### 粒界改質法による高保磁力 Nd-Fe-B 系磁石の作製と 磁気特性の精密評価

町田憲一、李 娜, 鄭 翰林、西尾博明、遠藤政治 (大阪大学)

### Preparation of Highly Coercive Nd-Fe-B Magnets by Grainboundary Modification Method and Precise Characterization of the Magnetic Properties Ken-ichi Machida, Na Li, Hanlin Zheng, Hiroaki Nishio, Masaji Endo (Osaka Univ.)

### 1. 緒言

近年、EV や HEV などの普及に伴い、高温仕様モータ用の高保磁力磁石の需要が高まっている。ここで、 当該高保磁力磁石の評価に必要な磁場との関連から、1) 温度を上げて低下した保磁力の状態で測定する、2) パルス磁場または超電導マグネットによる静磁場下で測定する、等の方法により磁石仕様が算定されている。 これに対して当研究室では、円柱 (~10 mm) 磁石の評価が可能な超電導磁石式 VSM を導入し、球状試料 を基準として反磁界補正パラメータを設定することで、一連の仕様の Nd-Fe-B 系焼結磁石の磁気特性を高精 度で測定できることを明らかにした[1,2]。今回は、市販の磁石を粒界改質法により保磁力を高めた Nd-Fe-B 焼結磁石を作製し、これらの磁気特性を反転磁界分布などの概念をもとに評価したので報告する。

### 2. 実験

改質に用いた磁石は信越化学工業㈱製の N52、N36Z および N32EZ の市販品で、円柱状(10 mmφ×3.5 mmL) のサイズに切断し有機溶媒で脱脂後、既報[3]に従い改質処理を行った。改質材である Nd-Al 系または Tb-Al 系と Nd と Tb と同時に含む Tb-Nd-Al 系合金は、所定量の各単体金属(純度:99~99.99%)をアーク溶解す ることで作製し、これらを粉砕後スラリーの状態で所定量磁石表面に塗布した。引き続き、これらを精製 Ar 雰囲気中、950℃で4時間加熱後、更に550℃~600℃で2時間アニール処理した。得られた円柱状磁石では 高さ方向Lに沿って垂直に各底面を研磨し、超電導式 VSM 装置を用いて室温で測定した。

### 3. 結果と考察

Nd-Al 系または Tb-Al 系と Nd と Tb と同時に含む Tb-Nd-Al 系合金粉末を改質材として処理した試料の磁気ループ曲線(上 図)と、Tb<sub>2</sub>Al 合金で処理した磁石の磁気ループ曲線に同微分 曲線を併記したもの(下図)を併せて図1に示す。なお、改質 磁石試料の測定は2個の円柱状磁石を上下方向に2枚重ね、 L=7 mm として測定を行ったものである。上図から、Tb-Al 系 合金の改質により保磁力が効果的に増大する反面、未処理磁石 に比べて角型性が多様に変化することがわかる。同様の結果は N52 および N36Z 磁石でも見られた。

図1の下図は、Tb<sub>2</sub>Al 合金粉末を用いて粒界改質した磁石の 磁気ループ曲線と同微分曲線を示したもので、微分曲線の半値 幅を反転磁界分布と定義し、講演では改質成分である Tb の分 布と磁石の角型性との相関について議論する。

### 参考文献

- H. Nishio, K. Machida, K. Ozaki, *IEEE Trans. Magn.*, 53 (2017) 6000306.
- 町田、難波、愈、西尾、遠藤、第41回日本磁気学会学術講 演会 (2017) 21aC-4.
- 3)町田、李、金属、78 (2008) 760 など.



