

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 16 日現在

機関番号：17104

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26420311

研究課題名(和文) Kerr効果顕微鏡を用いた動磁区観察によるネオジウム磁石の磁化反転機構の解明

研究課題名(英文) Analysis of magnetization reversal of Nd-Fe-B magnets by dynamic domain observation with a Kerr microscope

研究代表者

竹澤 昌晃 (Takezawa, Masaaki)

九州工業大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号：20312671

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、Kerr効果顕微鏡による高分解能・高速動磁区システムを構築して、ネオジウム磁石の磁化反転機構の解明を試みた。得られた磁区観察の結果と電子顕微鏡を用いて調べた結晶組織を比較することで、ハード磁性が劣化した不純物濃度の高い箇所や、 α -Fe濃度の高い箇所から逆磁区の発生が起こることを明らかにした。さらに、粒界を越えた隣接する結晶粒間の相互作用が集団での磁化反転を誘起して、低保磁力と減磁曲線の角型比を低下させることが分かった。

研究成果の概要(英文)：We observed the demagnetization behavior of Nd-Fe-B magnets by observing their magnetic domains with a high-resolution and dynamic domain observation system using Kerr effect microscope. The relation between the domain configuration and microstructure observed by a scanning electron microscope was investigated. The reversal domains nucleated from the impurity site and α -Fe enriched point that deteriorate hard magnetic properties. Moreover, magnetic interaction among the grains beyond the grain boundaries caused simultaneous magnetization reversal. The large magnetization-reversal clusters produced the low-coercivity, and also reduced the squareness of the magnet.

研究分野：磁気工学

キーワード：磁区観察 磁区構造 磁気Kerr効果 ハード磁性材料 ネオジウム磁石 減磁過程

1. 研究開始当初の背景

ネオジム磁石(Nd-Fe-B系磁石)は1982年に佐川真人により発明された世界最強の磁石であり、ハイブリッド自動車や電気自動車用駆動モーターに大量に消費されている。これらの用途では磁石の動作温度が200まで上がるため、キュリー温度が312のNd₂Fe₁₄B化合物のみを用いた磁石では耐熱性に課題があり、Ndの30%程度をDyで置換することで高保磁力化・高耐熱化を実現している。しかし、Dyは資源問題を有するレアメタルであり、省Dy・脱Dyによる高耐熱磁石の実現を目指して、政府主導の大規模な研究プロジェクトが複数進展している。

これら、新高耐熱磁石の開発研究は希土類化合物の電子状態や磁気異方性等の材料物理の観点からの研究や、結晶粒径の制御と微細組織の最適化により物性を操作することが行われている。物理定数を制御するような研究は、開発しようとする素子の本質的な進歩をもたらすが、磁石材料の物理的特性を可視化し「磁区として把握する」ことは物理定数と物理現象の関係を理解し、開発研究にフィードバックするという観点から非常に重要である。近年では、プローブ顕微鏡、放射光X線励起光電子顕微鏡等の分解能に優れた観察手法によるネオジム磁石の磁区観察が成されており、結晶組織と磁区構造の関係等について報告されている。

一方で、申請者は「磁気光学的手法(磁気Kerr効果)」による磁区観察技術の開発を続けてきた。上記ツールと比較して、光学顕微鏡は「高磁界下でのバルク試料の磁区の動きを連続的に観察」でき、磁区・磁化過程のダイナミクス観察が可能であるという大きな特長を有している。

申請者は、これらの特徴を活かすべく、動磁区観察Kerr効果顕微鏡を開発してきた。特に磁区のダイナミクス観察に関しては、CCDカメラのシャッター制御による商用周波数での動的観察システムの開発を出発点として動作周波数の高速化を進め、10kHzで励磁したアモルファス磁性薄帯の高速動磁区観察を実現している。

2. 研究の目的

ネオジム磁石の磁化反転機構を解明するためには、「ナノ秒のタイムスケールで高速に進行する磁化反転が、どこで発生し、それがどのように広がっていくのかを把握する」必要があり、簡便で柔軟性の高い高速動的磁区観察の技術は、ネオジム磁石の保磁力発現のメカニズム解明に大きく貢献できる発展性の高い研究である。

しかし一方で、光学顕微鏡は磁気力顕微鏡(MFM)などと比較して「空間分解能」が低いという欠点を有している。光学顕微鏡の分解能は使用する光源の波長で決定されるため、可視光を利用する場合、空間分解能は350nm程度であり数100nm径の微細な結

