

令和 3 年 5 月 27 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K04678

研究課題名(和文)希土類永久磁石材料の高性能化に向けた電子論

研究課題名(英文)Electronic Theory for High-Performance Rare Earth Permanent Magnets

研究代表者

吉岡 匠哉 (YOSHIOKA, Takuya)

東北大学・工学研究科・特任助教

研究者番号：00724387

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究課題では、希土類永久磁石における磁気特性の微視的・定量的な理論的記述を確立し、高性能磁石開発の指針を与えることを目的とする。まず、局在4f電子と伝導電子が磁氣的相互作用をもつモデルを構築し、実験で観測されるスピン再配列転移を再現することを明らかにした。さらに、4f-3d軌道の混成が強いとされるCe系遷移金属化合物については、その軌道の混成効果を取り入れた微視的有効モデルを構築し、その有効性を検証した。その結果、特定のパラメータ領域において実験で観測されている有限温度の磁気異方性を定性的に説明することが可能になった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

現在、希土類永久磁石材料の需要の急増にともない、希少元素に依らない大量生産可能な次世代磁石の開発研究が盛んに行われている。希土類永久磁石はこれまで物性研究者が主たる研究対象としてこなかった系であるため、電子論に基づく基礎的課題が残されている。

本研究課題によって、磁気異方性の発現機構の基礎的な理解が深まるとともに、有限温度磁気特性に対して軌道混成効果が与える影響を明らかにし、点に学術的意義がある。また、これらは電子論に基づいて磁気特性を予測する指針を与えるものである点に社会的意義がある。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this study is to establish a microscopic and quantitative theoretical description of the magnetic properties of rare-earth permanent magnets and to provide guidelines for the development of high-performance magnets. First, we construct a model of the magnetic interaction between localized 4f electrons and conduction electrons, which reproduces the spin-rearrangement transition observed in experiments. Furthermore, for Ce transition metal compounds, which are known to have strong hybridization of 4f-3d orbitals, we constructed a microscopically effective model that incorporates the hybridization effect of the orbitals and verified its validity. As a result, it became possible to qualitatively explain the experimentally observed magnetic anisotropy at finite temperature in a specific parameter region.

研究分野：物性理論

キーワード：希土類永久磁石 金属磁性 磁性理論

1. 研究開始当初の背景

希土類永久磁石は 1970 年代から実用材料として用いられ、合金磁石の性能を飛躍的に更新した。現在では元素戦略的見地から高性能磁石を生み出す材料研究が盛んに行われている。希土類元素固有の局所的な磁気異方性は、希土類磁石の性能と密接に関連しているが、電子論に基づいた微視的記述は未だに不十分である。このため、非経験的電子論に基づく解析を行い、永久磁石材料の高性能化への指導原理を早急に構築する必要があった。

2. 研究の目的

本研究課題では、上で述べた問題点を踏まえて、特に局所磁気異方性とその伝達機構に着目し、希土類永久磁石における磁気特性の微視的・定量的な理論的記述を確立することを目的とする。そのために、以下のテーマを取り上げて系統的に研究を展開する。

希土類元素と遷移金属元素からなる金属間化合物を対象として第一原理電子状態計算を実行し、これに基づいて各元素が担う磁気的性質を明らかにする。局在 4f 電子系については、従来の結晶場理論に伝導電子との軌道混成効果を導入した手法 (Wannierization 法) によって有限温度の局所磁気異方性を精密に評価する。遍歴 3d 電子系については、バンド理論で求まる基底状態に有限温度でのスピン揺らぎの効果を取り入れた理論によって磁化の温度依存性を記述する。次に、希土類永久磁石における有限温度のバルク磁気特性を明らかにするため、上で述べた 4f、3d 電子系が共存する微視的有效モデルを構築する。これに固体内電子の強い相関効果を非摂動論的に扱える手法を適用し、4f 電子のもつ局所磁気異方性が 3d 電子系の持つ磁化に伝達する機構を明らかにする。

以上の具体的な課題を通して、希土類永久磁石材料の高性能化に向けた電子論を構築し、これによって、新規磁性材料開発のための指針を理論的に提案することを目標とした。

3. 研究の方法

本研究では、希土類 4f 電子が担う局所磁気異方性が遷移金属 3d 電子が担う磁化に伝達される機構を明らかにする。そのために、以下の手順を採用する。

第一原理計算によって、希土類・遷移金属間化合物の電子状態を正確に求める。従来の 4f 電子に対する結晶場理論に伝導電子との軌道混成効果を導入した Wannierization 法を適用することにより、単一希土類イオンにおける局所磁気異方性を正確に求める。遍歴 3d 電子系に関しては、バンド理論で求まる基底状態にスピン揺らぎの効果を導入した SCR 理論を適用することにより、遷移