Nd-Fe-B系焼結磁石の磁気特性

# Temperature dependence of microstructure of Tb-rich shell in grain boundary diffusion processed Nd-Fe-B sintered magnets

Tae-Hoon Kim<sup>(a)</sup>, T. T. Sasaki<sup>(a)</sup>, T. Ohkubo<sup>(a)</sup>, Y. Fujikawa<sup>(b)</sup>, M. Miwa<sup>(b)</sup>, Y. Enokido<sup>(b)</sup>, and K. Hono<sup>(a)</sup> <sup>(a)</sup> Elements Strategy Initiative Center for Magnetic Materials, National Institute for Materials Science, Tsukuba-city, Ibaraki 305-0047, Japan <sup>(b)</sup>TDK Corporation, Narita-city, Chiba 286-8588, Japan

In Nd-Fe-B sintered magnets, the formation of heavy rare earth (HRE, Dy or Tb) enriched shell by the grain boundary diffusion process (GBDP) is essential to improve the coercivity while minimizing the HRE usage [1]. Due to higher anisotropy field of  $Tb_2Fe_{14}B$  than  $Dy_2Fe_{14}B$ , the Tb-GBDP is more effective to enhance the coercivity of the magnets. During the GBDP of Tb at 970 °C, the Tb-rich shell is formed by the diffusion induced grain boundary migration (DIGBM) [1]. The Tb concentration at the Nd-rich grain boundary (GB) region abruptly increases upon the GBD of Tb, and it provides a chemical driving force for the GB migration. Thereby, after the Tb-rich shell formation, the size of the main phase grain increases by the thickness of the shell [1]. This implies that the thickness of Tb-rich shell and the size of main phase grain can be controlled simultaneously by controlling the driving force for DIGBM. According to the simulation, the formation of thinner Tb-rich shell and smaller main phase grain are strongly required to further improve the coercivity of Tb-GBDP magnets [2], and we can expect that those microstructure is obtained by reducing the Tb-GBDP temperature. In this study, we investigated the change in the microstructure of Tb-rich shell as a function of the Tb-GBDP temperature.

The as-sintered Nd-Fe-B magnets were GBD processed using TbH<sub>2</sub> powder at 870, 920, and 970 °C. The GBDP magnets were annealed at 520°C. Magnetic and microstructure characterizations were carried out using a BH-tracer, EDS, SEM, and TEM.

Fig. 1 shows the magnetic property changes as a function of the Tb-GBDP temperature. The coercivity of GBDP magnet increased from 1.9 to 2.1 T as the GBDP temperature decreased from 970 to 870 °C. The remanence was not affected by the change of GBDP temperature. Fig. 2(a) shows the microstructure of 870 °C and 970 °C GBDP magnets at a depth of 100 µm. In the higher temperature GBDP magnet, the thickness of Tb-rich shell was thicker and the size of main phase grain was larger, compared to those in the lower temperature GBDP magnet. Notably, the average Tb concentration of the shell was higher in the lower temperature GBDP magnet, as shown in Fig. 2(a). Upon the GBD of Tb, the increment of Tb concentration at the Nd-rich GB region (*i.e.* driving force for DIGBM) was larger when the GBDP temperature was higher, thereby forming thicker Tb-rich shell and larger grain in the higher temperature GBDP magnet. Since the GB migrated while consuming the Tb during the Tb-rich shell formation, the average Tb concentration within the shell was higher when the thinner Tb-rich shell was formed at lower GBDP temperature, as shown in Fig. 2(a). Interestingly, the formation of Tb-rich shell was also observed at the center part of both the 870 °C and 970 °C GBDP magnets as shown in Fig. 2(b). Unlike near the magnet surface, the Tb-rich shell at the magnets center seems to be formed by the solid diffusion of Tb rather than the DIGBM. Nevertheless, as observed at 100 depth, thinner shell with higher Tb concentration was also formed at the center part of the lower temperature GBDP magnet, as shown in Fig. 2(b). Conclusively, the smaller grain size and the formation of thinner Tb-rich shell with higher Tb concentration are the main factor for higher coercivity of lower temperature GBDP magnet. The relationship between the GBDP temperature and microstructure of Tb-rich shell at various magnet depths will be discussed in detail. References

[1] T. H. Kim et al., to be submitted (2018).

[2] T. Oikawa et al., AIP Advances, 6 (2016) 56006-1.



Figure 1. Magnetic property change of Tb-GBDP magnet as a function of GBDP temperature



Figure 2. (a) BSE images and tracings of GB at 100 μm depth of Tb-GBDP magnets. (b) 3DAP atom maps for Tb at center part of Tb-GBDP magnets.

