である c 軸平行に配置したものと、垂直に配置したものを示している。

単結晶 M 型 Sr フェライトの強磁場下 ^{57}Fe メスバウアー分光

永澤延元, 池田修悟, 下田愛子*, 和氣剛*, 田畑吉計*, 中村裕之*, 小林寿夫
(兵庫県立大, *京都大)

Single-crystalline M-type Sr hexaferrite with external magnetic fields
studied by ^{57}Fe Mössbauer spectroscopy

N. Nagasawa, S. Ikeda, A. Shimoda*, T. Waki*, Y. Tabata*, H. Nakamura*, and H. Kobayashi
(Univ. of Hyogo, *Kyoto Univ.)

はじめに

M 型 Sr フェライトである $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ は、空間群 No. 194 の六方晶 $P6_3/mmc$ のフェリ磁性体であり、室温下で結晶学的に等価でない 5 つの Fe サイトが存在している。この $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ の Sr^{2+} を La^{3+} に、 Fe^{3+} を Co^{2+} で少量置換することで室温での保持力が向上するため、様々な永久磁石材料に利用されている。しかしながら、Fe の電子状態や、Fe サイトに Co^{2+} を置換することで Fe が受ける影響については未だ解明されていない。今回は M 型 Sr フェライトの単結晶の強磁場下 ^{57}Fe メスバウアー分光測定を行い、Fe の電子状態と置換による影響を調べたので報告する。

実験方法

^{57}Fe メスバウアー分光測定には c 軸（磁化容易軸）方向が薄く、その厚さが $50\ \mu\text{m}$ 程度の板状の単結晶試料を十数枚貼りあわせて、直径 $8\ \text{mm}$ 程度の大きさにした試料を用いた。また c 軸に対して平行に γ 線を入射し、 c 軸に対して垂直に外部磁場 H_{ex} を印加した。

実験結果

Fig. 1 に、 $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ に対して強磁場下 ^{57}Fe メスバウアー分光測定の結果を示す。 $H_{\text{ex}} = 0\ \text{kOe}$ のスペクトルにおいて、Evans が提案しているモデル¹⁾を基準にフィッティングを行うと、得られたスペクトルとの良い一致を示した。また、 $H_{\text{ex}} \neq 0\ \text{kOe}$ のスペクトルについては、外部磁場を印加してもセンターシフトと四重極相互作用は変化しないという仮定のもと、良いフィッティング結果を得ることができた。これらのスペクトル解析から得られた超微細磁場 H_{hf} から、 H_{ex} の寄与を差し引くことで各 Fe サイトの内部磁場 H_{int} を求めることができる。 $H_{\text{ex}} = 0\ \text{kOe}$ で得られたスペクトルでは、 $\Delta m = 0$ の遷移による吸収がほとんど観測されなかった。これは、各 Fe サイトの内部磁場 H_{int} が磁化容易軸である c 軸と実験誤差の範囲内で平行であることを示している。

H_{ex} の増加と共に $\Delta m = 0$ の遷移によるピークの相対強度が大きくなっていることから、磁場印加によって H_{int} が H_{ex} と平行になる様に回転していくことがわかった。そして、 $H_{\text{ex}} = 30\ \text{kOe}$ では H_{int} の向きと H_{ex} の向きが平行になっており、この結果は磁化測定で得られた結果と一致した。また、 H_{int} が H_{ex} に依存しない Fe サイトと、 H_{ex} の増加と共に H_{int} が減少する Fe サイトが存在することがわかった。La-Co 置換系フェライト $\text{Sr}_{0.554}\text{La}_{0.456}\text{Fe}_{11.775}\text{Co}_{0.225}\text{O}_{19}$ についても同様の測定を行った結果、 $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ では H_{ex} に依存しなかった $2a$ サイトの H_{int} が、 H_{ex} の増加と共に大きく上昇することがわかった。

参考文献

- 1) B. J. Evans, F. Grandean, A.P. Lilot, R. H. Vogel, and A. Gérard: *J. Magn. Magn. Mater.* **67** 123(1987).

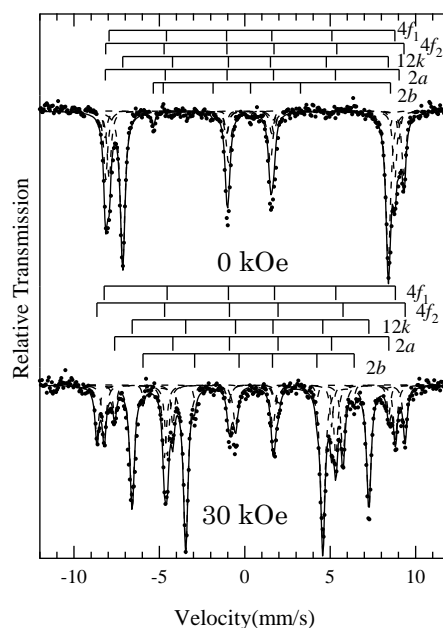


Fig. 1 Mössbauer spectra of the single crystalline samples $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ with external magnetic fields, at 150K.