晶粒を有するネオジム磁石のナノスケール磁区観察に利用するには無理があった。

そこで、申請者は空間分解能が低いという欠点を克服する為に短波長の「紫外光を利用するKerr効果顕微鏡」の開発に努めてきた。そして、平成23年には、顕微鏡の光学素子を紫外光対応のものに置換、改造することで波長248nmの紫外光が使用可能なKerr効果顕微鏡の開発に成功し、約100nmの空間分解能を達成した。

この高分解能動磁区観察システムをネオジム磁石に応用する場合には、大きな保磁力を持つハード磁性材料を磁化反転させるのに必要な数Tにおよぶ高磁界励磁を行う必要がある。そこで、本研究では、申請者が開発した高分解能Kerr効果顕微鏡を用いて高磁界下でのネオジム磁石の動磁区観察を可能とし、ネオジム磁石の磁化反転機構を明らかにするため、以下の項目を実現することを目的とする。

- 新たに「数Tの高磁界励磁」が可能で「5nsの時間分解能」を有する高分解能磁気Kerr効果顕微鏡による、「ハード磁性材料対応高速動磁区システムを開発」する。
- 上記磁区観察システムを用いて、ネオジム磁石の磁化反転過程の磁区観察を行うことで、「逆磁区生成と磁壁移動による磁化反転機構を明らかに」する。
- 得られた磁化反転機構を結晶組織と比較することで、磁化反転と結晶組織の組織相関関係を明らかにし、「逆磁区生成箇所や磁壁移動のし易さの支配要因を検討」する。

3. 研究の方法

本研究では、数mm寸法を越えたバルク体ネオジム磁石の磁化反転過程での「磁区」情報のダイナミクス観察を実現するために、「数T高磁界励磁可能な高空間分解能Kerr効果顕微鏡」を開発する。この顕微鏡に「5ns高速シャッターを有するカメラ」を組み合わせることでネオジム磁石の「高速磁化反転時の動磁区観察」を行う。さらに、得られた磁化反転機構に対して、何が逆磁区生成箇所や磁壁移動のし易さを支配しているのか、電子顕微鏡によって測定した結晶組織と比較することでその関係を明らかにした。

4. 研究成果

(1)

平成26年度は、ハード磁性材料対応の高分解能・高速動磁区システムを構築するため、現有のKerr効果顕微鏡にストロボ法による動磁区観察を可能とするカメラ画像取り込みソフトウェアを導入した。このソフトウェアを用いた繰り返し画像取り込み動作を確認し、動磁区観察システムの基本となる動作部分を構築できた。

また、電子顕微鏡を用いて、ネオジム磁石のテスト試料の結晶方位と組成分布を調べ、

同じ観察視野における磁区観察データと比較した。結晶方位はEBSD、組成分布はEDXにより測定を行った。磁区観察はKerr効果顕微鏡を用いて、着磁後の試料の減磁過程における磁区構造変化を調べた。その結果、結晶方位に関しては、磁界印加方向とc軸が平行に近い結晶粒、あるいは欠陥相の周辺から比較的逆磁区のニュークリエーションが発生しやすいことが分かった。しかし、結晶方位のみで逆磁区のニュークリエーションのしやすい結晶粒を論じることができず、組成分布も関連していた。組成に関しては、酸素濃度の高い粒界付近から逆磁区のニュークリエーションが発生していることが多かった。

また、急冷薄帯試料では、図1に示すように、Ti濃度が高くソフト磁性と考えられる領域からの逆磁区のニュークリエーションも発生していた。しかし、組成分布のみで逆磁区のニュークリエーションのしやすい結晶粒を論じることができず、方位および組成分布を合わせて議論する必要があることが分かった。

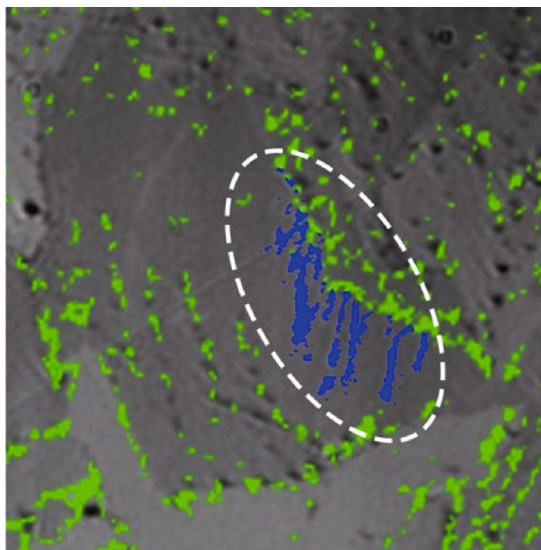


図1. 急冷薄帯磁石の磁区構造とTi濃度 (青：逆磁区生成部、緑：Ti高濃度部)