### 異なる結晶粒配向度を有する Nd-Fe-B 磁石の

### First-order reversal curve (FORC)

### 山本 浩之, 甕 久実, 北川 功 (日立製作所 研究開発グループ)

### First-order reversal curve diagrams in sintered Nd-Fe-B magnets with different crystal grain alignment

H. Yamamoto, K. Motai, and I. Kitagawa (Hitachi, Ltd. Research & Development Group)

### 研究背景

Nd-Fe-B 磁石のさらなる保磁力(H<sub>cJ</sub>)の向上のためには,H<sub>cJ</sub>と磁石内の組織要因(粒界幅<sup>1)</sup>や粒界相の 磁性<sup>2)</sup>など)との関係性を明らかにすることが不可欠である。これまでの先行研究から,Nd-Fe-B 焼結磁石 の結晶粒の配向度が向上するとH<sub>cJ</sub>が低下することが報告されている<sup>3)</sup>。このH<sub>cJ</sub>の配向度依存性の理解を 進めるには,H<sub>cJ</sub>という一つの磁気特性値だけでなく,配向度を変えた際に磁化反転にどのような変化が生 じるか,より詳細な情報を得ることが重要となる。磁石の磁化反転挙動を詳細に解析する手法として FORC (First-Order Reversal Curve)が知られており,メジャーヒステリシス曲線では見えにくい磁石内の磁化過程 を調べる手法として有望視されている<sup>4,5)</sup>。本研究では結晶配向度と磁化過程の対応関係を明らかにすること を目的として,配向度が異なる Nd-Fe-B 焼結磁石試料の FORC 解析を行った。

### 実験方法

圧粉成型時の印加磁場強度を変えることにより、配向度 $\alpha$ が異なる複数のNd-Fe-B 焼結磁石を作製した。ここで $\alpha$ は3方向の残留磁束密度( $B_r$ )の測定値から $\alpha = B_{r,z}/(B_{r,x}^2 + B_{r,y}^2 + B_{r,z}^2)^{1/2}$ で定義した。作製した試料の特性値をTable 1 に示す。マクロな反磁場の影響を抑制するため、各試料は 1×1×6 mm のピラー形状に加工し

た。これらの試料について,超伝導 VSM (最大印加磁場 60 kOe) により室温での FORC データを測定した。

### 実験結果

Fig. 1 に、各試料の FORC ダイアグラム(回転なしの  $H_a$ - $H_b$  ダ イアグラム)の比較を示す。最も配向度 $\alpha$ と $B_r$ が高い試料Aでは、 局所的な保磁力の分散( $\sigma$  $H_c$ )が他の試料に比べて最小である。 これは、高配向磁石では粒子群の反転挙動がより均一化されてい ることを示唆する。それに対し、無配向の試料Cではダイアグラ ムのピークが、低磁場領域(左上)から高磁場領域(右下)まで 広範囲に広がり、 $\sigma$  $H_c$ および相互作用磁場の分散( $\sigma$  $H_{int}$ )が増大 する。この特徴は、無配向磁石では異なる反転磁場を有する多様 な粒子群が存在し、その中には反転磁場の高い粒子群も存在する ことを示唆する。今後、これらダイアグラム上の特徴と、磁石内 の微細組織との関連性を明らかにできれば、さらなる高 $H_{cl}$ 化に むけて有効な知見が得られると期待される。

### 謝辞

本研究研究における磁石材料は日立金属㈱より提供頂いた。

### 参考文献

- 1) H. Yamamoto et al., REPM 2016, P3-05 (2016)
- 2) T. Kohashi et al., Appl. Phys. Lett. 104, 232408 (2014)
- 3) Y. Matsuura et al., J. Magn. Magn. Mater., 336, 88 (2013)
- 4) C. R. Pike et al., J. Apple. Phys., 85, 6660 (1999)
- 5) T. Yomogita et al., J. Magn. Magn. Mater., 447, 110 (2018)