La 置換 M 型 Ca フェライトの単結晶合成と物性

宇治克俊、和氣剛、田畑吉計、中村裕之
(京大)

Growth and characterization of La-substituted M-type calcium ferrite single crystals

K. Uji, T. waki, Y. Tabata, H. Nakamura
(Kyoto Univ.)

はじめに

マグネトプランバイト型 (M 型) フェライト ($AFe_{12}O_{19}$, $A = Ca, Sr, Ba, Pb$) は、 Fe^{3+} ($3d^5$, $S = 5/2$) が磁性を担うフェリ磁性体であり、これを母相とした永久磁石は、低価格・化学的に安定・元素戦略上有利などの理由から市場の大半を占めている。現在主流の製品は $A = Sr$ の SrM フェライトで、Sr を La、Fe を Co で一部置換すると、磁気異方性が増大し、保磁力が向上することが知られている。近年、LaCo 置換 SrM フェライトに性能が勝るフェライト磁石として、LaCo 置換 CaM フェライトが開発された[1]。その母体となる非置換の $CaFe_{12}O_{19}$ は安定相として存在せず、La をいくらか添加することによって初めて CaM フェライトが安定になることが知られているが[2]、La 置換 CaM フェライトの物質固有の性質に関する報告は少ない。本研究では、La 置換 CaM フェライトの単結晶試料を作製し、その物性を評価した。

実験方法

単結晶試料は CaO 自己フラックス法により合成した。CaCO₃、La(OH)₃、Fe₂O₃ を原料として Ca : La : Fe = 2.9375 : 0.5 : 11.75 となるように秤量し、メノウ乳鉢で 30 分混合後、白金るつぼ内で 1400°C から 1200 °C まで 2.5 °C/h で徐冷した。相同定を XRD、SEM-WDX により行い、磁化測定を MPMS、微視的磁性を ⁵⁷Fe メスバウア分光法にて評価した。

実験結果・考察

図 1 はフラックス法により得られた薄板状の単結晶である。粉末 XRD を行った所、M 型フェライトに同定された。また、SEM-WDX による組成分析の結果、組成は $Ca_{0.49}La_{0.48}Fe_{12.03}O_{19}$ と判明した。多結晶の CaM フェライトは Fe が M 型フェライトの組成式より少ないとき安定化するため、Ca の Fe サイトへの侵入が疑われているが[3, 4]、A イオンと Fe の比が 1 : 12 の試料が得られた。

単結晶の磁化曲線を図 2 に示す。非置換の $SrFe_{12}O_{19}$ の磁化困難軸方向の磁化曲線は線形に増加するが、本系では $H = 0.5$ T 付近でメタ磁性転移的に磁化が急激に上昇した。格子の乱れなどにより局所的な磁気異方性が $SrFe_{12}O_{19}$ とは異なる可能性がある。今後 MPMS によって詳細な磁化曲線及び試料依存性を測定し、当日報告する予定である。得られた単結晶を用いた ⁵⁷Fe メスバウア分光の結果も当日報告する。

参考文献

- [1] Y. Kobayashi et al., J. Jpn. Soc. Powder Metallurgy **55**, 7-541 (2008)
- [2] N. Ichinose et al., J. Phys. Soc. Jpn. **18**, 1700 (1963).
- [3] F. K. Lotgering and M. A. H. Huyberts, Solid State Commun. **24**, 49(1980)
- [4] 宇治克俊ほか, 粉体粉末冶金協会講演概要集 平成 27 年度春季大会, 222 (2015)



図 1 得られた単結晶

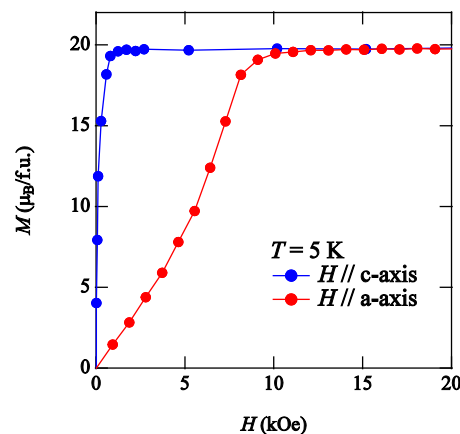


図 2 CaM フェライト単結晶の磁化曲線

La,Co 置換 M 型 Sr フェライトの単結晶育成及び磁気異方性の評価

森下翔、谷奥泰明、植田浩明、道岡千城、吉村一良
(京大院理)

Single crystal growth and characterization of magnetic anisotropy in La,Co-substituted M-type Sr ferrites

H. Morishita, Y. Tanioku, H. Ueda, C. Michioka, and K. Yoshimura

(Dept. of Chem., Grad. Sch. of Sci., Kyoto Univ.)