(2)

平成27年度は、26年度に引き続き、磁区観察システムを用いて様々な磁石材料の減磁過程と結晶組織の関係を比較することで、高保磁力発現のための結晶組織形成の指針を把握することを目指し、単ロール急冷法で観察用のネオジム磁石試料を作製した。その上で、前年度よりも観察視野を増やして磁区観察を進めた。

まず、基本組成であるNd₂Fe₁₄B組成の母合金から作製した急冷薄帯磁石試料について、電子顕微鏡を用いて、ネオジム磁石のテスト試料の結晶方位と組成分布を調べ、同じ観察視野における磁区観察データと比較した。結晶方位はEBSD、組成分布はEDXにより測定を行った。磁区観察はKerr効果顕微鏡を用い

て、着磁後の試料の減磁過程における磁区構造変化を調べた。画像比較、検証用ソフトウェアを導入し、結晶組織と磁区像の画像比較を正確に行うことができた。

基本組成Nd₂Fe₁₄Bで作製した急冷薄帯においては軟質磁気特性を有する-Fe相の析出が発生するが、減磁過程での逆磁区の生成は、この-Fe相の周辺から発生していることを確認できた。また、隣接する結晶粒の結晶方位のずれ角度と、磁化反転の伝搬の仕方には、ある程度の相関があることが分かってきた。

また、着磁したネオジム焼結磁石を加熱して熱減磁させた場合の磁区構造変化についても観察を行った。ここでは、特に観察視野を広げ240μm×180μm程度の領域で熱減磁の様子を調べた。その結果、Dyフリーの耐熱性の悪い磁石では、100μm弱の領域を占める100個程度の隣接する結晶粒が集団で磁化反転する様子が確認でき、数100μmオーダーの広視野での磁区観察が減磁機構を議論する上で重要であることを明らかにできた。

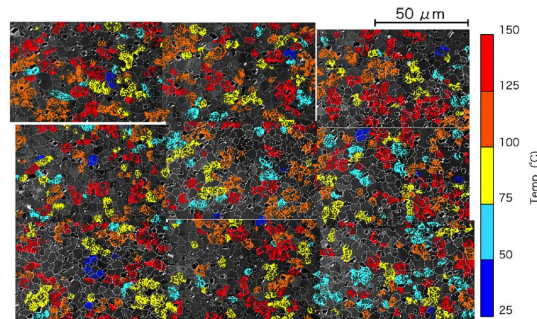


図2. Dyフリー焼結磁石の熱減磁過程

(3)

平成28年度は、前年度までの知見を活かして磁区観察の観察視野を広げることで、ネオジム磁石の磁化反転機構についてより統計的に考察することを試みた。

このため、結晶配向度が比較的悪いネオジム磁石において、磁化反転が止まる結晶粒界と止まらない結晶粒界の頻度について、その結晶粒間の方位ずれとの関係を統計的に整理した。調べた結晶粒界は合計で約1000箇所である。その結果、図3に示すように結晶粒間の方位ずれが大きくなるのに伴って、磁化反転が止まる粒界の割合が増加することが分かった。さらに、この傾向はネオジム磁石のDy組成にかかわらず表われることが分かり、結晶配向の中でも結晶粒間の配向ずれがネオジム磁石の磁化反転、すなわち保磁力を決める要因の一つであることを明らかにできた。配向度が悪いネオジム磁石で保磁力が増大する現象自体はすでに既知であったが、この研究によりその原理を明らかにすることができた。すなわち粒間での配向ずれを意図的に制御する磁石の生産方法が確立できれば、重希土類フリーで高保磁力・高耐熱を実現できる可能性があり、ネオジム磁石の重要な設計指針の一つを明らかにできた。