#### Table 1. Sample Properties



### 熱間加工 Nd-Fe-B 磁石の微小領域の高感度磁化測定

蓬田貴裕<sup>1</sup>, 岡本聡<sup>1,2</sup>, 菊池伸明<sup>1</sup>,北上修<sup>1</sup>, Sepehri-Amin Hossein<sup>2</sup>,

大久保忠勝<sup>2</sup>, 宝野和博<sup>2</sup>, 秋屋貴博<sup>3</sup>, 日置敬子<sup>4</sup>, 服部篤<sup>3</sup>

(東北大学<sup>1</sup>, ESICMM, NIMS<sup>2</sup>, (株)ダイドー電子<sup>3</sup>, 大同特殊鋼(株)<sup>4</sup>)

Highly sensitive magnetic measurement for a very small area of hot-deformed Nd-Fe-B magnet

T. Yomogita<sup>1</sup>, N. Kikuchi<sup>1</sup>, S. Okamoto<sup>1, 2</sup>, O. Kitakami<sup>1</sup>, H. Sepehri-Amin<sup>2</sup>,

T. Ohkubo<sup>2</sup>, K. Hono<sup>2</sup>, T. Akiya<sup>3</sup>, K. Hioki<sup>4</sup>, and A. Hattori<sup>3</sup>

(<sup>1</sup>Tohoku Univ., <sup>2</sup>ESICMM, NIMS, <sup>3</sup>Daido Electronics Co. Ltd., <sup>4</sup>Daido Steel Co. Ltd.)

### <u>はじめに</u>

バルク永久磁石における磁化反転過程は、膨大な数の反転核生成ならびに磁壁デピニングが同 時多発的に進行している.これらの反転核生成や磁壁デピニングの単一のイベントを直接計測で きれば、磁化反転過程機構に関し一層理解が深まることが期待される.その為にはバルクの磁気 特性を保ったまま試料を少なくともミクロンサイズまで微細化し、その磁化を高感度に検出する 必要がある.異常ホール効果 (Anomalous Hall Effect, AHE) 測定では磁化 z 成分に比例するホー ル信号を検出するが、それは原理的に試料サイズに依存しないため、微小領域の高感度磁化測定 に適している.試料に関しては、熱間加工 Nd-Fe-B 磁石を用いることを検討している.熱間加工 Nd-Fe-B 磁石は *c*-面に平行な薄い板状粒子が緻密に配列した特徴的な構造を有しており<sup>1)</sup>、各粒子 が数百ナノメートルオーダーの大きさであることから加工ダメージの影響を受けにくいものと期 待できる.本研究では、試料を厚さ 5 µm 程度にまで薄手化し、さらに FIB 加工により測定領域を ミクロンサイズにまで追い込んだ上で AHE 測定を行い、一連の加工ダメージの影響ならびに計測 感度などに関する知見を得た.

### <u>実験方法</u>

1 mm 角に加工した熱間加工磁石をガラス基板に固定 し、機械研磨により厚さ 5 μm 程度にまで薄手化をし た. 試料の表面には保護層として Ta を 4 nm 製膜し, 電極との最終的な導通には銀ペーストを用いた. この 試料に対し, Fig.1 に示すように, FIB により十字型の 切り込みを入れて, 140 μm の AHE クロスを作製し た. AHE 測定には PPMS (カンタム・デザイン社製)を 用いた.

### 結果と考察

Fig. 2 に FIB 加工前後の AHE 測定結果を示す. 5 µm まで薄手化しても高感度に磁化曲線が観察されており, FIB 加工前後の磁化曲線に変化が認められないことか ら,加工によるダメージは僅かだと考えられる. 今後は 単一の磁壁のみが存在する 10 µm 程度にまで AHE クロ スを微小化し,磁化反転過程の解明に向けた実験,解析 を行う予定である.

謝辞:FIB加工は東北大学産業連携先端材料研究センタ ー共用機器 Helios NanoLab<sup>™</sup> 600i (FEI 社製)を用い,佐 藤香織氏にご協力頂きました.また本研究は科研費なら びに ESICMM による支援の元で行われた.

