

令和 2 年 6 月 30 日現在

機関番号：74301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K06781

研究課題名(和文) 保磁力の配向度依存性と角度依存性の相関による磁化反転プロセスの解明

研究課題名(英文) The elucidation of magnetization reverse process obtained from the alignment dependence of coercivity and the angular dependence of coercivity

研究代表者

松浦 裕 (Matsuura, Yutaka)

公益財団法人応用科学研究所・その他部局等・特別研究員

研究者番号：90787392

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：Nd-Fe-B焼結磁石およびフェライト磁石の保磁力の配向度依存性と保磁力角度依存性を調べ、これら磁石の保磁力は磁壁移動で保磁力は決定されると言う結論を得た。保磁力の配向度依存性と保磁力の角度依存性はお互い関係しており、これらの現象は保磁力メカニズムの1側面であることが明らかとなった。これら磁石の磁化反転は、保磁力より低い磁界で離散的に結晶粒の磁化反転が起こり、保磁力近傍で離散的に反転した結晶の周辺の結晶が反転するという異なる2つのプロセスにより保磁力が決定される。保磁力の配向度依存性から得られた結果を用いると保磁力角度依存性の低角度側の挙動を説明することが出来ることが明らかとなった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

これまで保磁力のメカニズムについてはどのようなメカニズムで決定されているかについて多くの議論がなされていた。今回保持力の配向度依存性および保磁力の角度依存性の研究から、Nd-Fe-B焼結磁石およびフェライト磁石の保磁力が磁壁移動で決定されることが分かった。また磁気特性とSPring-8のX線磁気円二色性分光を使った研究から、これら磁石の保磁力が低磁界での結晶の離散的な反転と保磁力近傍の隣接粒子の磁化反転という、二つの異なる現象から生じていることを明らかにした。これらの研究結果を使えば、保磁力の起源だけでなく産業界に最も多く使われている、これら磁石の保磁力改善への示唆を与えるものと確信している。

研究成果の概要(英文)：We investigated the alignment dependence of coercivity (ALDC) and the alignment dependence of coercivity (ANDC) in Nd-Fe-B sintered magnets and ferrite magnets. From these experimental results, it was found that coercivities of these magnets are determined by the magnetic domain wall motion. ALDC and ANDC correlate with each other, and these are one of aspects caused from the coercivity mechanism of these magnets. The magnetization reverse process proceeds in different two steps. One process occurs in low magnetic field compared with coercivity where small number of grains reverses independently. The other process happens in magnetic field close to the coercivity, where peripheral grains existed in the vicinity of independently reverse grain reverse by the magnetic domain wall motion, then coercivity is determined. Using the results obtained from ALDC, it was found that the behavior of ANDC in low angle could be explained.

研究分野：磁石材料

キーワード：Nd-Fe-B焼結磁石 フェライト磁石 永久磁石 保磁力 保磁力メカニズム 配向度

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

Nd-Fe-B 磁石は主相である  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  結晶粒と、その周りを取り巻く Nd を多く含む Nd-rich および Nd-rich 相、Nd 酸化物および B を多く含む B-rich 相からなる三重点から構成されている。また Nd-rich 相や三重点に含まれる Nd-rich 相および B-rich 相はその組成から室温では磁性を持っていないことが推測されていた。また主相である  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  結晶粒は、ほぼ単結晶であり、その内部に磁壁を止めるような微細組織を持たないことも明らかとなっている。このことから Nd-Fe-B 焼結磁石の磁化反転機構あるいは保磁力メカニズムについて様々な議論がなされてきた。

ドイツの Kuronmuller らは、この磁石の上記構成相の特性から、この磁石の保磁力は主相粒界の異方性磁界の弱い所で磁化反転の芽が生じたのち、粒子全体の磁化が一斉回転することで保磁力が決定されるとするニュークリエーションモデルを提唱した。

