

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 18 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25390136

研究課題名(和文)中性子小角散乱法による永久磁石内部構造の3次元実空間像の構築

研究課題名(英文) Three-dimensional internal structures in the permanent magnets extracted from small-angle neutron scattering patterns

研究代表者

武田 全康 (TAKEDA, Masayasu)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 量子ビーム応用研究センター・副センター長

研究者番号：70222099

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：中性子小角散乱法によって得られる2次元散乱パターンから、焼結磁石内部の3次元構造を導き出すための解析ソフトウェアの高度化を行った。実験で得られる散乱パターンには波動関数の位相情報が含まれないため、実験データから実空間像を直接得ることができない。そのため、実空間でのモデルを構築し、それをフーリエ変換することで得られる2次元小角散乱パターンと実験データを比較して構造パラメータを得るという手法をとった。課題は残るものの定性的なシミュレーションが可能な解析ソフトウェアの初期バージョンを完成させた。

研究成果の概要(英文)：We developed an analysis software of three-dimensional (3D) internal structures of the sintered permanent magnets extracting the two-dimensional (2D) small-angle neutron scattering (SANS) pattern. The 3D structures cannot be directly extracted from the SANS pattern because of so-called phase problem. Therefore, a 3D structure is modeled by several structural parameters, and then the model is fourier transformed into the SANS pattern. This pattern is compared with a real pattern obtained by SANS measurements. The first version of the software was released though it will be further improved in future.

研究分野：中性子散乱法による物性研究

キーワード：中性子小角散乱 解析ソフトウェア 3次元実空間像

1. 研究開始当初の背景

本研究終了時でもなお、元素戦略プロジェクト「磁石材料」の中心的テーマとなっているNd-Fe-B焼結磁石では、高温での使用に必要な不可欠なディスプレイウム(Dy)の添加量を削減、あるいは全く使わずに高保磁力を実現するアプローチとして、主相の結晶粒径のさらなる微細化や、主相と粒界相との界面状態の制御に注目した研究が行われていた。このような開発方針に基づく研究では、試料内部の微細組織の観察が必要不可欠である。Nd-Fe-B焼結磁石に関しては、高分解能の走査電子顕微鏡(SEM)や、透過電子顕微鏡(TEM)、さらには3次元アトムプローブ法(3DAP)を用いたものなど多くの実空間観察法による研究があり、保磁力との相関が議論されていた。

一方、本研究が注目する中性子小角散乱法は、中性子が照射された領域内の平均構造を観測する手法であるため、回折法で得られるミクロな結晶構造、SEM像で得られる詳細な局所構造、3DAPによる非常に小さな空間での組成変化の情報を得ることはできない。しかし、中性子小角散乱法では、SEM像の解析では難しい主相の粒径分布、また、微細組織が寄せ集まってできている焼結磁石の表面(断面)ではなく、数mmの厚さを持つ磁石全体の平均構造を見ることができる。そのため、表面の非常に微小な領域を見ているSEM像から得られる結果のバックアップデータとなるだけではなく、SEMや3DAPでは難しい、熱処理中の微細組織の変化、あるいは、着磁・減磁過程における磁区構造の変化のその場観察が可能である。

本研究の着想に至った先行研究で行われた中性子小角散乱の実験では、保磁力の増大とともに、中性子小角散乱パターンの異方性が大きくなって行くことが明瞭に観測されている。この異方性は、焼結磁石内部のNdリッチ相と呼ばれる部分からの散乱の寄与であることが示唆されるが、小角散乱を専門としない研究者との間で共通認識を持つこと、さらに、SEM像や3DAPで得られた局所構造と矛盾がないことを示すためには、これらのパターンから実空間像を描くことが必要不可欠である。

2. 研究の目的

これまで、焼結磁石に対する中性子小角散乱法による研究があまり行われてこなかった背景には、焼結磁石のように、試料内部に散乱体(主相、2粒子界面など)が高密度に充填されている試料で得られる中性子小角散乱パターンの解析が難しいこと、中性子散乱実験を行うためには大型の中性子散乱実験施設を使わなくてはならないため、測定を行うこと自体が容易ではなかったことがあげられる。さらに、中性子小角散乱法で得られるのは、逆格子空間での構造情報であるため、そこから、実空間像をイメージすることが困

