

1. 実施課題番号 : 2005B0830, 2006A0229

2. 実施課題名 :

XMCD-PEEM によるネオジム磁石合金の磁区観察と高保磁力化のための組織制御に関する研究

3. 実験責任者所属氏名 : 住友金属工業株式会社 総合技術研究所 山本祐義 15813

(共同研究者 : 住友金属工業株式会社 総合技術研究所 米村光治 5190)

4. ビームライン : BL25SU

5. 実験結果

<概要>

ネオジム磁石の磁区構造について、XMCD-PEEM 法を用いて熱消磁状態および磁場消磁状態を観察する研究手法を構築した。特に磁場消磁状態については、精密な消磁を必要とするため、SQUID を用いて消磁することによって、磁区観察が可能となった。以下、今回の磁区構造観察によって得られた知見について示す。

(1) 熱消磁状態では、結晶粒界を介して磁区構造が結合する傾向が強い。

(2) 一方向に磁場消磁した場合、表層ではほぼ全ての結晶粒がそれぞれ単磁区化している。

磁場反転した磁区が、特に副相の種類/位置や結晶粒組織の形態とどのようなジオメトリックな関係にあるかによって、逆磁区の生成についての実験的な事実を把握できれば、高保磁力化のための合金組織制御上の有力な手がかりともなるため、今後の研究課題として取り組みたい。

XMCD-PEEMによるネオジム磁石合金の磁区観察と高保磁力化のための組織制御に関する研究

1. 緒言

近年、ネオジム焼結磁石(主磁性化合物: $R_2Fe_{14}B$, $R: Nd+Dy$ など希土類元素)は、ハイブリッド電気自動車用などの駆動モータ用に急速に実用化が進展し、それらの使用温度環境に応じた高保磁力化が必要不可欠とされている。高保磁力化のために、実際には次の二つの手法により保磁力の改善が図られている。

- ①主磁性化合物($Nd_2Fe_{14}B$)の異方性磁界(H_a)を高めるためにNdの一部をDyやTbに置換する(合金設計)
- ②保磁力低下原因である逆磁区発生の起点となる局所的な材料組織欠陥を低減する(組織制御)

希土類元素資源の内、Dy, TbはNdに比較して希少かつ高価なため、極力少量で効率よく保磁力を高めたいという経済的な要請があり、従来から②の組織制御的な見地からのアプローチが精力的に取り組まれている。今回の研究は②の手法に対する有効な開発指針を得るためのものである。ネオジム焼結磁石の高保磁力化を組織制御的な見地からアプローチするためには、保磁力低下原因である逆磁区発生の起点となる局所的な材料組織要因を制御することなどが重要とされ、種々の文献から代表例として以下の4点があげられる。

a) 結晶粒界面の形態:

結晶粒界面が割れ、欠け、突起等の原因で平滑性を欠き、逆磁区発生の活性化体積(磁壁厚み δ の3乗オーダー)と同等レベルの界面構造の乱れが存在する場合、逆磁区核発生の起点となりうる。

b) 結晶粒界の異相の存在:

特に軟磁性相の場合、隣接結晶粒の磁氣的結合により、発生した逆磁区の磁壁移動を促進する。

c) 結晶粒径分布:

一般的に、細粒化により隣接結晶粒同士の磁氣的相互作用が弱まるため、保磁力は結晶粒径に反比例して増大する傾向がある。一方で、結晶粒径が大きくなると1粒子内に多数の磁区を有する多磁区粒子の存在が保磁力低下の原因になることが予想される。

d) 結晶粒の配向性: 配向度を高めると保磁力は低下する。

これらの材料組織的な要因と磁区構造の相関についての情報が充実すれば、磁石合金組織制御上の有効な開発指針に繋がると考えられる。そこで本研究では、高分解能でバルク表面の磁区構造観察が可能なXMCD-PEEM法を活用して、Nd-Fe-B系の通常保磁力材とNd-Fe-B系の高保磁力材の磁区構造観察を行い、上記4点の組織要因と逆磁区発生の相関を調べることにより、ネオジム磁石の高保磁力化に効果的な要因を明らかにすることを中長期的な目的として、検討を開始した。対象材料は、R-Fe-B系焼結磁石合金($R: Nd, Dy$)とし、実験手法は、以下の4点である。

- i) 磁区観察: PEEMSPECTOR(ビームライン: BL25SU)、元素選択的な磁区観察が可能(Fe, Nd, Dy, 他)、昇温可能
- ii) 元素マッピング: SPELEEM(ビームライン: BL29SU/BL17SU)、オージェ電子のアナライジング機能
- iii) 化学状態(ケミカルシフト)マッピング: SPELEEM、特定の化学結合状態の表面分布情報
- iv) 結晶粒配向マッピング: SPELEEMのLEEMモード(個々の結晶粒のLEEDパターン解析)

測定結果の解析の指針としては、以下の点に着目することとした。a) 結晶粒界面の形態及びc) 結晶粒径の2点と逆磁区発生起点との相関についてはi)の実験で検討を行う。さらにb) 結晶粒界の異相の存在形態との相関についてはi)とii)、d) 結晶粒の配向性との相関についてはi)とiv)の実験結果の比較によってそれぞれ検討を行う。また、iii)の実験からは上記組織形態と逆磁区発生の相関の原因となるメカニズムについて電子状態の変化から考察を行うための情報が得られることを期待している。

2005B~2006A期の課題検討の成果として、i)の実験手法について、ネオジム磁石の熱消磁/磁場消磁サンプル調製方法からXMCD-PEEM法による磁区観察手法を確立し、今後の基礎研究を展開できる見通しを得た。

2. X線磁気円二色性－光電子顕微分光法の原理

(X-ray Magnetic Circular Dichroism - Photoemission Electron Microscopy ; XMCD-PEEM)

放射光の蓄積リング内に設置されたヘリカルアンジュレータによって生成させた円偏光X線を、特定元素の内殻電子を励起するエネルギーに単色化し、磁区構造を持つ試料表面に入射すると、放射光の入射方向に対して磁化ベクトルが平行か反平行かによって、光電子の発生強度が異なることによって、磁区構造が顕出される。