### 4. 参考文献

1) J. Liu et al., Acta Mater. 61, 5387 (2013)



Fig. 1 Optical image of microstructured Nd-Fe-B magnet for AHE measurements.



Fig. 2 AHE signals before and after FIB fabrication.

## *RE*<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 及び *RE*Fe<sub>11</sub>Ti 希土類磁石に対する 非弾性中性子散乱を用いた研究

羽合孝文<sup>1</sup>, 矢野正雄<sup>2</sup>, 庄司哲也<sup>2</sup>, 齋藤開<sup>1,3</sup>, 横尾哲也<sup>1,3</sup>, 伊藤晋一<sup>1,3</sup>, 小野寛太<sup>1</sup> (<sup>1</sup>高エネ研,<sup>2</sup>トヨタ自動車, <sup>3</sup>J-PARC MLF)

Inelastic neutron scattering study for  $RE_2Fe_{14}B$  and  $REFe_{11}Ti$ 

### Takafumi Hawai<sup>1</sup>, Masao Yano<sup>2</sup>, Tetsuya Shoji<sup>2</sup>, Hiraku Saito<sup>1,3</sup>, Tetsuya Yokoo<sup>1,3</sup>, Shinichi Itoh<sup>1,3</sup>, Kanta Ono<sup>1</sup> (<sup>1</sup>KEK, <sup>2</sup>Toyota Motor Corp, <sup>3</sup>J-PARC MLF)

### はじめに

ハード磁性材料の磁気特性を有限温度で定量的に理解するには、実験及び理論両方からのアプローチが必 重要である。特に、磁性イオン間の磁気相互作用は第一原理計算において重要な量である。この量を実験的 に決定する方法の一つとして、中性子非弾性散乱によるスピン波測定が挙げられる。中性子非弾性散乱は、 希土類永久磁石の持つエネルギースケールでスピン波を測定することができるといった利点を持つ[1]。特に 希土類元素や組成が変化した時に磁気相互作用がどのような影響を受けるかという興味が持たれる。そこ で、本研究では、様々な希土類磁石に対して非弾性中性子散乱実験を行ったので結果を報告する。

### 実験方法

 $RE_2$ Fe<sub>14</sub>B (RE = Y, Nd) 及び REFe<sub>11</sub>Ti (RE = Y, Nd)の多結晶をそれぞれ 20 g 程度用意し、非弾性中性子散乱実験を J-PARC センター 物質・生命科学 実験施設 (MLF) にある BL12-HRC 分光器を用いて行った[2]。試料中の B は吸収の影響を抑えるため<sup>11</sup>B に置換してある。多結晶体の磁気励起の 強度は粉末平均及び磁気形状因子により散乱ベクトルの大きさ q に対し て急激に減衰するため、q=0 近傍の磁気励起を測定する必要がある。今 回の実験は中性子ブルリアン散乱法を用いて測定した。これは、前方散乱 に対する非弾性中性子散乱実験であり、 $q\sim0.1$  Å<sup>-1</sup> 程度までの低角側の 励起を測定できる。

### 実験結果

図1 に YFe<sub>11</sub>Ti の非弾性中性子散乱スペクトルを示す。楔形状に強度が あるところがスピン波によるシグナルである。強磁性体のスピン波は q が小さい領域では q の二次関数( $E = Eg + Dq^2$ )で近似でき、図中にアイガ イドとして示してある。それらの結果をまとめてプロットしたものが図 2 である。 $RE_2Fe_{14}B$  系に置いては、Y を Nd に置換することでスピン波の ギャップが広がり、磁気異方性が大きくなることを示している。一方で  $REFe_{11}Ti$  系においては Y を Nd に置換してもギャップには大きな変化は 見られない。また、 $RE_2Fe_{14}B$  と  $REFe_{11}Ti$  系ではスピン波の速度が大きく 異なることがわかった。詳細な議論は当日行う。

謝辞:本研究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 支援を受けて実施された。試料作成は高効率モーター用磁性材料技術研究 組合の支援のもと行った。非弾性中性子散乱実験は J-PARC にてマルチプ ローブ共同利用実験 (Proposal No. 2015MP004)により行われた。