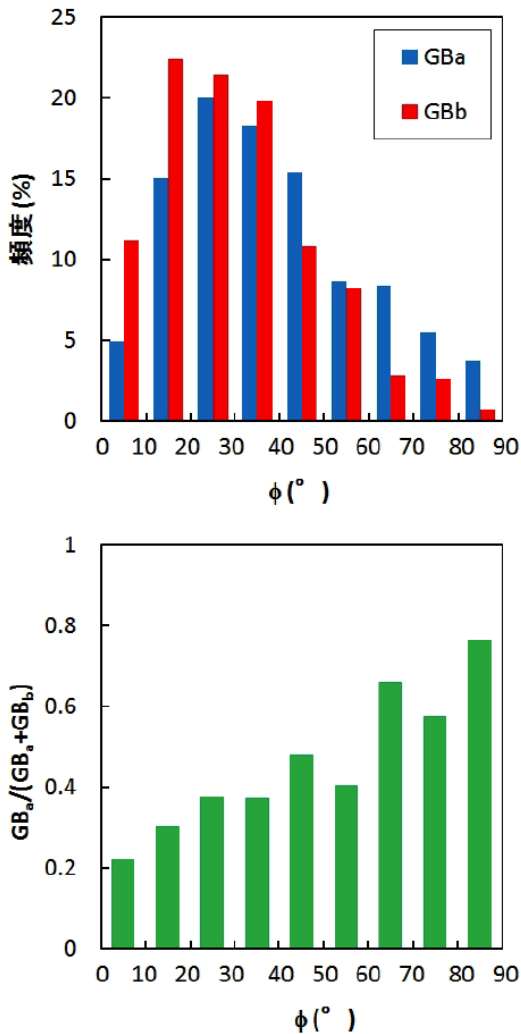


図3. 磁化反転が止まる粒界 GBa と止まらない粒界 GBb と結晶粒間の c 軸の方位差の関係

また、磁化反転する結晶粒集団の大きさと保磁力の関係について、約 $100\mu\text{m}$ の大きさのネオジウム磁石の磁粉を単独で磁区観察することで、その結晶粒集団の大きさについて統計的に考察した。その結果、図4に示した分布のように、磁化反転する結晶粒集団の大きさが大きく、かつその大きさのばらつきが大きい磁粉で、図5に示した減磁曲線のように保磁力の低下および減磁曲線の角形性の低下が見られることが分かった。実際の磁石材料はこれら磁粉の集合体であり、このような磁化反転する結晶粒集団の肥大化や分散の増大が磁石材料の保磁力やエネルギー積の低下と強く相関していることを明らかにできた。この結果から、結晶粒界組織の均一化がネオジウム磁石の保磁力、エネルギー積増大のための設計指針であることを明らかにした。