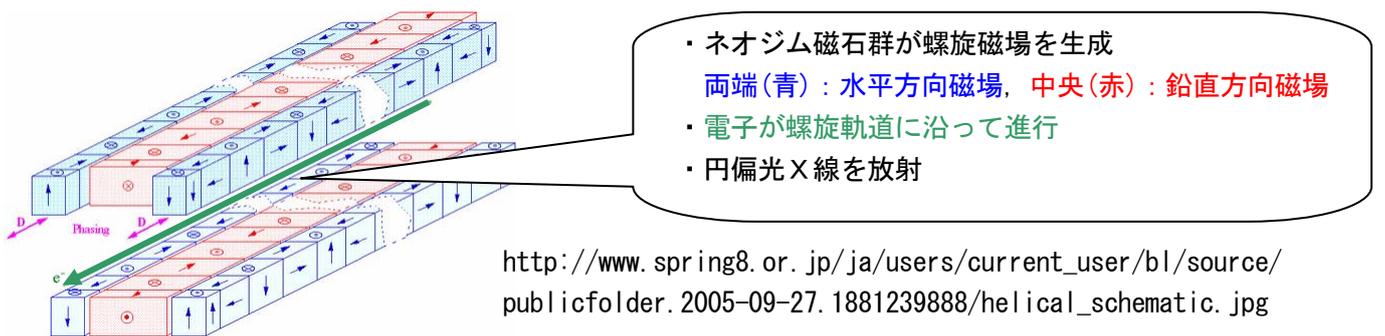
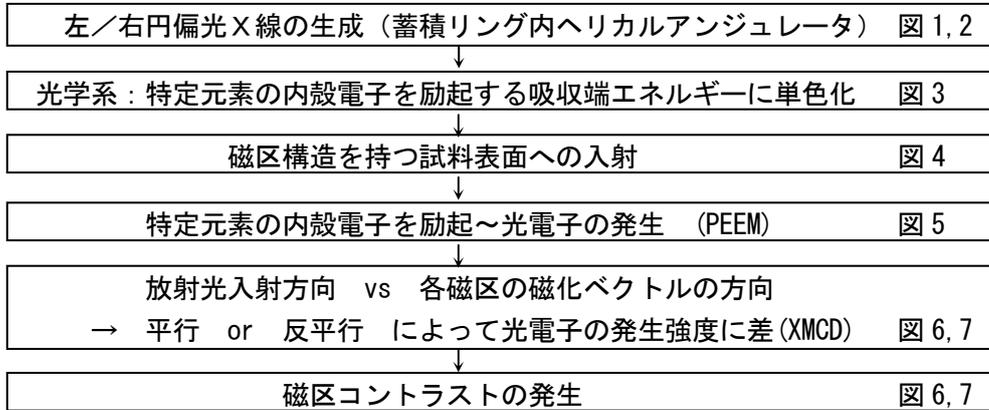


図 1. ヘリカルアンジュレータ (材マックスで構成される揺動型の螺旋磁場発生機)

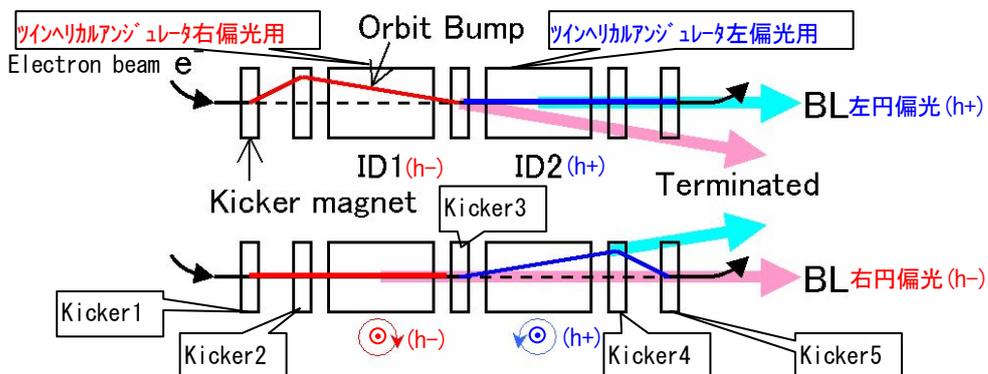


図 2. ツインヘリカルアンジュレータによる左右円偏向の切替システム (概略)

http://www.spring8.or.jp/s8studycase/wkg/BL25SU/instrument/img/BL25SU_opt1.jpg

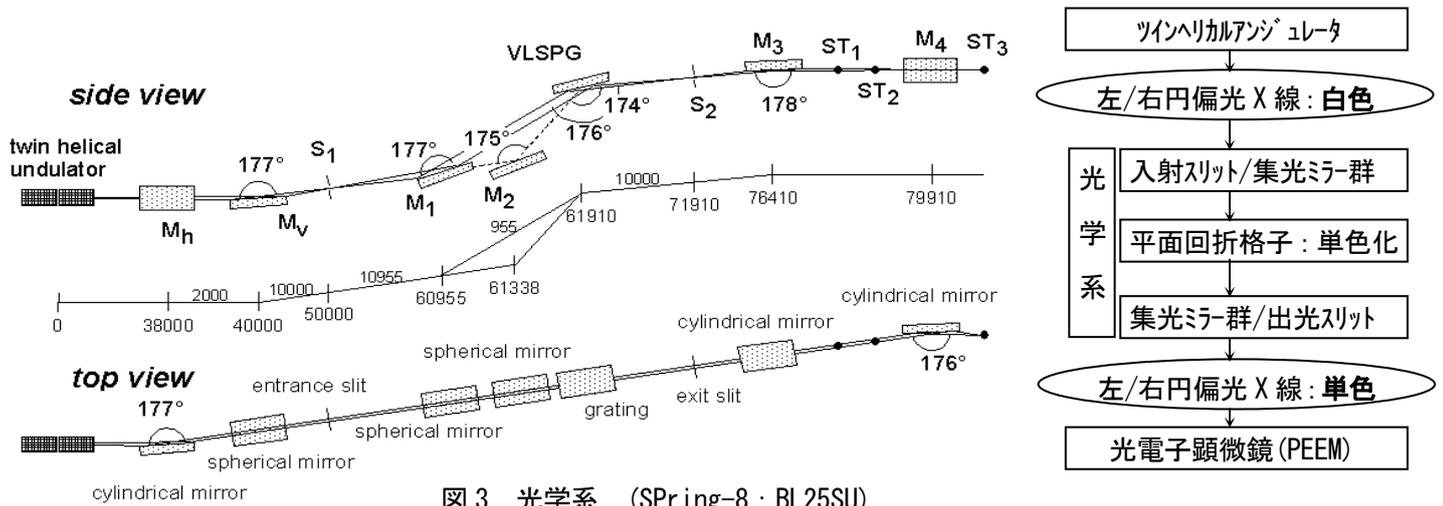


図 3. 光学系 (SPring-8 : BL25SU)

http://www.spring8.or.jp/s8studycase/wkg/BL25SU/instrument/img/BL25SU_opt2.jpg

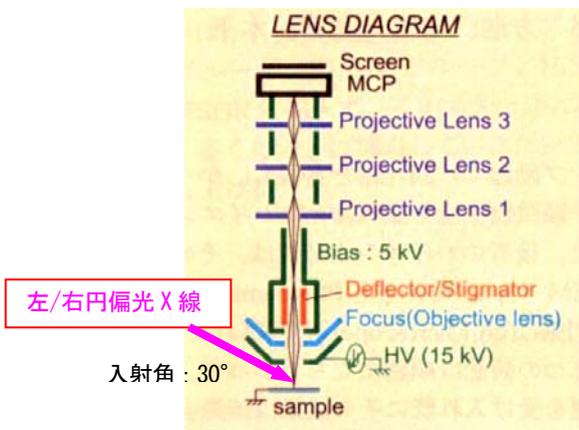


図 4. 光電子顕微鏡 (PEEM)