### 参考文献

[1] K. Ono, et al., J. Appl. Phys. 115, 17A714 (2014)

[2] S. Itoh, et al., J. Phys. Soc. Jpn. 82, SA033 (2013)



図 1: YFe<sub>11</sub>Ti の非弾性中性子 スペクトル。図中の点線は各 q で E 方向にガウシアンフィ ッティングすることにより求 めたスピン波の分散。



### (Sm,Y)(Fe,Co)<sub>12-x</sub>Ti<sub>x</sub>における生成相と磁気特性

萩原 将也、眞田 直幸、桜田 新哉 (株) 東芝 研究開発本部 研究開発センター Structural and magnetic properties of (Sm,Y)(Fe,Co)<sub>12-x</sub>Ti<sub>x</sub> Masaya Hagiwara, Naoyuki Sanada, Shinya Sakurada

Corporate Research & Development Center, Research & Development Division, Toshiba Corporation

### <u>緒言</u>

近年、Sm(Fe,Co)<sub>12</sub>薄膜で1.78 T の高い飽和磁化が報告されるとともに[1]、バルク材料としては従来よりも Ti 濃度の低い(Sm<sub>0.8</sub>Zr<sub>0.2</sub>)(Fe<sub>0.75</sub>Co<sub>0.25</sub>)<sub>11.5</sub>Ti<sub>0.5</sub>において高い磁気物性値が報告されており[2]、ThMn<sub>12</sub>型結晶構 造を有する希土類鉄系化合物が再び注目を集めている。著者らは過去に R-Fe-Si 系において、Zr が希土類サ イトを占有し、希土類サイトの平均原子半径を低下させることによって ThMn<sub>12</sub>型構造が安定化することを 見出しているが[3]、R-Fe-Ti 系においても類似の安定化機構が関与しているものと考えられ、相安定性や磁 気特性に及ぼす希土類サイトの影響についてはさらに系統的な研究が必要である。本研究では、その一環と して、Sm よりも原子半径の小さな Y に着目し、Sm の一部を Y で置換した(Sm,Y)(Fe,Co)<sub>12-x</sub>Ti<sub>x</sub>における生 成相および磁気特性について検討した。

### <u>実験方法</u>

(Sm<sub>0.8</sub>Y<sub>0.2</sub>)(Fe<sub>0.8</sub>Co<sub>0.2</sub>)<sub>12-x</sub>Ti<sub>x</sub> (x=0.5, 0.6, 1)組成の合金インゴットをアーク溶解で作製した後、Ar 雰囲気中 1523 K で 25~50 h の熱処理を施すことにより試料を作製した。試料における生成相および微細組織は XRD、SEM を用いて評価した。磁気特性は VSM を用い 300K にて印加磁場 9T まで測定した。測定試料は試料粉末を溶融パラフィン中 2T の磁場で配向させた後に固化することで作製した。反磁界補正は行わなかった。

### <u>実験結果</u>

Fig.1 に各試料の XRD プロファイルを示す。Sm の 20 原子%をYで置換することによって、x=0.6までTi量を 低減しても x = 1 の場合と同様 α-(Fe,Co)相からの回折ピ ークはほとんど見られず、ThMn<sub>12</sub>型相がほぼ単相状態で 得られることが明らかになった。Y 置換に伴う希土類サ イト平均原子半径の低下が ThMn<sub>12</sub>型相の安定性向上に 寄与したものと推測される。一方、x=0.5 まで Ti 量を低 下すると、α-(Fe,Co)相のピークが明確に現れるとともに、 ThMn12型相特有の(310), (002), (202), (222)面からの回折 ピーク強度が低下した。ThMn12型相ほぼ単相が得られた x=0.6.1の各試料の磁化容易軸方向および磁化困難軸方 向のMHカーブをFig.2に示す。容易軸方向と困難軸方 向の外挿線の交点から求めた飽和磁化と異方性磁界はそ れぞれ $\mu_0 M_s = 1.34 \text{ T}, \mu_0 H_a = 11 \text{ T} (x = 1), \mu_0 M_s = 1.50 \text{ T}, \mu_0 H_a$ =11T(x=0.6)であり、Ti量の低減により飽和磁化が向上 することが確認できた。

### 参考文献

- 1) Y. Hirayama et al. Scr. Mater. 138 (2017) 62-65.
- 2) T. Kuno et al. AIP Adv. 6 (2016) 025221.
- 3) S. Sakurada et al. J. Alloys. Compd. 187 (1992) 67-71.