難であるのも大きな理由のひとつである。中性子小角散乱測定を行うのが難しいという問題は、国内においては茨城県東海村の日本原子力研究開発機構の敷地にある、J-PARCの物質・生命科学実験施設(MLF)に世界最高強度を誇る大強度パルス中性子源が稼働し、最新の技術を駆使した中性子小角散乱装置が設置されたことにより、大きく様変わりしようとしている。

このような状況を踏まえ、本研究では、Nd-Fe-B焼結磁石を始めとする様々な永久磁石で得られる中性子小角散乱パターンから、実空間像を再構築する手法を開発することにより、中性子小角散乱法による微細組織の可視化を通して、保磁力と微細構造の相関を定量的に評価し、永久磁石の保磁力向上への指針を与えることを目的とする。ただし、この解析手法は、永久磁石に限らず、他のセラミクスや合金の内部構造にも有効であり、その応用は幅広い分野に及ぶ。

3. 研究の方法

(1) 概要

本研究では、J-PARCの物質・生命科学実験施設(MLF)に設置されている大強度型中性子小角散乱装置を使って、様々な永久磁石の中性子小角散乱パターンを収集(測定)すること、そこで得られた中性子小角散乱パターンから内部の微細組織情報を取り出すための解析ソフトウェアを高度化することを大きな2本の柱としてスタートさせた。しかし、研究開始直後の平成25年5月23日にJ-PARCのハドロン実験施設で放射性物質漏洩事故が発生し、平成27年4月24日までのほぼ2年間に亘りMLFでの実験ができない状況となった。そのため、本研究では実験データはすでに取得済みのものを解析することとし、もうひとつの柱である解析ソフトウェアの高度化に集中することとした。

(2) 小角散乱パターンと内部構造

中性子小角散乱パターンは、試料内部の散乱体の形状(密度分布)の3次元フーリエ変換像の2次元平面への写像である。従って、図1に示すように、グレースケールで描かれたSEM像をフーリエ変換すると、小

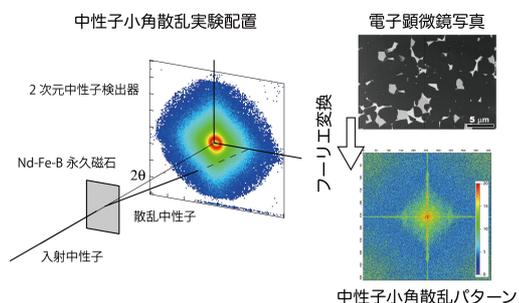


図1 中性子小角散乱実験の様子(左)と実空間の構造と中性子小角散乱で得られる実空間パターンの関係(右)

角散乱パターンと良く似たパターンが得られる。ただし、小角散乱パターンは、実空間像のフーリエ変換によって得られる振幅の絶対値の自乗であるため、構造因子の位相情報が失われている。そのため、小角散乱パターンを逆フーリエ変換しても、実空間像は得られない。従って、本研究では、実空間像をモデル化し、それをフーリエ変換することで、小角散乱パターンを計算し、実験で得られたパターンと比較するという方法をとる。具体的には、

- ・ $N \times N \times N$ の要素からなる有限の領域(コンテナ) をポロノイ分割する
- ・ 断面が SEM 像で得られている実空間像を再現するような モデルのパラメータ化を行う
- ・ 磁区のモデル化による磁気散乱の評価
- ・ 並列化により計算の高速化を行う
- ・ モデルから得られた小角散乱パターンと実験データの比較による構造パラメータの最適化(フィッティング) を行う
- ・ たとえば Phase-Field 法などによる焼結体モデルをさらに高度化する