*) 小林啓介 : SPring-8 Information, Vol. 10, No. 2, (2005) March

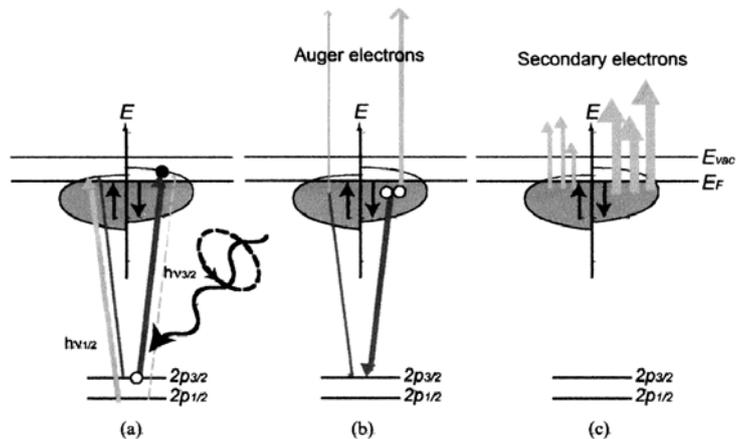


図 5. XMCD による光電子励起過程

*) 奥田太一, 木下豊彦 : 表面科学 Vol. 26, No. 1 (2005) 19-27

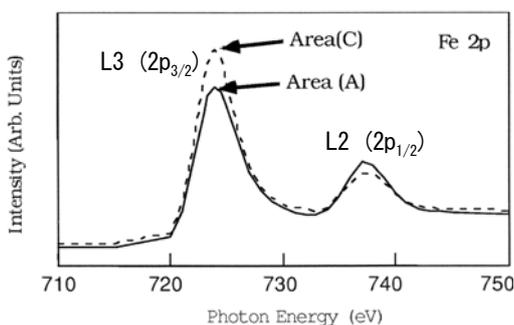


図 6. X 線吸収スペクトル (XAS) に及ぼす

XMCD の影響 *) T. Kinoshita : J. Ele. Spe. Rel. Phe. Vol. 124, (2002) 175-194

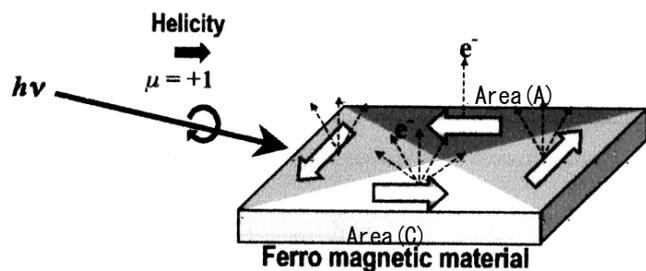


図 7. XMCD-PEEM による磁区コントラスト

XMCD-PEEM 法による磁区観察の利点としては、(1) 元素選択的な情報が得られる、すなわち Fe, Nd, Dy など磁性を担うそれぞれの構成元素に由来する磁区構造を可視化できること、(2) 同時に、構成元素の濃度分布情報が取得可能であり、主相と副相の元素濃度分布を定性的に識別可能であること、(3) 比較的分解能が高く、放射光の場合 100nm 程度であること、が挙げられる。また、バルク表面の磁区構造情報が得られるという特徴があるが、表面の深さ方向数 nm までの情報を取得するため、表面に酸化皮膜が形成される場合には観察前のスパッタが必要である。バルク試料であるため薄膜のような特異性はないが、内部の磁区構造を正しく反映しているかどうかは吟味が必要である。別の留意点として、光電子を検出する原理上、試料が磁化した状態では観察できないため、観察すべき試料は、熱消磁あるいは磁場消磁状態のみに制約される。

3. XMCD-PEEM を活用した保磁力機構検討のアプローチ

XMCD-PEEM 法の原理と特徴を踏まえて、以下のように本研究課題に対する具体的な実験アプローチを試みた。

本来は、磁区構造が変化する過程を磁気ヒステリシス(図 8)上で、①熱消磁状態からの初磁化、②飽和磁化、③④残留磁化、⑤~⑦減磁界下のマイナーループ挙動、⑦' 磁場消磁状態、のそれぞれについて高分解能に観察することができれば、逆磁区の発生に関わる多くの情報が得られるはずである。しかし、PEEM の原理上、試料にマクロな残留磁化が存在すると、光電子像の軌道が試料表面の漏れ磁場の影響を受けるため、結像しない。このため、残留磁化がゼロの試料のみが観察可能であることから、①熱消磁状態、⑦' 磁場消磁状態、を観察対象として、保磁力機構に関わる組織形態上の情報を取得すべく、以下の点に着目した。

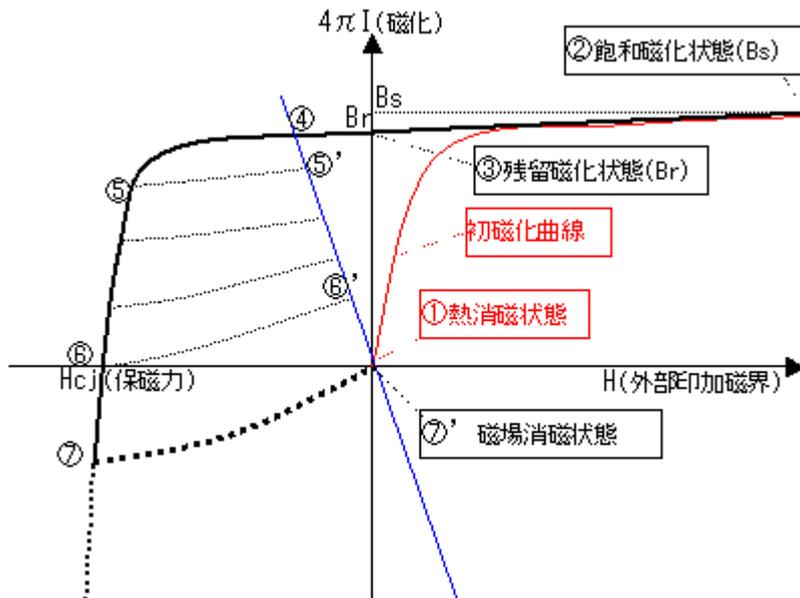


図8. 本磁石の模式的な磁気ヒステリシス曲線(点線：マイナーループ)