またフランスの Givord らは同じく主相粒界の異方性磁界の弱い所で、熱揺らぎの活性化体積が磁壁に成長する過程を通して、逆磁区が生じ主相結晶粒中に磁壁が侵入する事により磁化反転が完了するという考えを提唱した。

この2つのプロセスのどちらがこの磁石で起こっているのかを確かめる方法として保磁力の角度依存性が用いられてきたが、決着がつかないと言えない。

### 2. 研究の目的

本研究者らは 2005 年に Nd-Fe-B 焼結磁石の世界最高性能を達成する過程で、主相結晶粒の配向度( $\alpha$ )を等方性磁石から上げるに従い保磁力は減少し、特に高い配向度領域で保磁力が急激に減少することを見出した。この保磁力と配向度の関係は Nd-Fe-B 焼結磁石だけに見られる現象ではなく、フェライト磁石においても観測されることが明らかとなった。

この現象を多結晶磁石の減磁過程について適用すると、磁化の一斉回転の場合、磁石の保磁力は配向と共に増加するという結果となり、実験で得られた減少を説明することができない。また磁壁移動で保磁力が決定されるとすると保磁力は等方性磁石から配向と共に減少し、完全配向( $\alpha=1$ )で等方性磁石の  $1/\sqrt{2}$  となり、この結果は高配向度領域での保磁力減少を外挿した値に一致することが明らかとなった。したがって、Nd-Fe-B 焼結磁石およびフェライト磁石の保磁力は磁壁移動で保磁力が決定されていると推定される。

ところが、その後の研究でこの配向度依存性は全ての粒子が独立に磁壁移動で磁化反転すると仮定し配向度依存性を求めると実験の配向度依存性を説明できないことから、これら磁石では粒子が独立に磁化反転するのではなく、複数の粒子が関与した磁化反転により保磁力が決定されていることが推定される。

また保磁力の配向度依存性の温度変化および保磁力角度依存性の温度変化から、これらの依存性はお互い関係しており、これら依存性は同じ保磁力メカニズムから得られる別側面であることが推定される。

これらの結果を明確にし、これら磁石の磁化反転がどのように進行するのかを明確にすることを目的として本研究を行った。

### 3. 研究の方法

$\text{Nd}_{14.2}\text{B}_{6.2}\text{Co}_{1.0}\text{Fe}_{\text{bal.}}$ 、 $\text{Nd}_{14.2}\text{Dy}_{0.3}\text{B}_{6.2}\text{Co}_{1.0}\text{Fe}_{\text{bal.}}$ 、 $\text{SrO} \cdot 6\text{Fe}_2\text{O}_3$  および  $\text{Nd}_{14.79}\text{Ga}_{0.57}\text{B}_{5.24}\text{Co}_{1.11}\text{Fe}_{\text{bal.}}$  の保磁力の配向度依存性と角度依存性の組成による違いと両者の規則性について調査を行い、得られた規則性から Nd-Fe-B 焼結磁石およびフェライト磁石の保磁力が決定される要因について推定を行った。また Spring-8、BL25SU の X 線磁気円二色性(XMCD)法により磁化反転過程について観察を行い磁気測定で得られた結果との整合性について確かめた。

### 4. 研究成果

本研究から、Nd-Fe-B 焼結磁石およびフェライト磁石では図 1 に示す通り、これら磁石の保磁力変化率( $\beta$ )は配向度( $\alpha$ )が等方性磁石上昇と共に減少することが分かった。

