

希土類永久磁石化合物における交換結合制御による磁気異方性の耐熱性改善

松本宗久, 原嶋庸介*, 三宅隆*, 三俣千春
(物材機構, *産総研)

Exchange-coupling engineering in rare-earth permanent-magnet compounds to improve the high-temperature magnetic anisotropy
M. Matsumoto, Y. Harashima*, T. Miyake*, and C. Mitsumata
(NIMS, *AIST)

1 はじめに

ハイブリッドカー・電気自動車の駆動部に使用される希土類永久磁石は摂氏マイナス40度から摂氏180度(絶対温度 $T = 450\text{K}$)に至るまで十分な磁気性能を発揮できなければならないが、磁石材料の性能を特徴づける残留磁化 M_r と保磁力 H_c において後者の耐熱性が問題になりやすい。その一つの原因は、 $[M_r(T), H_c(T)]$ に対応する物性値 $[M_s(T), K_{u1}(T)]$ (M_s は自発磁化、 K_{u1} は一軸磁気異方性エネルギー)において、 $K_{u1}(T)$ の耐熱性が $M_s(T)$ より弱いことにあり、両者の有限温度スケール関係 $K_{u1}/K_{u1}(0) \propto [M_s(T)/M_s(0)]^\alpha$ が1イオン起源の磁気異方性に対して議論されてきた¹⁾。ここでスケール指数は $\alpha = l(l+1)/2$ とかかれ、 l は結晶場の局所的な対称性(正方晶で $l=2$ 、六方晶で $l=3$ 、立方晶で $l=4$)から決まる。希土類永久磁石は金属材料でもあることから、絶縁体的な1イオン磁気異方性の議論の妥当性は慎重に吟味されなければならない。実際、磁気記録媒体のための金属磁性材料 FePt においては $\alpha \sim 2.1$ であり²⁾、1イオン描像の適用範囲外の磁気異方性発現メカニズムが示唆される。キュリー温度近辺に至るまで磁気異方性の耐熱性を出すためには α ができるだけ小さいことが望ましい。今日の希土類永久磁石の主流をなす Nd-Fe 合金において FePt 類似の耐熱磁気異方性を実現する方向性を検討する。

2 結果および考察

有限温度物性値において最強磁石化合物 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ を超えた $\text{NdFe}_{12}\text{N}_x$ ³⁻⁵⁾ に対し、第一原理に基づいてたてたスピン模型から有限温度磁化 $M(T)$ と異方性磁場 $H_a(T)$ を計算した⁶⁾。一軸磁気異方性エネルギーを $K_{u1}(T) \equiv H_a(T)M_s(T)/2$ の関係から見積もり磁化と磁気異方性のスケール特性を解析すると図1(a)のようになる(J_{TT} は第一原理計算から与えられる鉄原子間の交換結合⁶⁾、 J_{RT} は $4f$ - $3d$ 交換結合⁷⁾、 K_{Nd} は Nd の結晶場係数の第一原理計算⁸⁾ から与えられる一軸磁気異方性エネルギー)。交換定数をモデルパラメータとして有限温度磁気物性値の傾向を調べた結果、交換結合の強さに応じて磁化と磁気異方性エネルギーのスケール指数が変化することがわかる。モデルパラメータに依存するスケール指数の傾向をまとめると図1(b)のようになる。特に希土類・鉄間の交換結合が十分に強い場合、FePt 類似の $K_{u1}(T) \sim M(T)^2$ 則が数値的に観測される。スケール指数の下がる傾向は、Fe-Fe 交換結合が固定されているとして Nd-Fe 交換結合を強くするか、あるいは Nd の磁気異方性が固定されているとして Fe-Fe 交換結合を強める方向に見られ、特に前者の影響が甚大である。いずれも Nd の磁気異方性の1イオン性を弱める方向である。 $4f$ 電子の局在性を弱めて基底状態磁気異方性を若干犠牲にすることがあっても、 $4f$ 電子に若干の遍歴性を持たせて周辺の伝導電子との混成を促し、交換相互作用的な磁気異方性を出すことが高温特性改善につながると考えられる。

References

- 1) H. B. Callen and E. Callen, J. Phys. Chem. Solids. **27**, 1271 (1966).
- 2) S. Okamoto, N. Kikuchi, O. Kitakami, T. Miyazaki, Y. Shimada, and K. Fukamichi, Phys. Rev. B **66**, 024413 (2002).
- 3) T. Miyake, K. Terakura, Y. Harashima, H. Kino, and S. Ishibashi, J. Phys. Soc. Jpn. **83**, 043702 (2014).
- 4) Y. Hirayama, Y. K. Takahashi, S. Hirose, and K. Hono, Scr. Mater. **95**, 70 (2015).
- 5) Y. Hirayama, T. Miyake, and K. Hono, JOM **67**, 1344 (2015).
- 6) MM, H. Akai, Y. Harashima, S. Doi, T. Miyake, J. Appl. Phys. in press.
- 7) Nd の電子状態を open core として扱い、Nd の $5d$ 電子と Fe の $3d$ 電子の交換結合を第一原理から与えた上で、局在 $4f$ モーメントのスピ成分と $5d$ バンドのスピ成分が十分に強く結合している(仮に frozen $4f$ - $5d$ 近似と呼ぶ)として $4f$ - $3d$ 交換結合を算出した。
- 8) Y. Harashima, K. Terakura, H. Kino, S. Ishibashi, and T. Miyake, JPS Conf. Proc. **5**, 011021 (2015).

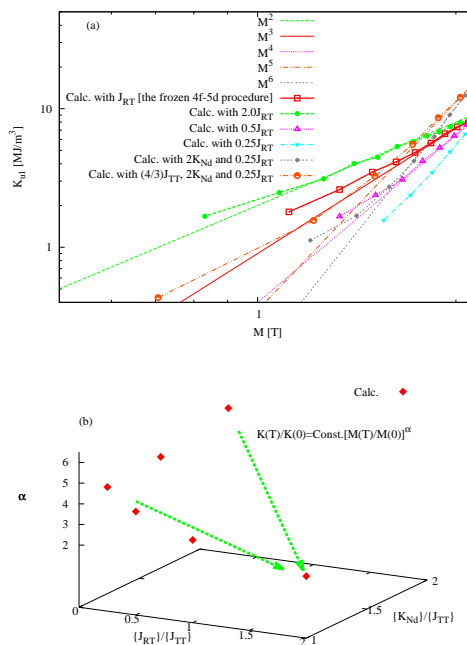


Fig. 1 Finite-temperature scaling of the magnetic anisotropy energy $K_{u1}(T)$ with respect to the magnetization $M(T)$ of NdFe_{12}N within a spin model. (a) Results with several input parameters. (b) Overview of the scaling exponent on a space of the model parameters. The arrows are guides for the eye.