<着目点>

- (1) 熱消磁状態の磁区構造における隣接結晶粒同士の磁氣的結合の度合い
- (2) 磁場消磁状態
 - ① 一方向に飽和磁化した後、逆方向に反転した磁区の特徴(サイズ、形状、c 軸配向分散度合い)
 - ② 個々の結晶粒内の磁区構造：単磁区粒子、多磁区粒子等、磁区構造の分類
 - ③ 反転磁区の空間分布的特徴：孤立状態か、集合体形成か
 - ④ 反転磁区とその周辺環境の特徴：副相(R-rich など)の種類、形状、副相の磁性的特徴(常磁性/軟磁性)

<供試材>

磁区観察用の焼結磁石合金は、高周波溶解により Fe-Nd-B 系原料合金を溶製し、水素粉碎、ジェットミル微粉碎、磁場中成形、焼結、熱処理の工程により作製した。主磁性相である Nd₂Fe₁₄B 相は c 軸方向に磁化容易軸を持つ正方晶であり、本磁石は磁場中成形時に c 軸を一方向に配向させる 1 軸異方性焼結磁石である。観察試料は、磁化容易軸の c 軸配向方向が観察面内に配置するように採取した。

4. 結果

4. 1 熱消磁状態における観察

(1) 磁区観察のためのMCDピークエネルギーの決定

磁性を担う構成元素の吸収端エネルギーを把握するため、FeのL2, 3吸収端領域(内殻 $2p_{3/2} \sim 2p_{1/2} \rightarrow 3d$ 軌道への励起)で左右円偏光X線入射光のエネルギーをスキャンさせて吸収スペクトルを採取し、差分よりMCDスペクトルを導出した(図9)。吸収ピークエネルギーのX線を入射すると、PEEM像ではFeを多く含む主相のコントラストが明るくなり、副相では逆に暗くなる(図10)。また、Fe-L3吸収ピークに酸化物形成によると推定されるケミカルシフトが認められる。このケミカルシフトによるピークは、スパッタ後、消滅することが確認された。コントラストの高い磁区構造の像(図10)を得るためには、偏光反転法によって得られた右円偏向像(ID1)と左円偏向光像(ID2)について、以下の画像演算処理を施すことが効果的である。