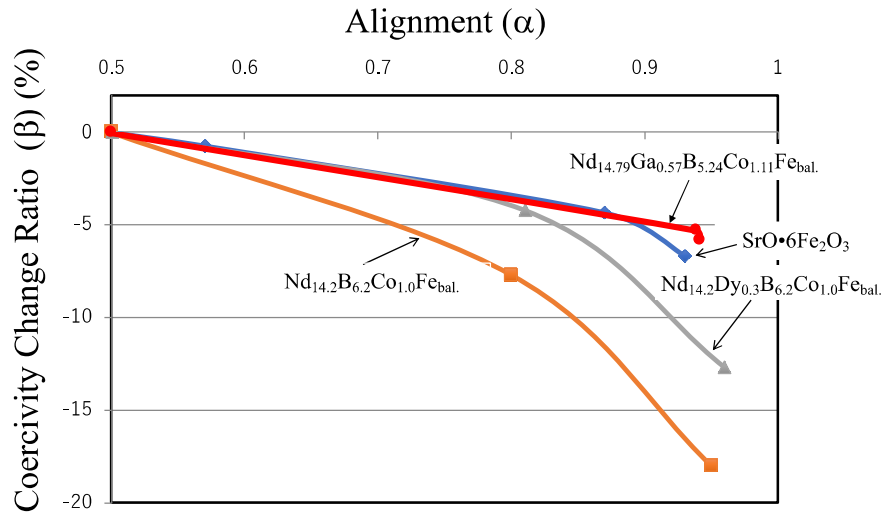


図1. Nd-Fe-B焼結磁石およびフェライト磁石の保磁力変化率の配向度依存性  
Fig. 1 Alignment dependence of coercivity change ratio ( $\beta$ )

しかし、その減少の仕方は同じではなく組成によって異なっており、 $\text{Nd}_{14.2}\text{B}_{6.2}\text{Co}_{1.0}\text{Fe}_{\text{bal}}$ 、 $\text{Nd}_{14.2}\text{Dy}_{0.3}\text{B}_{6.2}\text{Co}_{1.0}\text{Fe}_{\text{bal}}$ 、 $\text{Nd}_{14.79}\text{Ga}_{0.57}\text{B}_{5.24}\text{Co}_{1.11}\text{Fe}_{\text{bal}}$  および  $\text{SrO} \cdot 6\text{Fe}_2\text{O}_3$  の順に小さくなり、組成依存性があることが明らかとなった。この結果を用いて保磁力の角度依存性を説明するために、磁化の値が0となる点を保磁力とし磁化反転領域角度( $\theta_1$ )を定義し、実験から求めた $\theta_1$ と比較し図2に示す。

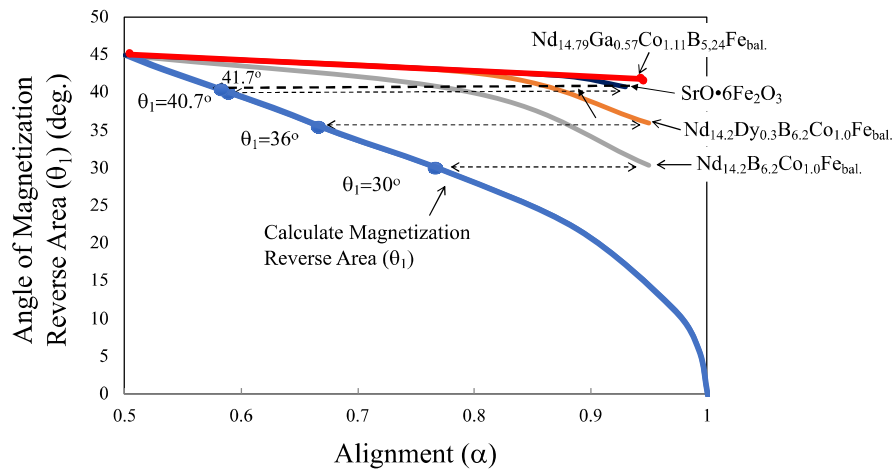


図2 保磁力変化率( $\beta$ )および計算から求めた $H_{c1}$ 点での磁化反転領域角度( $\theta_1$ )  
Fig. 2 Magnetization Reverse Area( $\theta_1$ ) obtained from coercivity change ratio ( $\beta$ )

