

科学研究費助成事業（基盤研究（S））公表用資料
〔令和3（2021）年度 中間評価用〕

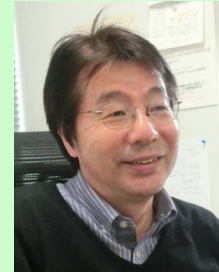
令和元年度採択分
令和3年3月31日現在

軽元素を利用した新しい物質合成法の確立と希土類フリー磁石材料への展開
Establishment of the new method for material synthesis
utilizing light elements and their expansion
to develop rare-earth-free magnet

課題番号：19H05612

佐久間 昭正（SAKUMA Akimasa）

東北大学・大学院工学研究科・教授



研究の概要（4行以内）

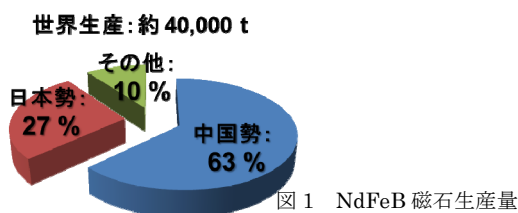
コストパフォーマンスに優れた NdFeB とフェライトの中間の磁気特性を有する希土類フリー磁石材料の創製に挑む。理論グループが Fe 合金への軽元素導入が磁気特性に及ぼす影響を計算により明確にし、希土類フリー磁石材料の設計指針を構築する。それに基づいて実験グループが革新的な物質合成法を確立することによって新磁石材料の創製を目指す。

研究分野：電気電子材料工学関連

キーワード：磁石、レアアースフリー、磁性材料、希土類、軽元素

1. 研究開始当初の背景

世界の x-EV(電気自動車)の販売台数は 2035 年には自動車全体の 50%を超え 1 億台にのぼると予測されている。またロボット、風力発電等の急速な普及も進み、それらを構成するモーターに必要な永久磁石の巨大な需要拡大が見込まれている。現在、永久磁石材料としては高性能・高価格である NdFeB、低性能・低価格であるフェライトの 2 種類しかなく、磁気特性およびコストパフォーマンスが両者の中間に位置する材料が切望されている。また NdFeB 合金に用いられている Nd 等の希土類元素は、中国等に偏在しているため供給不安を払拭できず、希土類を用いない(レアアースフリー)磁石材料の開発が必要となっている。図 1 に示したように、近年中国が NdFeB 磁石の製造技術を高め、すでに生産量では世界の 3 分の 2 を占めるに至っている。



2. 研究の目的

中国の技術的追い上げ、および将来の x-EV、風力発電、ロボット等の普及による磁石の巨大な需要に我が国がどう対応していくかが喫緊の課題である。このような世界情勢に対して本研究は図 2 に示したように、NdFeB 磁石とフェライト磁石の中間の磁気特性を有する希土類フリー磁石材料を創製し、我が国がこの分野で引き続き世界のリーダーとなることを目指すものである。

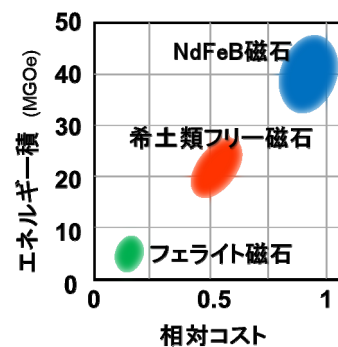


図 2 磁石の性能とコスト

3. 研究の方法

NdFeB 磁石とフェライト磁石の中間の磁気特性を有する希土類フリー磁石材料の候補として、図 3 に示した軽元素 (H,C,O,N)

を含む Fe 合金を取り上げた。理論グループでは、これらの元素が含まれた Fe 合金の磁性を第一原理計算によって予測する。実験グループでは Fe に H、C、O、N を導入するプロセスの研究を行う。すなわち理論計算から導かれる物性と新しい物質合成プロセスを組み合わせることにより軽元素を含む希土類フリー磁石の材料創出を目指す。