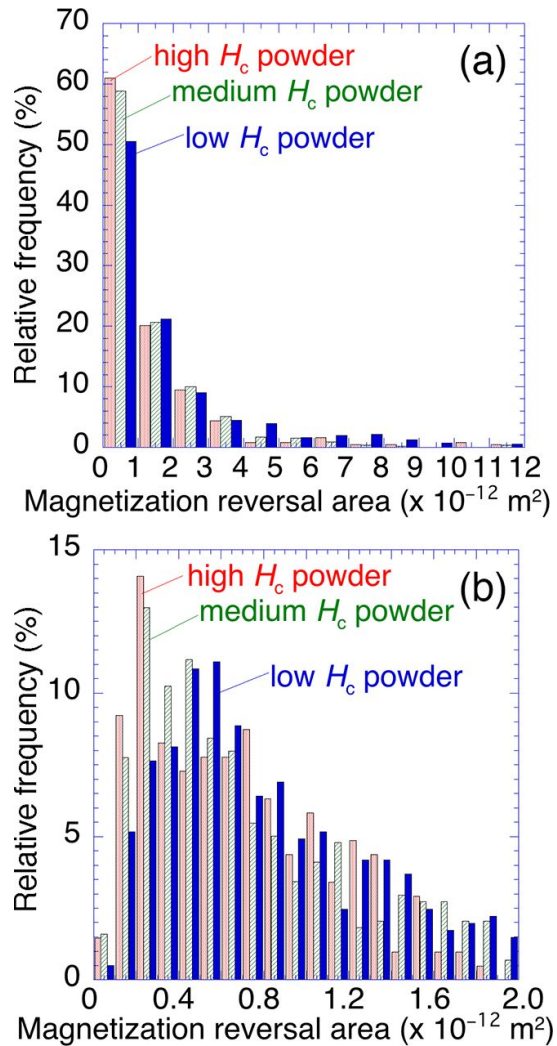


図4. 磁化反転領域の大きさ

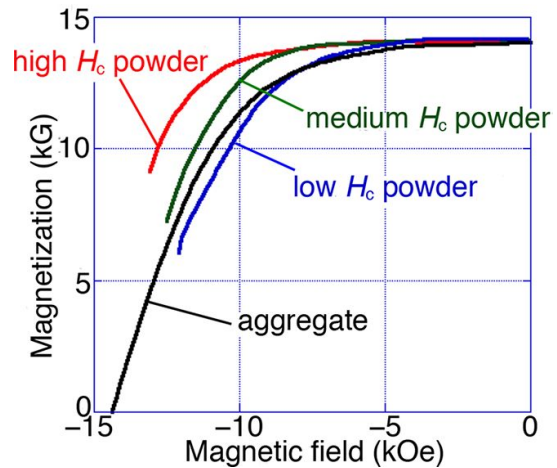


図5. 磁石磁粉の減磁曲線

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計4件)

H. Machida, T. Fujiwara, R. Kamada, Y. Morimoto, and M. Takezawa, "The high squareness Sm-Co magnet having $H_{cb}=10.6$

kOe at 150 °C,” *AIP Advances*, 査読有、vol. 7, no. 5, p. 056223, 2017. DOI: 10.1063/1.4976334

M. Takezawa, S. Ikeda, Y. Morimoto, and H. Kabashima, “Analysis of thermal demagnetization behavior of Nd-Fe-B sintered magnets using magnetic domain observation,” *AIP Advances*, 査読有、vol. 6, no. 5, p. 056021, 2016. DOI: 10.1063/1.4944402

M. Takezawa, H. Taneda, and Y. Morimoto, “Relationship between microstructure and magnetic domain structure of Nd-Fe-B melt-spun ribbon magnets,” *Front. Mater. Sci.*, 査読有、vol. 9, no. 2, pp. 206-210, 2015. DOI: 10.1007/s11706-015-0297-5

M. Takezawa, H. Ogimoto, and Y. Morimoto, “Magnetic Domain Observation of Nd-Fe-B Sintered Magnet at Elevated Temperature,” *J. Jpn. Soc. Powder Powder Metall.*, 査読有、vol. 62, no. 2, pp. 67-71, 2015. DOI:10.2497/jjspm.62.67

〔学会発表〕(計 19 件)

榎 智仁, 打越 凌, 石井 倫太郎, 西内 武司, 竹澤 昌晃, “Nd-Fe-B 系焼結磁石における隣接粒子間方位差と磁化反転の関係”, 日本金属学会春期大会, S1.14, 2017年3月15日から3月17日, 首都大学東京(東京都八王子市)(2017)

福島 啓子, 竹澤 昌晃, 森本 祐治, 中野 善和, 松本 紀久, “Nd-Fe-B 系焼結磁石における高温中における圧縮応力による磁区構造変化”, 電気学会マグネティックス研究会, MAG-16-219, 2016年12月11日から12月12日, 慶応大学(神奈川県横浜市)(2016)

永石 知也, 竹澤 昌晃, 榛葉 和晃, 三嶋 千里, 御手洗 浩成, “Nd-Fe-B 異方性 HDDR 磁粉の磁区構造と減磁過程”, 電気学会マグネティックス研究会, MAG-16-184, 2016年11月28日, 日本電気計器検定所(東京都港区)(2016)

H. Machida, T. Fujiwara, R. Kamada, Y. Morimoto, and M. Takezawa, “The High Squareness Sm-Co Magnet Having Hcb=10.6kOe at 150 °C”, 61th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, GG-07, 2016年10月31日から11月4日, New Orleans (USA) (2016)

M. Takezawa, K. Fukushima, Y. Morimoto, and Y. Nakano, “Magnetic Domain

Observation on Demagnetization of Nd-Fe-B Sintered Magnets under Compressive Stress and Elevated Temperatures”, 61th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, BU-05, 2016年10月31日から11月4日, New Orleans (USA) (2016)

池田 壮一郎, 森本 祐治, 竹澤 昌晃, 椛嶋 寿行, “磁区観察を用いた Nd-Fe-B 系焼結磁石の熱減磁解析”, 平成 28 年 電気学会基礎・材料・共通部門大会, 6-B-p1-3, 2016年9月6日から9月7日, 九州工業大学(福岡県北九州市)(2016)

竹澤 昌晃, 森本 祐治, 江島 潤, 中野 善和, 荒木 健, Nd-Fe-B 系焼結磁石の圧縮応力による磁区構造変化, 5-B-p2-4, 平成 28 年 電気学会基礎・材料・共通部門大会, 2016年9月6日から9月7日, 九州工業大学(福岡県北九州市)(2016)