この図から分かるように $\alpha$ から結晶の配向分布求め、全ての結晶粒子が独立に磁壁移動で磁化反転すると仮定して計算した $\theta_1$ は図の青線で示されている。この計算で求めた $\theta_1$ に比べ、実験から得られた $\theta_1$ は大きく異なっていることが分かる。このことは全ての粒子が独立して磁化反転すると $\alpha=0.95$ 付近の磁石であれば磁化容易方向から十数度付近の結晶が磁化反転すれば保磁力が決定されるのに対して、実際の磁石では $30^\circ$ から $41.7^\circ$ と大きく広がっており、これら磁石では全ての粒子が独立に磁化反転しているのではなく、何らかの集団で磁化反転していることを強く示唆している。

この実験から得られた実磁石の $\theta_1$ を用い、球面三角法を使って保磁力の角度依存性の計算を行い実験で得られたこれら磁石の保磁力の角度依存性と比較した。図3は $\text{Nd}_{14.2}\text{B}_{6.2}\text{Co}_{1.0}\text{Fe}_{\text{bal}}$ 、 $\text{Nd}_{14.2}\text{Dy}_{0.3}\text{B}_{6.2}\text{Co}_{1.0}\text{Fe}_{\text{bal}}$ 、 $\text{SrO} \cdot 6\text{Fe}_2\text{O}_3$ の保磁力の角度依存性(実線)と配向度依存性から得られた $\theta_1$ を計算で求めた結果(破線)と比較したものである。

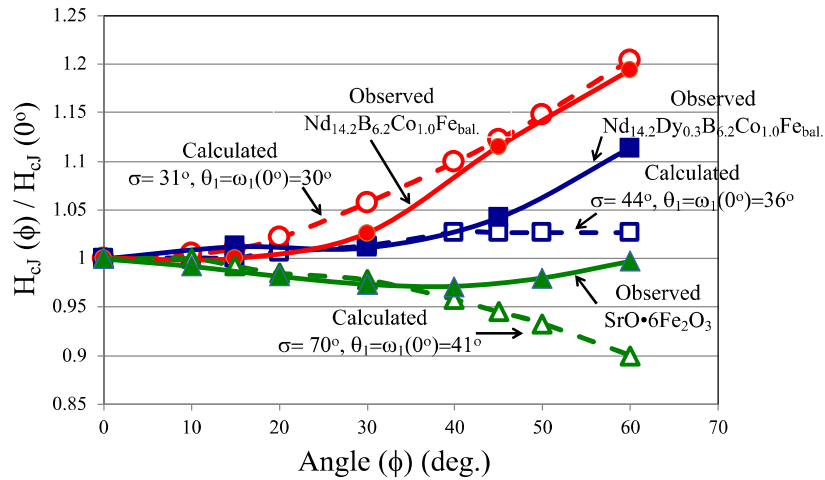


図3 保磁力の角度依存性の実測値（実線）と計算値（破線）  
 Fig.3 Angular Dependence of Coercive Force of Aligned Magnets.  
 Observed (solid line), Calculation (Dotted line)

図から保磁力の角度依存性は  $\text{Nd}_{14.2}\text{B}_{6.2}\text{Co}_{1.0}\text{Fe}_{\text{bal}}$ 、 $\text{Nd}_{14.2}\text{Dy}_{0.3}\text{B}_{6.2}\text{Co}_{1.0}\text{Fe}_{\text{bal}}$ 、 $\text{SrO} \cdot 6\text{Fe}_2\text{O}_3$  になるに従い変化は小さくなることを示した。フェライト磁石では保磁力は  $0^\circ$  から  $40^\circ$  まで減少し、その後増加することが分かった。フェライト磁石のこの保磁力角度依存性は一変すると磁化の一斉回転で生じる保磁力角度依存性の様に思われる。しかし、フェライト磁石の保磁力の配向度依存性から保磁力は配向度の向上とともに低下すること、および  $\theta_i$  から求めた保磁力の角度依存性は低角度側の保磁力の挙動を説明できていることから、フェライト磁石の保磁力は磁壁移動で決定されていると思われる。高角度側で計算値がずれる原因について、配向度依存性は磁界方向と配向方向が一致している  $0^\circ$  の情報であること。および用いたモデルが全ての粒子が独立に磁壁移動 ( $1/\cos \theta$ ) で磁化反転すると仮定していることから生じているものと推定している。