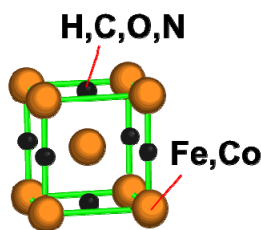


図3 Fe-Co 合金

4. これまでの成果

窒化鉄 α' -Fe₁₆N₂ の合成条件を詳しく検討することによって、軽元素を格子に侵入させて新物質を合成する際に必要となる条件を求めた。具体的には Fe の一部を M 元素 (M = Co, Al, V, Cr, Mn, Ni) で置換した (Fe, M)OOH ナノ粒子を出発原料として、いかなるガス反応条件の下で α' -(Fe, M)₁₆N₂ が生成するかを調べた。その結果、M = Al では広い還元、窒化温度の範囲で α' 相が生成した。一方、Co の場合は限られた温度範囲でしか生成しないこと、V, Cr, Mn, Ni の場合はまったく生成しないことがわかった。その原因を追究したところ、窒化前の α -(Fe, M)粒子の結晶子の大きさが 50 nm 以下であることが、 α' 相が生成のための必要条件であることを明らかにした。これは気相-固相反応によって格子侵入型の化合物を合成する際の一つの重要な指針になるものと考えている。

薄膜によるモデル実験では、Fe-Mn 系合金薄膜の研究から、約 2% の格子ミスフィットが引き起こされた格子歪がもたらす正方晶化に起因したフェリ磁性からフェロ磁性への磁気相転移が、この合金系における高飽和磁化・高磁気異方性の発現の起源となっている可能性を示した。この結果は Mn 系合金に軽元素を導入でき、かつ格子歪を与えることができれば希土類フリー磁石の材料に繋がる可能性があることを示唆している。また α' -Fe₁₆N₂ のような準安定侵入型化合物を薄膜で合成するためには、スパッタ粒子のエネルギーを変えられることができる反応性パルス DC スパッタリング法が有効であることを示すことができたことから、今後このような準安定侵入型化合物についてより正確な真性的な磁気物性が得られると期待される。新型コロナウイルスの影響を受け実験に若干遅れが生じたが、侵入型化合物を合成するための、金属学的組織についての必要条件や、薄膜モデル実験による Mn 系合金の高いポテンシャル等、今後の新物質合成にたいへん有用な結果を得たと考えている。

一方、遷移金属磁性体の磁気異方性エネルギー (MAE) に関する理論研究として、2019 年度は Fe-Co-X (X = N, C) (規則、不規則) 合金の MAE の評価、2020 年度は有限温度における遍歴電子磁性体の MAE の振る舞いの微視的理解とその評価方法の確立に注力した。その結果、2020 年度末の時点で得られている成果は以下のとおりである。

1) α' -Fe₁₆N₂ の規則構造において、Fe を Co で置換した場合、ある置換量での MAE が希土類磁石の MAE と同程度の値を示すことがわかった。一方、N や C の位置がランダムになると、MAE は著しく低下することが確認された。2) 遍歴電子系の単純化されたハミルトニアンを用いて有限温度における物理量を記述する理論式を導出し、磁化と MAE が有限温度でどのように振る舞うかを調べた。更にこの手法を第一原理計算に組み込むことによって、実際の磁性体の磁化と MAE の温度依存性を定量的に評価する計算技術を構築した。

オンラインを併用した研究推進会議を通じて活発な議論がなされ、理論グループと実験グループの連携も順調に進んでいる。

5. 今後の計画

研究スタート当初はこれまで理論計算がなされている α' -Fe₁₆N₂ をベースとした化合物の合成を通じて、軽元素 (H, C, O, N) を用いて中間物質を合成し、続いて軽元素を除去あるいは別の軽元素で置換する新しい物質合成法の固相-気相反応メカニズムの解明を行いつつ、研究推進会議における理論グループと実験グループの議論を通じ、薄膜による材料探索および新物質を合成するためのプロセス技術の確立を進めている。理論計算およびモデル実験にて、いくつかの有望な材料系が見出されており研究期間後半には対象を絞り込み、希土類フリー新磁石材料の創出を目指す。

6. これまでの発表論文等 (受賞等も含む)

[1] "Challenge to the Synthesis of α' -(Fe,M)₁₆N₂ nanoparticles obtained by hydrogen reduction and subsequent nitridation starting from α -(Fe,M)OOH (M = Al, V, Cr, Mn, Ni)" M. Tobise, S. Saito, IEEE Trans. Mag., vol. 57, pp. 2100305, 2021.

[2] "First-principles calculation of Curie temperature tuning in L10-type FePt by element substitution of Mn, Cu, Ru, and Rh" Y. Kota, Journal of the Magnetism Society of Japan (Letter), 44(1), 1-4, 2020.

[3] "Role of atomic-scale thermal fluctuations in the coercivity" Y. Toga, S. Miyashita, A. Sakuma and T. Miyake, Nature Partner Journals, 67, 1-7, 2020.

7. ホームページ等

<http://sakuma.apph.tohoku.ac.jp/web/>