Fig.1 XRD patterns of (Sm<sub>0.8</sub>Y<sub>0.2</sub>)(Fe<sub>0.8</sub>Co<sub>0.2</sub>)<sub>12-x</sub>Ti<sub>x</sub> (x=0.5, 0.6, 1).



Fig.2 Magnetization curves of (Sm<sub>0.8</sub>Y<sub>0.2</sub>)(Fe<sub>0.8</sub>Co<sub>0.2</sub>)<sub>12-x</sub>Ti<sub>x</sub> (x=0.6, 1).

### Nd-Fe-B 磁石における強磁性共鳴の温度依存性

西野正理<sup>1</sup>、宮下精二<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>物材機構、<sup>2</sup>東大院理)

Temperature dependence of the ferromagnetic resonance of Nd-Fe-B magnets

Masamichi Nishino<sup>1</sup> and Seiji Miyashita<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>NIMS, <sup>2</sup>Univ. of Tokyo)

### イントロダクション

ネオジム磁石 Nd2Fe14B は高い保磁力を持つ永久磁石として知られ、モーターや発電機など広い範囲で商 用に利用されている[1]。しかし、保磁力機構は未解明の部分も多く、その解明には磁化ダイナミクスの機構 の理解が不可欠である。磁石の理論計算は、マイクロマグネティクスにおける連続体モデルによるシミュレ ーションの研究が主に行われてきたが、機構のミクロなスケールからの解明には、原子論からの微視的なモ デルに基づくダイナミクスの解析[2]が必要である。我々は、微視的モデルからの磁石の動的特性の理解をめ ざしている。今回我々は、ネオジム磁石の原子論的スピンモデルを用いて強磁性共鳴周波数の温度依存性を 調べ、その非単調な振る舞いを見いだした。

### 磁化ダイナミクス

 $\mathcal{H} = -\sum_{i < j} 2J_{ij} \boldsymbol{s}_i \cdot \boldsymbol{s}_j - \sum_i^{\text{Fe}} D_i (s_i^z)^2 + \sum_i^{\text{Nd}} \sum_{l,m} \Theta_{l,i} A_{l,i}^m \langle r^l \rangle_i \hat{O}_{l,i}^m$ スピンモデルは次のように与えられ、 交換相互作用や磁気異方性の値は、第一原理計算あるいは実験から決められたものを使用した[3.4.5]。 モデルは T=150 K 付近で磁気再配列転移を示し、実験値をほぼ再現する。また、臨界温度は Tc~800 K であ り、実験値のTc~600-700Kよりは少し高いが、総じてモデル化が妥当なことを示している。我々は、磁化 ダイナミクスを記述する基礎方程式である Landau-Lifshitz-Gilbert(LLG)方程式に熱揺らぎ(温度効果)を正し く取り込んだ方法論(Stochastic LLG法)[2]を用いて Power Spectrum を計算した。このピーク位置に相当す る周波数が共鳴周波数に相当する。我々は、Power Spectrum の温度依存性の解析において、図1のようにピ ークの周波数位置が温度上昇とともに一度上昇して下降するという、非自明な振る舞いを見出した。本講演 では、この非自明な温度依存性は磁気再配列転移を示す系に普遍的なものであり、その起源は、再配列にお