を上から順に取り入れて行くこととした。

ただし、本研究で使用したソフトウェアの基本部分(ポロノイ分割とモデルのパラメータ化)については先行研究(平成19-23年度 希少金属代替開発プロジェクト「希土類磁石向けディスプレイ用希土類磁石使用量低減技術開発」)で基本的な部分は完成していたので、本研究では磁区のモデル化の高度化と省メモリ化、さらに結果の可視化を中心に取り組んだ。

(3) 本研究開始時に開発済みのソフトウェアによる実空間モデルのパラメータ化

本研究で高度化したソフトウェアで、実空間構造モデルを作るために使用するパラメータは下記の通りである。

- ・ 焼結粒の配置数
- ・ 焼結粒の大きさや分布を表現する乱数生成のための座標系(直交、極座標)
- ・ 乱数生成パターン(一様乱数、正規分布、対数正規分布)
- ・ コンテナの大きさ
- ・ 結晶粒の異方性
- ・ 3重点領域の大きさと数
- ・ 界面の厚み
- ・ 焼結粒の面取りの度合い(角をまるめる)

原料である Nd-Fe-B の焼結粉(主相)が立方体のコンテナの中に充填され、それぞれの間の界面には Nd リッチ層として知られる薄い粒界相が存在しており、それらの形状や大きさ(数とも相関)の分布も考慮できるようにした。また、小角散乱の強度を支配するのは、上記で決まる形状と分布の他に以下のふ

たつの物理量があり、これらもパラメータとして計算に取り入れる必要がある。

- ・ 主相の核散乱長密度
- ・ 粒界相の核散乱長密度

以上のパラメータを使ってコンテナ内をポロノイ分割することにより作った焼結磁石の実空間モデルの例を図2に示す。ポロノイ分割には、オープンソースである Voro++ ライブラリを使用した。また、プロセス並列化とスレッド並列化にはそれぞれ OpenMP と OpenMPI を使っている。

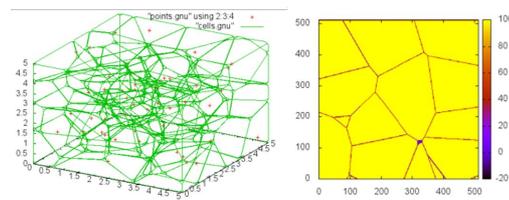


図2 本研究で使用したソフトウェアによる実空間構造モデル。左は3次元像、右は電子顕微鏡写真に対応する断面図

永久磁石の中に存在する可能性のある磁区を表現するためには、以下のパラメータの設定が必要になる。

- ・ 磁区の数
- ・ 磁区の方角
- ・ 磁区の中の磁気モーメントの方角
- ・ 磁区の中での磁気モーメントの大きさと方向分布
- ・ 主相の磁気散乱長密度

磁区は異方性(1軸異方性)の強い永久磁石を仮定して、磁区を多角柱で表現することとした。また、実際の Nd-Fe-B 焼結磁石では、主相の厚みに比べて粒界相は遙かに薄いため、粒界相が磁区に与える影響は無視した。

(4) 高度化の内容

本研究で取り組んだ解析ソフトウェアの具体的な高度化は以下の通りである。

- ・ 計算結果の検証が行いやすいように、単純な構造モデルや周期構造への適応
- ・ 実験データに含まれている装置分解能の取り込み
- ・ 実験条件に応じて測定領域の拡大・縮小機能の実装
- ・ FFT を分割処理する事で省メモリの実現とさらなる計算時間の高速化
- ・ インテル社製 C コンパイラ及びライブラリを使ったさらなる高速化
- ・ 市販のグラフ可視ソフトウェア用 3次元データの出力

4. 研究成果

(1) 磁区構造モデルの高度化

磁区を導入したモデルによるシミュレーション結果を図3に示す。磁区構造モデルは、磁気モーメントを矢印で磁区そのものを粒子と同じように領域境界がわかるように表示される。