ID1 : 右円偏向X線(h⁻)-PEEM像, ID2 : 左円偏向X線(h⁺)-PEEM像

(MCD) = {(ID1) - (ID2)} / {(ID1) + (ID2)} 演算処理により、画像の磁区コントラストを強調

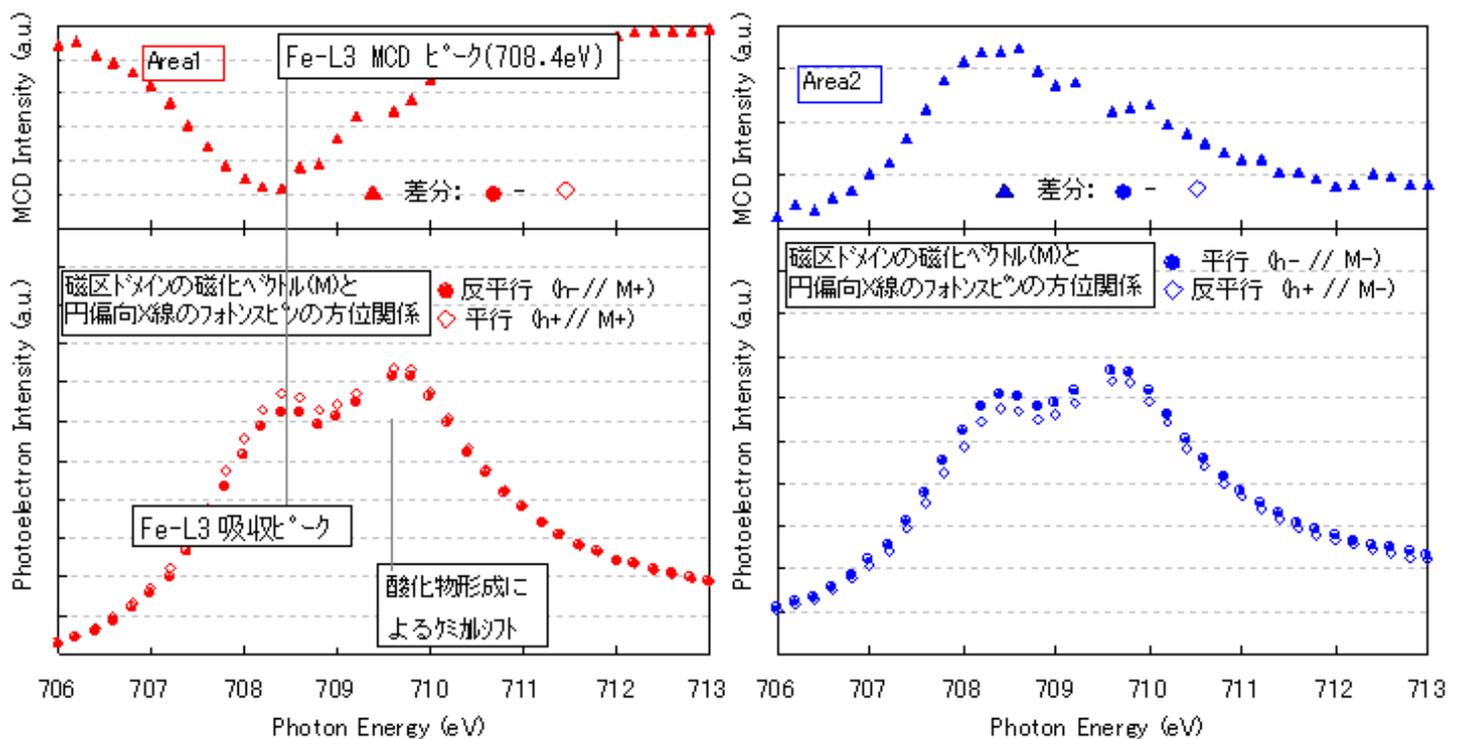


図9. Fe-L3吸収端近傍領域の局所吸収スペクトルとMCDスペクトル

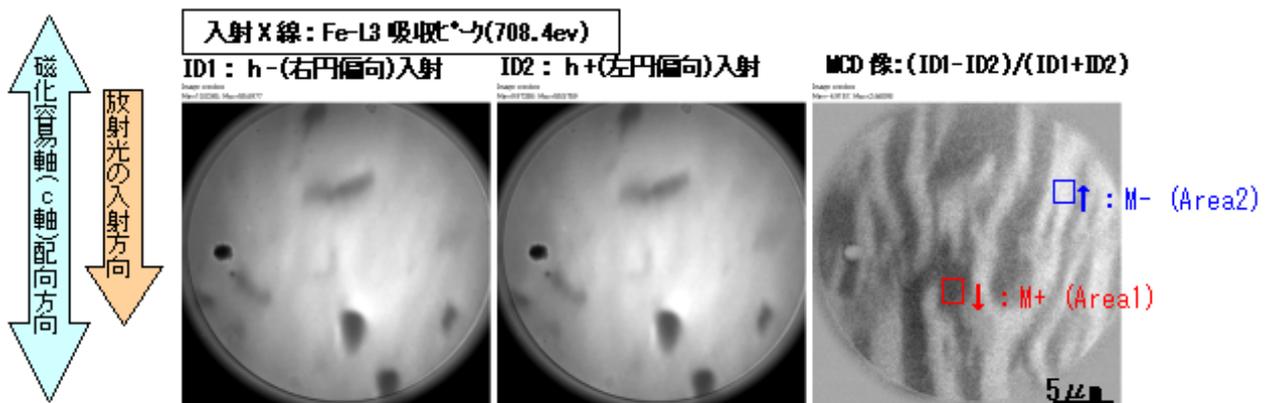


図10. 左/右円偏向X線-PEEM像からのMCD画像合成による磁区観察

(2) Fe-L3 MCDピークによる磁区観察 ($\theta=0^\circ$)

スパッタによる酸化皮膜除去後の試料を用いて、磁区観察を行った(図11)。入射光にはFeのL3ピークの円偏光X線を用いて、副相の組織形態を識別するとともに磁区構造との関係を観察した。MCD像中、副相がトポグラフィックに見えるのは、僅かに視野ずれしたID1像とID2像を合成したためであり、視野ずれがなければ、本来は平坦に見える。

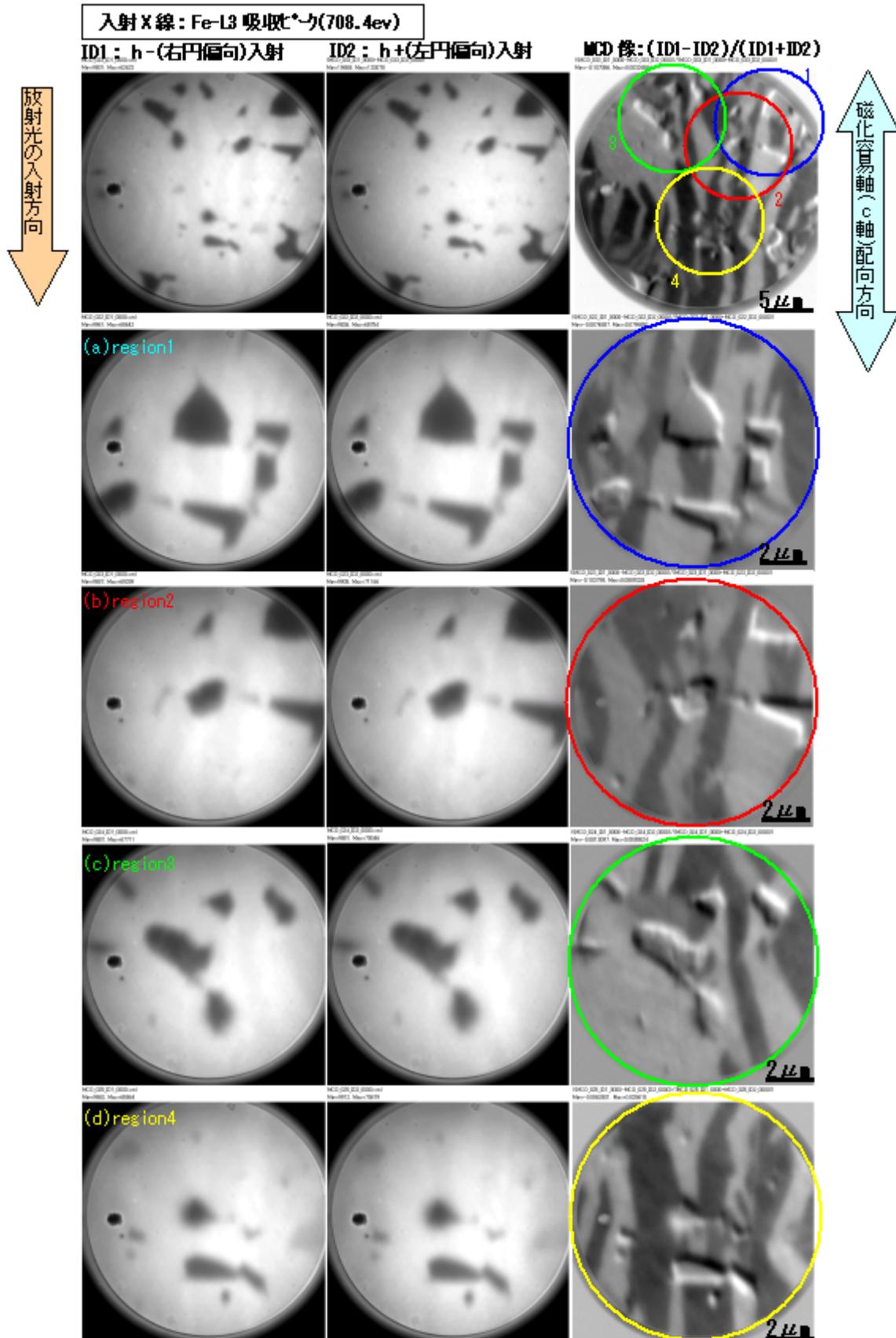


図11.左/右円偏光X線-PEEM像からのMCD画像合成による磁区観察($\theta=0^\circ$)

(3) 焼結磁石組織中の磁区構造と組織形態の関係

FE-SEM/EDS により、事前に組織形態の観察と副相の分析を実施したと同一視野(図 12a)で、XMCD-PEEM 法により磁区観察を行い、MCD 画像からトレースして磁区構造と組織形態の関係について模式化した(図 12d)。副相(赤い領域で図示)は主に粒界3重点に存在する。磁区模様は、薄いグレーと白のコントラストで示した。結晶粒界(太線; 推定)については、この実験においては磁壁の角度変化や磁区コントラストそのものの変化から判定した。熱消磁状態における磁区構造の特徴としては、隣り合う結晶粒の磁区が多少の結晶方位が異なっても、結晶粒界を介して磁的に結合していることが多いということである。例外として、視野の左上近傍に単磁区に近い大きな結晶粒が認められるが、その起源は明らかでない。熱消磁状態のみの磁区構造情報からは、副相が外部磁界による磁壁の移動に対して、どのような作用効果を発揮するかは、把握できない。本研究の重要なポイントは、どのような副相や粒界構造が磁壁移動を促進あるいは阻止しやすいのかにあり、これを知るためにはサンプルに外部磁場を与えた後の磁区構造の変化挙動を見る必要がある。そこで、磁場消磁を完全に施すための方法として、超伝導マグネットを備えた精密磁化測定が可能な SQUID を活用することとし、次の検討ステップに進展した。