いておこる内部磁場の特徴的な変化に由来することを理論的に示す。



図1 Power Spectrum の温度依存性。

### 参考文献

- S. Hirosawa, M. Nishino and S. Miyashita, Adv. Nat. Sci.: Nanosci. Nanotechnol. 8, 013002 (2017). 1)
- M. Nishino and S. Miyashita, Phys. Rev. B. 91, 134411 (2015). 2)
- Y. Toga et al., Phys. Rev. B 94, 174433 (2016). 3)
- M. Nishino, Y. Toga, S. Miyashita, H. Akai, A. Sakuma, S. Hirosawa, Phys. Rev. B 95, 094429 (2017). 4)
- T. Hinokihara, M. Nishino, Y. Toga, and S. Miyashita, Phys. Rev. B 97, 104427 (2018). 5)

### 磁化反転における粒界相の効果

塚原宙、岩野薫、三俣千春<sup>1</sup>、石川正、小野寛太 (高エネ研,<sup>1</sup>物材機構)

Effects of grain boundary phases on magnetization reversal process

H. Tsukahara, K. Iwano, C. Mitsumata<sup>1</sup>, T. Ishikawa, and K. Ono $({\rm KEK},\,^1{\rm NIMS})$ 

### はじめに

温暖化などの環境問題が深刻さを増しておりヨーロッパ諸国など多数の国々で電気自動車への以降が進んで いる. 高エネルギー効率な電気自動車には高性能な永久磁石が不可欠であり精力的に研究されている. 永久磁 石の保持力は浸透処理により改善される. 浸透処理により各粒子間に存在する粒界相が改善され粒子間の磁 壁移動を阻害する. しかしながら磁化反転過程における粒界相の働きは完全には理解されていない. 我々は減 磁過程における粒界相の効果を大規模シミュレーションを用いて研究を行った.

計算手法

多数の立方体粒子を格子状に並べた異方性磁石モデルを用いて減磁過程のシミュレーションを実行した (図1(a)参照). 異方性磁石モデル1辺の長さは1024nm であり各粒子の粒径は62nm である. また粒 界相は図1(b),(c)に示されるように z 軸方向のみもしくは全ての方向に粒界相がある場合を考え、それ ぞれ type A および type C とした. シミュレーションでは外部磁場を z 方向に印加し Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式を有限差分法を用いて周期境界条件下で計算した. 異方性磁石モデルは1辺2nmの多数の 立方体セルで分割し、Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>Bを想定し粒子内では飽和磁化1281.2 emu/cm<sup>3</sup>、磁気異方性定数4.5×10<sup>7</sup> erg/cm<sup>3</sup>、交換スティフネス定数12.5×10<sup>-7</sup> erg/cm とした. 粒界相では主相粒子に比べ飽和磁化は10%、 交換スティフネス定数は1%とし、磁気異方性は無いとした. 各粒子の容易軸は z 軸から Δθ 傾いており、

平均の  $\Delta \theta$  は 11.6 °である. シミュレーションで は独自に開発したシミュレーターを使用した [1]. 結果

Type A および C の減磁曲線を図 1(d) に示す. 減磁曲線は 2 つの粒界相によらずほぼ同じ形状を 持ち、図 1(e) および (f) に示す様に磁化反転した 領域もどちらの場合も z 軸方向に広がる傾向を持 つ.しかしながら反転する粒子の  $\Delta \theta$  は粒界相に より大きく異なる.図 1(g) に保持力近傍における 磁化反転した粒子 (青線)としない粒子 (赤線) の  $\Delta \theta$  に対するヒストグラムを示す.Type A で は磁化反転の有無にかかわらずヒストグラムは同 じ形状の曲線となる.これに対し type B では小 さな  $\Delta \theta$  を持つ粒子では磁化反転を起こさない傾 向があり type A と顕著な違いを示す.

### 謝辞

本研究の一部は、高エネルギー加速器研究機構 (KEK)の大型シミュレーション研究(課題番号 16/17-25)により行われた.

H. Tsukahara, K. Iwano, C. Mitsumata, T. Ishikawa, K. Ono, Comput. Phys. Commun, 207, 217 (2016).



Fig 1: The simulation model (a), the grain boundary phase of type A (b) and C (c). The black lines represent the grain boundary phase. The calculated hysteresis curve (d), and the magnetization of type A (e) and C (f) at coercive field. The histograms of (g) the grains with  $m_z > 0$  and (h)  $m_z < 0$ .  $N_g$  is the number of the grains.