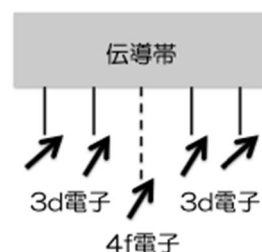


図 1. 微視的有效モデル

金属副格子上の磁化の温度依存性を明らかにする。上で求めた 4f 電子が担う局所磁気異方性と 3d 電子が担う磁化をつなぐ微視的モデルを構築する(図 1)。これは周期的アンダーソンモデルと呼ばれる電子論的理論モデルであり、強相関電子系の研究において発展してきた動的平均場理論を適用することによって、精密な解析が可能となる。この 4f-3d 電子系の局所磁気異方性とその伝達機構に基づく解析によって、磁化曲線といった有限温度のバルク磁気特性を定量的に評価する。そこで得られた計算結果を実験と比較することで、ここで提案した希土類永久磁石化合物に対する電子論的手法の有効性を明らかにする。

こうして、電子論的手法を確立した後、新規希土類磁石における有限温度の磁気特性を評価し、その性能を理論的に予測する。

4. 研究成果

$\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ を対象として、局在 4f 電子と伝導電子が磁気的相互作用をもつモデルを構築した。このモデルを用いて有限温度の磁化曲線について調べた結果、 $T_{\text{SR}}=150$ K において、スピン再配列転移が実現し、 $T < T_{\text{SR}}$ の低温領域では、磁化が c-軸から傾いた状態が実現することを明らかにした(図 2)。

また、価数揺動物質として知られる Sm 系化合物について、4f 電子の価数の変化を考慮した解析を行った。

その結果、特定の状況で $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ 系化合物の有限温度磁気特性について実験と比較可能な結果が得られることを明らかにした(図 3)。これらの成果は論文として出版されている。

さらに、4f-3d 軌道の混成が強いとされる Ce 系遷移金属化合物については、その軌道の混成効

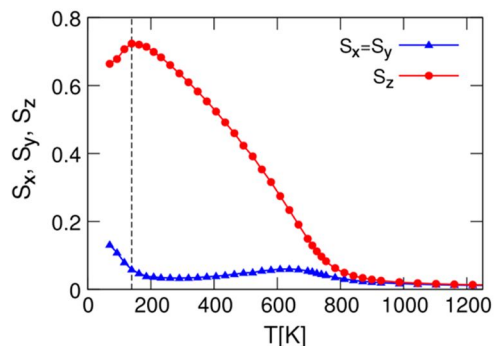


図 2. スピン構造因子の温度依存性

果を取り入れた微視的有効モデルを構築し、その有効性を検証した。その結果、 $\text{Ce}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ においては混成が強まると磁気異方性が低下することを明らかにした。一方で、希土比率の大きい CeCo_5 化合物においては、混成が弱いところでは面内磁気異方性、混成が強いところでは一軸磁気異方性が発現することを明らかにした。これらの結果から、特定のパラメータ領域において実験で観測されている有限温度の磁気異方性を定性的に説明することが可能になった。また、希土類イオンの 4f 電子が担う磁気異方性の解析的な表式を導出し、複雑な理論モデルに磁気異方性の効果を取り入れることが容易となった。

本研究によって、希土類永久磁石において重要となる磁気異方性を担う 4f 電子の理論的扱いについて、新たな視点を与えることになった。ここで構築した Ce 系化合物に対するモデルは、国内外においても類を見ないものである。今後、本研究課題で構築した理論的枠組を用いて、新規磁石材料の探索を行う。

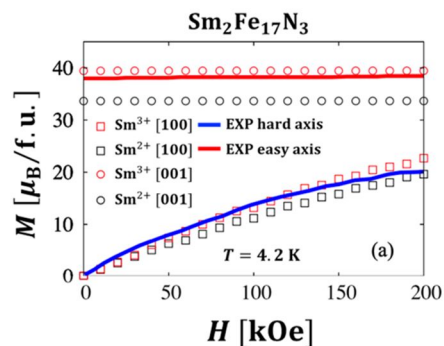


図 3. 磁化曲線の計算結果. 実線は実験結果を表す.

今後、本研究課題で構築した

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 8件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Y. Taguchi, J. Nasu, A. Koga, T. Yoshioka, H. Tsuchiura	4. 巻 196
2. 論文標題 Magnetic Properties in the Metallic Magnets with Large Anisotropy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Low Temperature Physics	6. 最初と最後の頁 321-326
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s10909-019-02200-y	査読の有無 有
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 D. Ogawa, T. Yoshioka, X. D. Xu, Y. K. Takahashi, H. Tsuchiura, T. Okubo, S. Hirose	4. 巻 497
2. 論文標題 Magnetic Anisotropy Constants of ThMn12-type Sm(Fe _{1-x} Cox) ₁₂ Compounds and Their Temperature Dependence	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Magnetism and Magnetic Materials	6. 最初と最後の頁 165965, 1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jmmm.2019.165965	査読の有無 有
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 S. Yamashita, D. Suzuki, T. Yoshioka, H. Tsuchiura, P. Novak	4. 巻 102
2. 論文標題 Finite-Temperature Magnetic Properties of Sm ₂ Fe ₁₇ N _x Using an Ab Initio Effective Spin Model	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 214439, 1-7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/physrevb.102.214439	査読の有無 有
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 該当する
1. 著者名 H. Sato, Y. Kubo, T. Yoshioka, H. Tsuchiura, Y. Mizuno, K. Koike, K. Takahashi, H. Kato	4. 巻 11
2. 論文標題 Reduction of Nd Moments and Local Magnetic Anisotropy in Nd ₂ Fe ₁₄ B Single Crystals	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 025224, 1-4
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/9.0000148	査読の有無 有
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 T. Yoshioka, H. Tsuchiura, P. Novak	4. 巻 102
2. 論文標題 Statistical and Analytical Approaches to Finite-Temperature Magnetic Properties of the Compound SmFe12	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 184410, 1-14
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/physrevb.102.184410	査読の有無 有
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 該当する