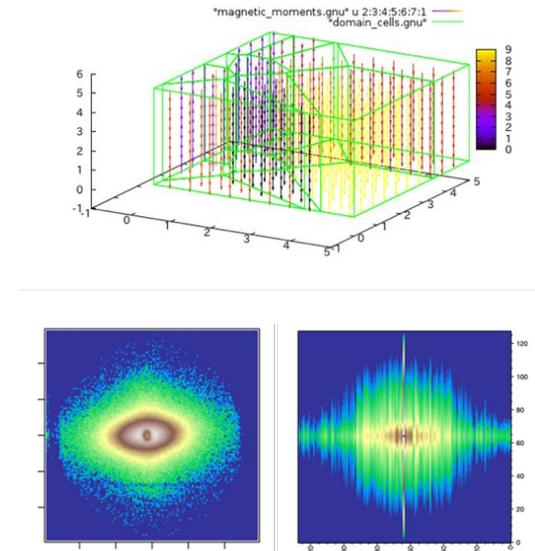


図3 本研究で高度化したソフトウェアによる実空間での磁区構造モデル(上)と実験データ(左下)とシミュレーション結果の比較(右下)。

左下に示した図は未着磁のNd-Fe-B焼結磁石の実測データである。図の縦軸方向は磁気モーメントがそろった方向(磁石の主相であるNd₂Fe₁₄Bのc軸)となっており、磁区の形成によって磁気モーメントは上下どちらかの向きを持つ領域に分割される(磁区)。右下の図はシミュレーションの結果であり、定性的には実験データを再現していることがわかる。しかし、本研究終了時には定量的に実験データを再現することができておらず、さらなる改良が必要である。また、インテル社製のコンパイラによるコンパイルは可能となったものの、計算の高速化は期待通りの結果とならなかった。

(2) その他の高度化

3次元データを1次元データに分割してFFTの処理をすることにより使用メモリを約半分に節約することを実現した。また、測定領域の拡大・縮小機能、装置分解能の取り込み、市販のグラフ可視化ソフトウェア用の出力機能などは正しく機能している。

(3) 今後の課題

本研究の研究期間内には、フィッティングによる解析を行うまでに至らなかった。問題点(改善すべき点)は明らかになっているので、引き続き研究目的の達成のための作業を継続する。また、本研究で高度化を行った解

析ソフトウェアは、焼結磁石だけではなく広く小角散乱法の測定対象となる物質の構造解析にも有効である。この点にも注目し、さらなる改良を進め、より現実的な構造パラメータを得られるようにするとともに、他の物質への適用範囲を広げられるよう、必要なソフトウェアの改良作業を行う予定である。

5. 主な発表論文等

(雑誌論文)(計0件)

(学会発表)(計4件)

武田全康、鈴木淳市、(口頭発表)中性子小角散乱法による永久磁石内部構造の3次元実空間像の構築 II、日本物理学会第71回年次大会、平成28年3月19日、東北学院大学泉キャンパス(宮城県・仙台市)

武田全康、鈴木淳市、(口頭発表)中性子小角散乱データ3次元可視化ソフトウェアの開発 II、日本中性子科学会第15回年会、平成27年12月11日、和光市民文化センター サンアゼリア(埼玉県・和光市)

武田全康、鈴木淳市、(ポスター発表)中性子小角散乱データ3次元可視化ソフトウェアの開発、日本中性子科学会第14回年会、平成26年12月11日、北海道立道民活動センター「かでの2・7」(北海道・札幌市)

武田全康、鈴木淳市、(口頭発表)中性子小角散乱法による永久磁石内部構造の3次元実空間像の構築 I、日本物理学会第69回年次大会、平成26年3月30日、東海大学湘南キャンパス(神奈川県・平塚市)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

武田 全康 (TAKEDA, Masayasu)

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 量子ビーム応用研究センター・副センター長

研究者番号: 70222099

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

鈴木 淳市 (SUZUKI, Jun-ich)

一般財団法人 総合科学研究機構・東海事業センター 利用研究促進部・利用研究促進部長

研究者番号: 40354899

山口 大輔 (YAMAGUCHI, Daisuke)

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 量子ビーム応用研究センター・研究副主幹

研究者番号: 60370483