T. Maki, R. Uchikoshi, R. Ishii, T. Nishiuchi, and M. Takezawa, “Influence of misorientation angle between easy-axes of adjacent grains on magnetic domain propagation in Nd-Fe-B sintered magnet”, 24th International Workshop on Rare-Earth and Future Permanent Magnets and their Applications, P3-24, 2016年8月28日から9月1日, Darmstadt (Germany) (2016)

打越 凌, 池田 尊穂, 竹澤 昌晃, 榎 智仁, 石井 倫太郎, 西内 武司, 松浦 裕, “Nd-Fe-B 系焼結磁石の配向度と磁区構造の関係” 電気学会マグネティックス研究会, MAG-16-094, 2016年8月9日から8月10日, 豊橋技術科学大学(愛知県豊橋市)(2016)

竹澤 昌晃, 福島 啓子, 森本 祐治, 中野 善和, “Nd-Fe-B 系焼結磁石における熱と圧縮応力による磁区構造変化”, 平成 28 年 電気学会全国大会, 2-102, 2016年3月16日, 東北大学(宮城県仙台市)(2016).

M. Takezawa, S. Ikeda, Y. Morimoto and H. Kabashima, “Analysis of Thermal Demagnetization Behavior of Nd-Fe-B Sintered Magnets Using Magnetic Domain Observation”, The 13th Joint MMM/Intermag Conference, AR-04, 2016年1月12日, San Diego (USA) (2016).

池田 壮一郎, 竹澤 昌晃, 森本 祐治, 椛嶋 寿行, “磁区観察による Nd-Fe-B 系焼結磁石の熱減磁解析”, 電気学会マグ

ネティックス研究会資料, MAG-15-162, 2015年12月1日, 日本電気計器検定所(東京都港区)(2015).

M. Takezawa, H. Ogimoto, H. Taneda and Y. Morimoto, “(Invite) In-situ Magnetic Domain Observation of Nd-Fe-B Permanent Magnet with a Kerr Microscope”, 14th International Union of Materials Research Societies-International Conference on Advanced Materials (IUMRS-ICAM2015), IV-1Th3F1-2 (IS), 2015年10月29日, Jeju (Korea) (2015).

永石 知也, 森本 祐治, 竹澤 昌晃, “Nd-Fe-B 系焼結磁石の磁区構造と結晶組織の関係”, 第39回日本磁気学会学術講演会, 10pA-2, 2015年9月10日, 名古屋大学(愛知県名古屋市)(2015).

M. Takezawa, H. Taneda and Y. Morimoto, “(Invite) Relationship between Microstructure and Magnetic Domain structure of Nd-Fe-B Melt-spun Ribbon Magnets”, EMN (Energy Materials Nanotechnology) Meeting on Photovoltaics, B09, 2015年1月12日, Orlando, FL (USA) (2015).

M. Takezawa, H. Taneda and Y. Morimoto, “Relationship between microstructure and magnetic domain structure of anisotropic melt-spun Nd - Fe - B ribbons”, 59th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, DW-05, November 5, Honolulu, Hawaii (USA) (2014).

竹澤 昌晃, 種子田 大幸, 森本 祐治, “Nd-Fe-B 急冷薄帯磁石の結晶組織と硬質磁気特性”, 平成26年電気学会基礎・材料・共通部門大会, 21-B-a2-3, 2014年8月21日, 信州大学(長野県長野市)(2014).

M. Takezawa, H. Ogimoto and Y. Morimoto, “(Invite) Magnetic Domain Observation of Nd-Fe-B Sintered Magnets with A Kerr Microscope”, The Moscow International Symposium on Magnetism (MISM) 2014, 1TL-C-9, July 1st, Moscow (Russia) (2014).

竹澤 昌晃, 荻本 紘史, 森本 祐治, “【招待講演】Nd-Fe-B 系焼結磁石の高温下における減磁過程の磁区観察”, 粉体粉末冶金協会講演概要集 平成26年度春季大会, 3-15, 6月3日, 早稲田大学(東京都新宿区)(2014).

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0件)

取得状況(計 0件)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

竹澤 昌晃 (TAKEZAWA, Masaaki)
九州工業大学・大学院工学研究院・教授
研究者番号: 26420311

(2) 研究分担者

無し

(3) 連携研究者

無し

(4) 研究協力者

無し