1. はじめに

$\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ は M 型フェライトに分類される六方晶の構造を持つ物質であり、磁気異方性が強く保磁力が高いため永久磁石材料として実用化されている。これまで磁石特性を高めるために様々な元素置換が行われてきたが、特に Sr を La に、Fe を Co に部分置換した $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_{12-x}\text{Co}_x\text{O}_{19}$ は置換に伴い $x < 0.4$ では飽和磁化が減少せずに保磁力が増加する¹⁾。しかし、これまで行われてきた研究は焼結体に関するものであるが、磁気異方性を正確に評価するためには単結晶が必須である。本研究では、La 置換及び La,Co 置換体に対して、単結晶の磁気異方性を測定し、La 置換及び Co 置換それぞれの役割を解明することを目的とする。

2. 実験方法

La 置換 $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_{12}\text{O}_{19}$ 及び La,Co 置換 $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_{12-x}\text{Co}_x\text{O}_{19}$ の単結晶を、キヤノンマシーナリー製の赤外線加熱単結晶育成装置 SC-E15HD を用いて育成した。直径 5mm、長さ 120mm 程度の棒状の焼結体を作製し、Sr,La-rich なフラックスを用いて移動溶媒型浮遊帯域 (Traveling Solvent Floating Zone, TSFZ) 法にて 1mm/h の速度で成長させ、円柱状の単結晶を得た。

磁化測定は QUANTUM DESIGN 社の MPMS を用いて、 $T=5\text{K}\sim 300\text{K}$ 、 $H=0\sim 5\text{MA/m}$ の範囲で行った。このとき、反磁場の影響を極力減らすために、単結晶試料をおよそ $0.5\text{mm}\times 0.5\text{mm}\times 2\text{mm}$ の直方体状に整形し、長辺を磁場方向と平行にして測定した。

3. 結果

$\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ においては、TSFZ 法によって単結晶を合成可能である²⁾が、今回 La 置換及び La,Co 置換 $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ においても TSFZ 法が有効であることが明らかとなった。図 1 は育成した結晶の一例であり、右側の複数ドメイン領域を除く直径 4mm、長さ 70mm 程度が単ドメインの単結晶となっている。

得られた試料を粉砕し、粉末 X 線回折測定を行ったところ、広い組成範囲において M 型フェライトが得られることが判明した (図 2)。磁化測定の結果、La 置換により、低温の異方性磁界が $x \leq 0.3$ までは減少するが、 $x \geq 0.4$ では逆に増加する。同時に、 $x \geq 0.4$ では磁化曲線がある磁場で急に立ち上がる振る舞いを見せ、このことは異方性磁界の増加と関係していると考えられる。また、La,Co 置換体においては、異方性磁界は増加し、組成によっては 2 MA/m を超える試料も得られた。

参考文献

- 1) K. Iida, Y. Minachi, K. Masuzawa, M. Kawakami, H. Nishio and H. Taguchi, J. Magn. Soc. Jpn. **23**, 1093 (1999).
- 2) H. Morishita, A. Amano, H. Ueda, C. Michioka and K. Yoshimura, Proc. of the 11th Inter. Conf. on Ferrites, S64 (2013).



Fig.1 A single crystal of $\text{Sr}_{0.6}\text{La}_{0.4}\text{Fe}_{12}\text{O}_{19}$ grown using TSFZ method.

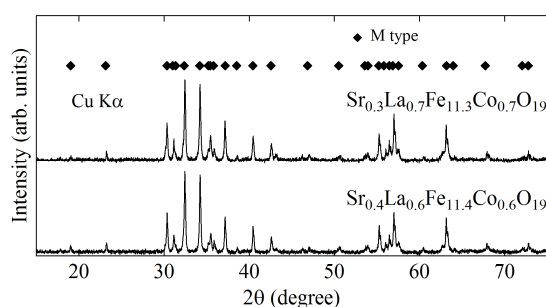


Fig.2 Powder X-ray diffraction patterns of $\text{Sr}_{0.3}\text{La}_{0.7}\text{Fe}_{11.3}\text{Co}_{0.7}\text{O}_{19}$ and $\text{Sr}_{0.4}\text{La}_{0.6}\text{Fe}_{11.4}\text{Co}_{0.6}\text{O}_{19}$.