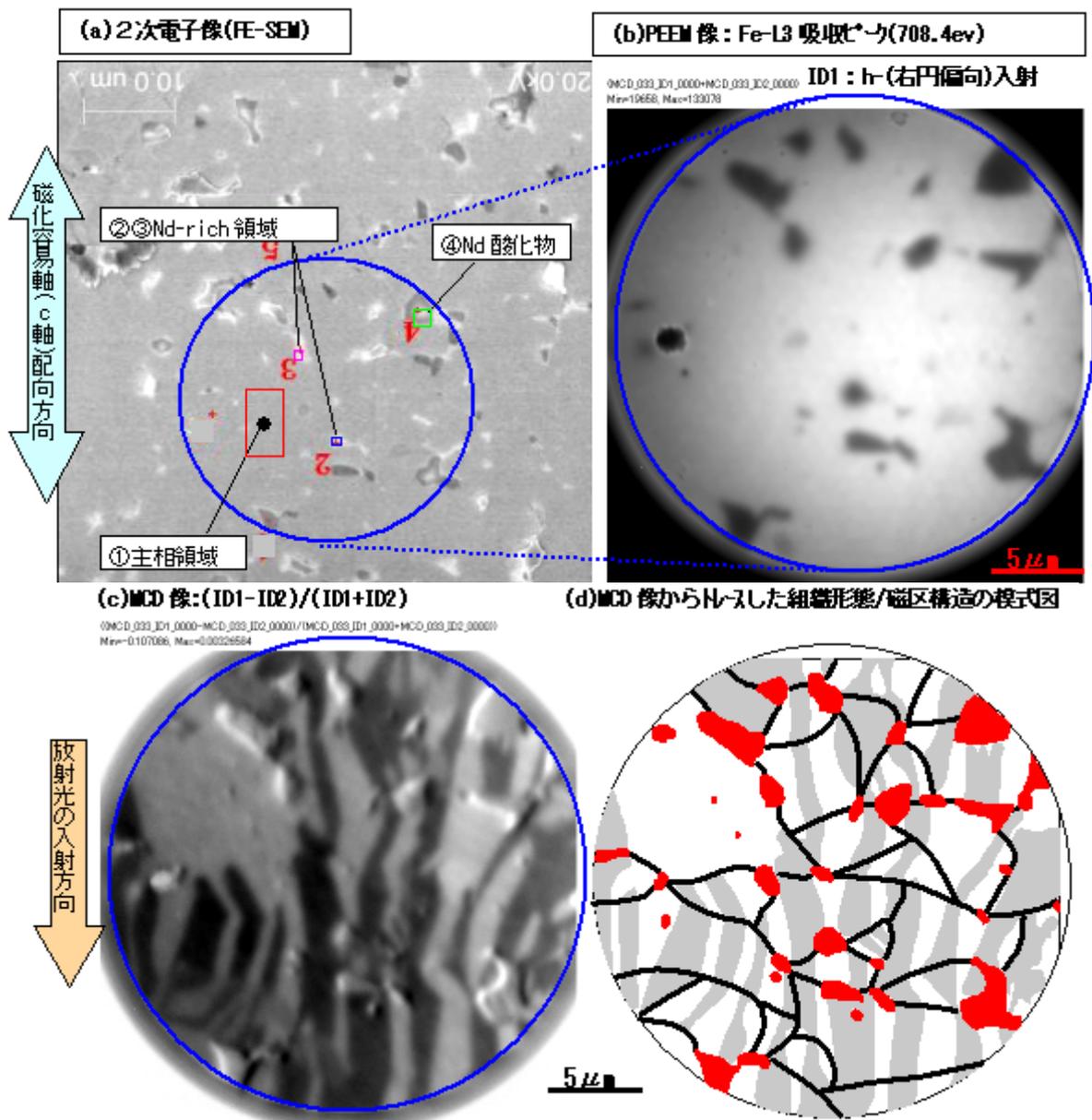


図 12. NdFeB 磁石の磁区構造と組織形態の関係

4. 2 磁場消磁状態の観察

(1) 磁場消磁サンプルの作製

XMCD-PEEM による磁区観察から磁壁移動挙動・保磁力に関する知見を得るために、磁化の履歴が明確かつ完全に磁場消磁されたサンプルを用いることとした。サンプルは7mm角で厚さ1mmとし、面内に平行な一方向に磁化容易軸(c軸)が配向するように採取した。磁場消磁にはカンタムデザイン社製のSQUIDを使用した。まず、正方向に6~7Tの静磁場を印加してほぼ飽和磁化に到達させた後、逆磁場を印加。印加する逆磁界の大きさを、超伝導マグネットの電流値を精密に制御しつつ漸増させ、外部磁場がゼロの時の残留磁化が限りなくゼロに近づくように、マイナーループを確認しながら繰り返し逆磁場を印加することによって、ほぼ完全に磁場消磁したサンプルを得た(図8の磁気ヒステリシス曲線模式図を参照)。

(2) MCD ピークエネルギーの測定

ネオジム磁石焼結体サンプルのc軸配向方向に、+1.9Tの静磁場を印加した状態で、c軸配向面に対して垂直に円偏光X線を入射する。(図13)

構成元素の吸収端領域近傍で入射光のエネルギーをスキャンさせると、吸収端に対応するエネルギー値で吸収強度が最大となる。(図14, Absorption)

この測定を、左右の円偏光X線を切り替えて行い、差分をとった量が、偏光反転法によるMCD強度である。(図14 MCD)

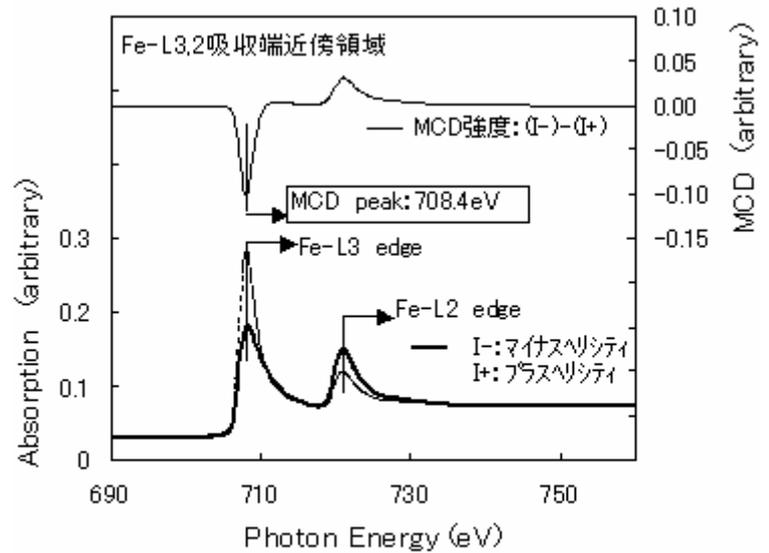


図14.MCDピークの測定(Fe)
測定およびデータ提供: 中村哲也博士(BL25SU)