図2の Ga を添加した  $\text{Nd}_{14.79}\text{Ga}_{0.57}\text{B}_{5.24}\text{Co}_{1.11}\text{Fe}_{\text{bal}}$  はフェライト磁石より僅かに大きい  $\theta_i$  を示すことから、この磁石の保磁力の角度依存性はフェライトと同じく  $0^\circ$  から減少し高角度側で増加することが予想される。またフェライトより少し大きい  $\theta_i$  からフェライト磁石より減少幅は大きくなることを予想される。

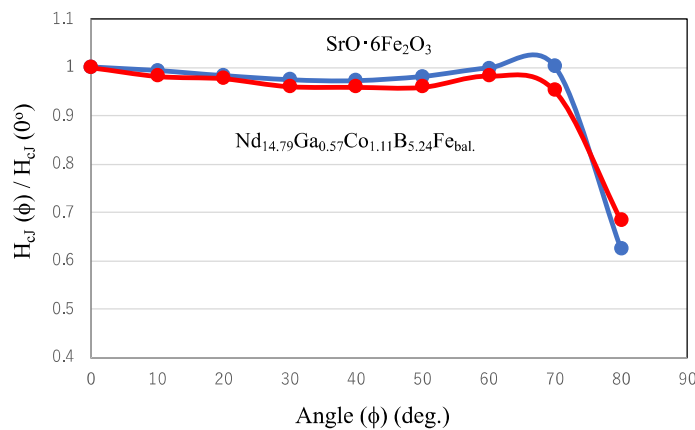


図4 Ga添加Nd-Fe-B焼結磁石とフェライト磁石の保磁力角度依存性の比較  
 Fig. 4 Comparison of the Angular Dependence of Coercivity of Ga-doped Nd-Fe-B Sintered Magnets and Ferrite magnets

図4は  $\text{SrO} \cdot 6\text{Fe}_2\text{O}_3$  と  $\text{Nd}_{14.79}\text{Ga}_{0.57}\text{B}_{5.24}\text{Co}_{1.11}\text{Fe}_{\text{bal}}$  の保磁力角度依存性を示している。 $\text{Nd}_{14.79}\text{Ga}_{0.57}\text{B}_{5.24}\text{Co}_{1.11}\text{Fe}_{\text{bal}}$  では  $\theta_i$  から予想されるように保磁力は  $0^\circ$  から減少し、 $40^\circ$  以降で増加するという結果となった。またフェライト磁石より減少幅は大きく、 $\theta_i$  から予想される結果を示していることが分かった。

これまでの結果は保磁力の配向度依存性の温度変化および保磁力角度依存性の温度変化から、これらの依存性はお互い関係しており、これら依存性は同じ保磁力メカニズムから得られる別側面であると言う、これまでの推定を強く支持する結果となった。