FeCo 下地層を用いた Co フェライト薄膜の配向制御

原 佑輔 劉 小晰
(信州大学)

Tailoring perpendicular magnetic anisotropy in Co-ferrite thin films by FeCo underlayer

Yusuke Hara, Xiaoxi Liu
(Shinshu University)

はじめに

これまでは単結晶基板を用い、(001)面上に Co フェライトを成膜し垂直磁気異方性を示す¹⁾²⁾方法が用いられている。しかし我々は非晶質基板上に Co フェライトを形成し基板特性に依存せずに、垂直磁気異方性を示す試料の作成を試みた。また初期層に FeCo を成膜することによるヘテロエピタキシャル成長を試みた。FeCo を成膜する理由として Fig. 1 と Fig. 2 で示すように FeCo(200)面と CoFe₂O₄の misfit ratio 2.1% と非常に小さくテロエピタキシャル成長が期待できる。

実験方法

対向ターゲット式スパッタ法を用い、ガラス基板上に薄膜を成膜した。真空到達圧力を 4.0×10^{-4} Pa 以下、スパッタガスは Ar、スパッタガス圧は 0.4Pa。成膜後に電気炉内で熱処理を施すことにより、結晶成長をさせた。振動試料型磁力計 (VSM)にて磁気特性評価、X線回折装置 (XRD)にて結晶構造解析を行った。

実験結果

Fig. 3 (a)では Co フェライト 単層の XRD 画像を示す。(311)面が回折線の最強ピークになっており、粉末回折法の結果からランダム配向となっていることが分かる。また Fig. 4 は Co フェライト単層の VSM 結果を示しており、この結果からも等方的な性質であることがわかる。これに比べて Fig. 3 (b)では初期層に FeCo 9nm を成膜しその後 Co フェライト 60nm を成膜した XRD 画像で、(400)面が回折線の最強ピークとなっており、優先的な(001)面配向した試料の作成に成功した。また Fig. 5 では Fig. 3 (b)での成膜条件の後 1000°Cで熱処理をした結果を示しており、垂直方向に 8 kOe の保磁力を有する試料の作成に成功した。

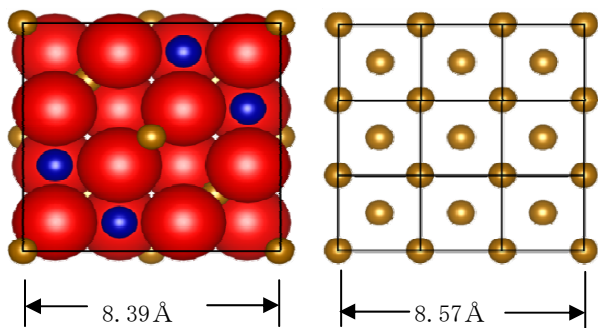


Fig.1 Ideal CoFe₂O₄

Fig.2 Ideal FeCo

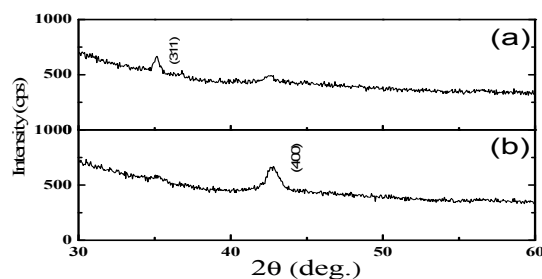


Fig.3(a) CoFe₂O₄ single layer

Fig.3(b) FeCo(9nm) / CoFe₂O₄(60nm)

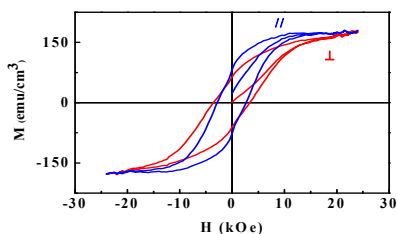


Fig.4 M-H loops of
CoFe₂O₄ thin film

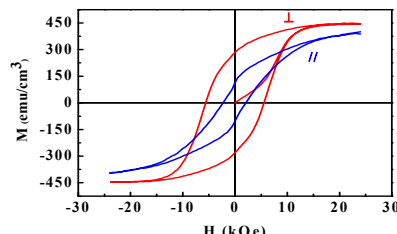


Fig.5 M-H loops of
CoFe₂O₄/FeCo thin film

参考文献

- 1) Tomohiko Niizeki et al., Extraordinarily large perpendicular magnetic anisotropy in epitaxially-strained cobalt-ferrite Co_xFe_{3-x}O₄(001) (x = 0.75, 1.0) thin films, 103, 162407 (2013)
- 2) H. Zheng et al., Multiferroic BaTiO₃-CoFe₂O₄ Nanostructures, VOL303 661 (2004)