MCD強度の定義: $(I-) - (I+)$

I-: マイナスヘリシティの円偏光X線を入射したときの吸収強度

I+: プラスヘリシティの円偏光X線を入射したときの吸収強度

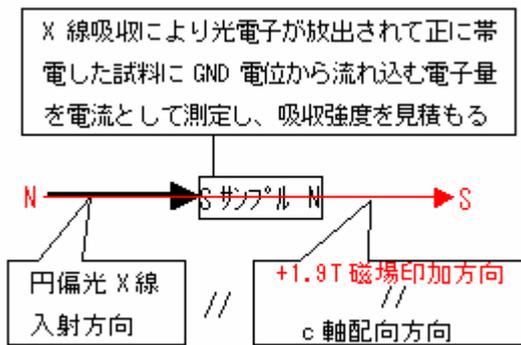


図13.MCD測定法の概略(全電子収量法)

FeのL3吸収端のMCD強度は比較的大きな負の値を示す。マイナスヘリシティを持つ円偏光X線で、これらの吸収端を用いて磁区観察をすると、入射方向に平行な磁化ベクトルを持つ磁区は暗く、反平行な磁化ベクトルを持つ磁区は明るいコントラストを成す。(表1)。

表1. 磁区コントラストと磁化方向の対応の識別

入射光のエネルギー	磁化ベクトルの方向	
	初磁化方向	反転方向
Fe-L3 吸収端	黒	白

(2) XMCD-PEEM による磁場消磁状態の磁区観察

図 15 に、磁場消磁したサンプルの PEEM 像を示す。初磁化方向は紙面上、下方向であり、内殻励起光には Fe の L3 吸収端エネルギーに単色化した円偏光 X 線を用いて、紙面上、左方向から入射した。像の形状が楕円形に補正してあるのは、磁場消磁を施したサンプル表面の漏れ磁場によって大きな非点収差補正を必要としたため、像が歪んでいることが後で確認されたためである。形状の補正にあたっては、同一視野の光学顕微鏡増像を用いた。図 15(a) の右円偏光像 (ID1) において、暗いコントラストの領域は R-rich な副相領域である。四角い暗い領域は、予備実験として事前に SEM-EDS による元素マッピングを行った領域である。図 15(b) に、対応する視野の磁区構造像を示す。サンプルの c 軸配向方向と入射光の角度関係は 90° であるため、磁区模様には、配向方向からの角度分散度合いに応じて種々のグレースケールコントラストが現れる。したがって、このような撮像によって磁区境界が容易に識別できる。図 17 に、副相領域と磁区境界をトレースした模式図を示す。トレースした個々の磁区領域は、別途低エネルギー電子顕微鏡 (Low Energy Electron Microscopy; LEEM) の一機能であるミラー像 (Mirror Electron Microscope; MEM) を用いて識別した結晶粒界とほぼ 1 対 1 で対応していることから、焼結組織を構成する個々の結晶粒がそれぞれ単磁区化しているケースがほとんどであると判明した。

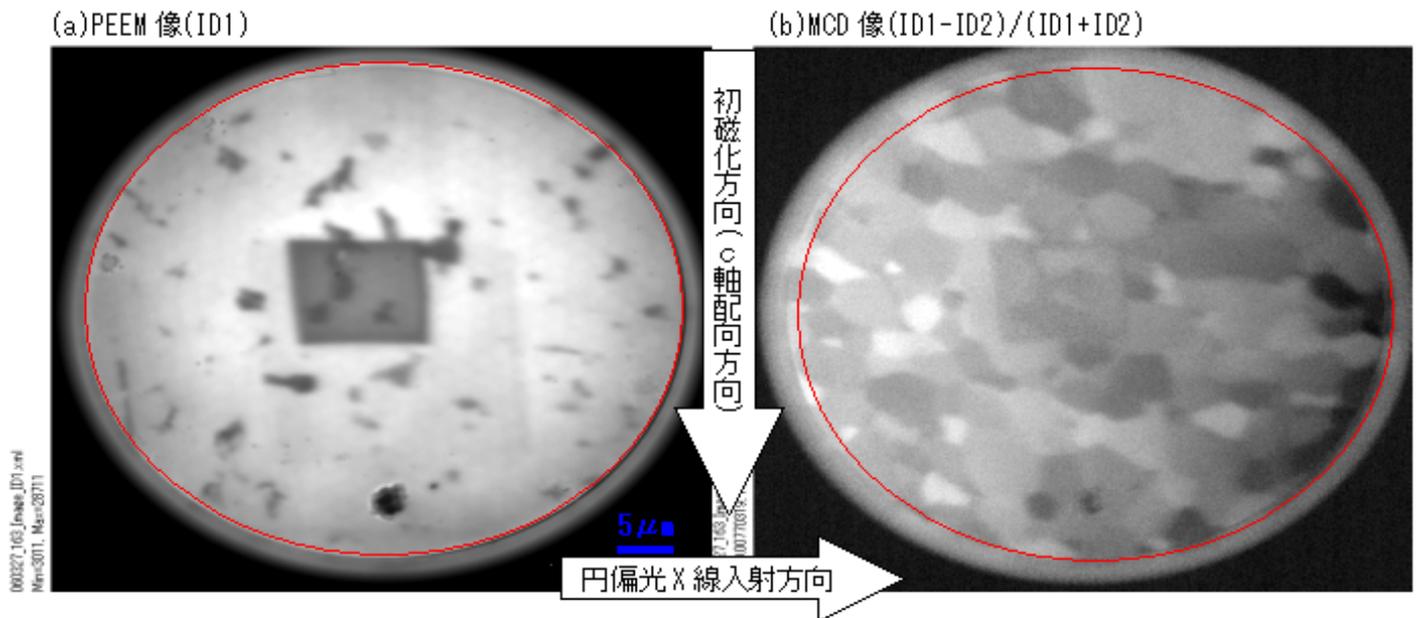


図 15. 磁場消磁状態 Fe-L3 吸収端 (c 軸配向方向 ⊥ 放射光入射方向)