1. 著者名 J. I. Inoue, T. Yoshioka, H. Tsuchiura	4. 巻 4
2. 論文標題 Influence of Local Lattice Structure on Magnetic Properties in Y2Fe17 Compounds	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 114404, 1-10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/physrevmaterials.4.114404	査読の有無 有
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 J. I. Inoue, T. Yoshioka, H. Tsuchiura	4. 巻 55
2. 論文標題 Elastic and Magnetoelastic Properties of Fe-Rich Tetragonal Y-Fe Compounds: Phenomenology and Electron Theory	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 IEEE Transactions on Magnetics	6. 最初と最後の頁 2100304, 1-4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1109/TMAG.2018.2865542	査読の有無 有
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 H. Tsuchiura, T. Yoshioka, P. Novak	4. 巻 154
2. 論文標題 Bridging Atomistic Magnetism and Coercivity in Nd-Fe-B Magnets	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Scripta Materialia	6. 最初と最後の頁 248-252
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.scriptamat.2018.04.023	査読の有無 有
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 該当する

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 6件）

1. 発表者名 H. Tabata, T. Yoshioka, H. Tsuchiura
2. 発表標題 A Mixed-Valence Model for Ce ₂ Fe ₁₄ B Compounds
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 S. Yamashita, D. Suzuki, T. Yoshioka, H. Tsuchiura, P. Novak
2. 発表標題 Theoretical Study on the Electronic States and Finite Temperature Magnetic Properties on Sm ₂ Fe ₁₇ N _x
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 田幡光, 吉岡匠哉, 土浦宏紀
2. 発表標題 Ce ₂ Fe ₁₄ B化合物に対する混合原子価模型
3. 学会等名 日本金属学会 2019年秋期講演大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山下祥吾, 鈴木大規, 吉岡匠哉, 土浦宏紀
2. 発表標題 Sm ₂ Fe ₁₇ N _x の電子状態と有限温度磁気特性に関する理論的研究
3. 学会等名 日本金属学会 2019年秋期講演大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Yoshioka and H. Tsuchiura
2. 発表標題 Theoretical Description of the Finite Temperature Magnetic Properties of R(FexM1-x)12 Systems
3. 学会等名 2019 Joint MMM-Intermag Conference (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鈴木大規, 吉岡匠哉, 土浦宏紀
2. 発表標題 Sm2Fe17Nxにおける電子状態計算と有限温度磁気特性の解析
3. 学会等名 日本金属学会2019年春期大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 S. Yamashita, T. Yoshioka, H. Tsuchiura, and P. Novak
2. 発表標題 Theoretical Investigation of the Orbital Moment of the Sm ions in SmFe12 with the GGA+U Method
3. 学会等名 Intermag 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山下祥吾, 鈴木大規, 吉岡匠哉, 土浦宏紀
2. 発表標題 GGA+U法によるSmFe12の電子状態計算
3. 学会等名 第44回日本磁気学会学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 T. Yoshioka, S. Yamashita, H. Tsuchiura, and S. Hiroswa
2. 発表標題 Ab-Initio Study on Magnetic Anisotropy of Disordered SmFe12, SmFe10, and SmFe7 Systems
3. 学会等名 The 26th International Workshop on Rare Earth and Future Permanent Magnets and Their Applications (REPM 2021) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 J. Fischbacher, A. Kovacs, H. Ozelt, M. Gusenbauer, T. Schrefl, H. Tsuchiura, and T. Yoshioka
2. 発表標題 Micromagnetic Simulation of Surface Anisotropy Effects in SmFe12-Type Permanent Magnets
3. 学会等名 Joint European Magnetic Symposia 2019 (JEMS 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019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	古賀 昌久 (KOGA Akihisa) (90335373)	東京工業大学・理学院・准教授 (12608)	
研究分担者	土浦 宏紀 (TSUCHIURA Hiroki) (30374961)	東北大学・工学研究科・准教授 (11301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
チェコ	Institute of Physics of ASCR			
オーストリア	Danube University Krems			