最近の軟 X 線磁気円二色性分光法(XMCD)の観測から Nd-Fe-B 焼結磁石およびフェライト磁石の減磁過程は保磁力より低い低磁界側すなわち減磁曲線の直線部分で減磁界の増加と共に連続的に起こる  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  結晶粒の離散的な磁化反転が観測され、保磁力近傍では低磁界側で起こった離散的に磁化反転した結晶の周りの結晶が磁壁移動により磁化反転することが確かめられている。この直線部分で観測される離散的な結晶の磁化反転は Nd-Fe-B 焼結磁石のリコイルカーブで見られる僅かな減磁に一致していると考えられ、この減磁は表面劣化層とは異なっており、磁石全体に均一に分布していると考えられる。 $\theta_1$ の大きさは、この低磁界で起こる離散的に磁化反転する結晶粒の数と、保磁力近傍で磁壁移動により磁化反転する結晶の数に関係しているものと思われる。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Yutaka Matsuura	4. 巻 54
2. 論文標題 Coercivity Mechanism of SrO·6Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Ferrite Magnets	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 IEEE Transaction on Magnetism	6. 最初と最後の頁 2101405
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1109/TMAG.2018.2835481	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Yutaka Matsuura, Tetsuya Nakamura, Kazushi Sumitani, Kentaro Kajiwara, Ryuji Tamura, Kozo Osamura	4. 巻 -
2. 論文標題 Angular Dependence of Coercivity Derived from Alignment Dependence of Coercivity in Nd-Fe-B Sintered Magnets	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063 / 1.4985740	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Yutaka Matsuura, Tetsuya Nakamura, Kazushi Sumitani, Kentaro Kajiwara, Ryuji Tamura, Kozo Osamura	4. 巻 -
2. 論文標題 Angular Dependence of Coercivity in Isotropically Aligned Nd-Fe-B Sintered Magnets	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063 / 1.5005040	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 松浦 裕	4. 巻 MAG-17-094
2. 論文標題 Nd-Fe-B焼結磁石の保磁力配向度依存性から導かれる保磁力メカニズム	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 電気学会 マグネティクス研究会	6. 最初と最後の頁 43, 46
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 松浦 裕	4. 巻 MAG-17-234
2. 論文標題 Nd-Fe-B焼結磁石の保磁力の温度依存性から得られる磁化反転挙動	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 電気学会 マグネティクス研究会	6. 最初と最後の頁 25, 30
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Y. Matsuura, T. Nakamura, K. Ishigami, K. Kajiwara, K. Sumitani, R. Tamura, M. Nagae, K. Osamura	4. 巻 55
2. 論文標題 Coercivity Mechanism of Ga-doped Nd-Fe-B Sintered magnets	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 IEEE Transaction on Magnetism	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.13140/RG.2.2.21486.56644	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計7件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 3件)

1. 発表者名 Yutaka Matsuura
2. 発表標題 Coercivity Mechanism of SrO <sub>6</sub> Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Ferrite Magnets
3. 学会等名 Intermag2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Yutaka Matsuura
2. 発表標題 Coercivity Mechanism for Nd-Fe-B Sintered Magnets and Ferrite Magnets Derived from the Relation between the Alignment Dependence of Coercivity and the Angular Dependence of Coercivity
3. 学会等名 International Symposium on Magnetism and Magnetic Materials 2018 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Matsuura, T. Nakamura, K. Sumitani, K. Kajiwara, Ryuji Tamura, K. Osamura,
2. 発表標題 Angular Dependence of Coercivity in Isotropically Aligned Nd-Fe-B Sintered Magnets
3. 学会等名 62nd Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials (MMM 2017) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Y. Matsuura, T. Nakamura, K. Sumitani, K. Kajiwara, Ryuji Tamura, K. Osamura
2. 発表標題 Angular Dependence of Coercivity Derived from Alignment Dependence of Coercivity in Sintered Nd-Fe-B Magnets
3. 学会等名 第41回日本磁気学会学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 松浦 裕
2. 発表標題 SrO <sub>6</sub> Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> フェライト磁石の磁化反転メカニズムについて
3. 学会等名 日本金属学会2018年春季(第162回)講演大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Matsuura, T. Nakamura, K. Ishigami, K. Kajiwara, K. Sumitani, R. Tamura, M. Nagae, K. Osamura
2. 発表標題 Coercivity Mechanism of Ga-doped Nd-Fe-B Sintered magnets
3. 学会等名 64th Annual Conference on Magnetism and magnetic Materials (国際学会)
4. 発表年 2019年



1. 発表者名 杉山 将崇、丸山 涼、上里 幸平、中村 哲也、梶原 堅太郎、隅谷 嗣、小谷 佳範、石上 啓介、松浦 裕、田村 隆治
2. 発表標題 走査型軟X線MCD顕微鏡を用いたSrO・6Fe2O3永久磁石の磁区構造解析
3. 学会等名 日本金属学会 春季大会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	長村 光造  (Osamura Kozo)  (50026209)	公益財団法人応用科学研究所・その他部局等・理事・特別研究員    (74301)	