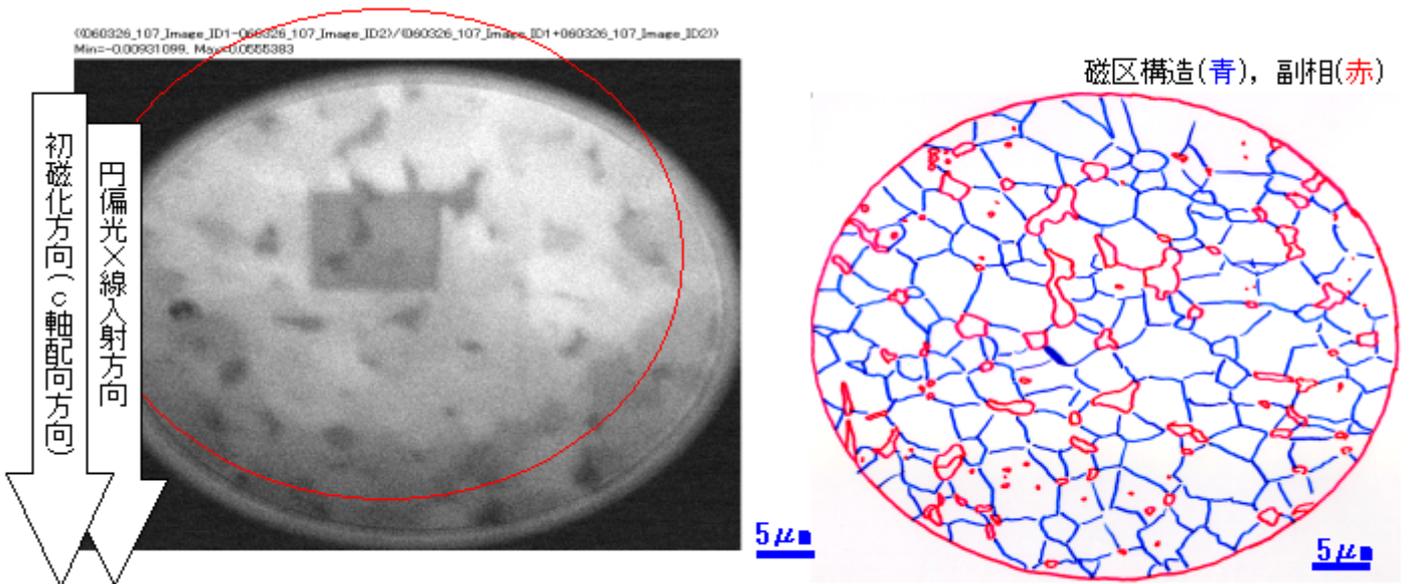


図 16. 磁場消磁状態 Fe-L3 吸収端 (c 軸配向方向//放射光入射)

図 17. 磁区構造模式図 磁場消磁状態

これらの現象の推定要因としては、観察表面の表層に存在する結晶粒は保磁力が小さいために、磁場消磁操作の際に、優先的に磁化ベクトルが反転しやすいためと考えられる。したがって、磁場消磁状態のバルク状態における磁区構造情報を取得するためには、観察用サンプルの作製のための磁場消磁操作を終えた後、何らかの方法によって表層の結晶粒を除去し、内部の磁区構造を表層に露出させることが必要であると考えられ、今後の実験手法の開発課題として取り組みたい。

このような結果の下で、副相と磁区構造との関係については、今回の観察結果においては、特徴的な相関関係を認めるにいたらず、今後のさらなる詳細な実験および解析が必要と考える。

以上の、磁場消磁サンプルの観察後、試料温度をキュリー点の 320°Cまで一旦上昇させて熱消磁した後、同一視野で観察した(図 18)。熱消磁磁区構造の特徴として、結晶粒内が多磁区状態となっており、結晶方位が連続しない隣接結晶粒に対して、粒界を超えた磁氣的結合が強い様相を呈する。

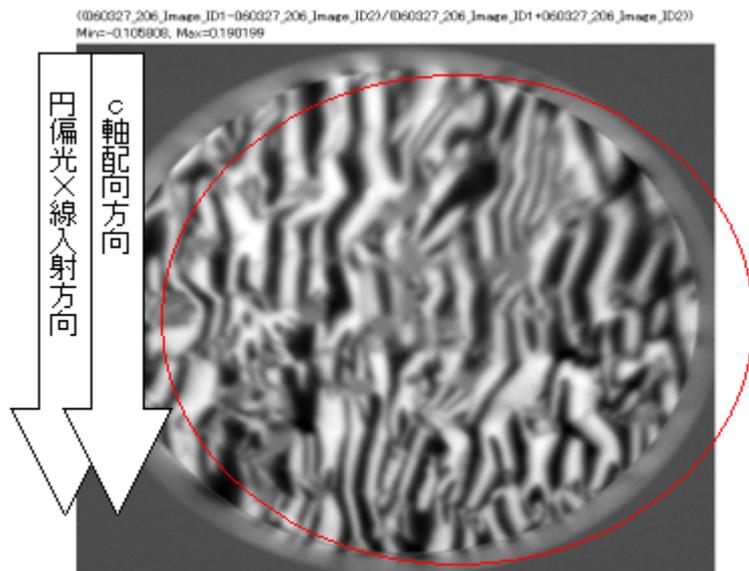


図 18. 熱消磁状態(320°C~冷却)
Fe-L3 吸収端 (c 軸配向方向 // 放射光入射方向)

5. 考察

静岡理工科大学の小林教授らのグループでは、磁区構造について次のような分類をして保磁力機構についての研究が進められている。(関連参考文献：末尾に記載)

- (1) 単磁区粒子(single domain particle ; SDP) : 単磁区状態で残留磁化を発現する粒子。逆磁界を印加すると、一定以上の逆磁界を超えると、磁化反転により逆方向の磁化ベクトルを持つ単磁区粒子となり、逆磁界をゼロに戻しても単磁区のまま残留磁化を発現する。
- (2) 多磁区粒子(multi domain particle ; MDP) : 多磁区状態に外部磁界印加後、磁壁が移動して一旦磁化を持つが、外部磁界をゼロに戻す過程でも磁壁の移動が起こり、残留磁化がゼロとなる粒子。
- (3) 着磁可能な多磁区粒子(saturable multi domain particle ; SMDP) : 外部磁界印加後、磁壁が移動して単磁区粒子となり、外部磁界をゼロに戻しても単磁区のまま残留磁化を発現する。さらに逆方向に外部磁界を印加していくと、一定磁界以上で一旦多磁区状態に戻り、逆磁界の増大とともに磁壁の移動により単磁区化し、逆磁界をゼロに戻しても単磁区のまま残留磁化を発現する。

ネオジム磁石では非磁性粒界相を隔てて隣接する結晶粒同士の磁氣的結合によって、現象は複雑化するので、多磁区粒子の残留磁化はゼロにはならず、個々の結晶粒の周辺環境によって異なる値をとると推定される。(周辺環境：結晶粒間の結晶方位関係，粒界非磁性相の厚み，粒界の軟磁性相(α -Fe, Nd₂Fe₁₇ 相等)，結晶粒の形状/クラック等)

ここでは、これらの概念を念頭においた上で本実験結果および解析結果から、ネオジム磁石の磁化過程について次のように模式的に検討した。

まず、図 19 のネオジム磁石の典型的な磁気ヒステリシス曲線の模式図から、飽和磁化を B_s 、残留磁化を B_r として、 $\Delta B = B_s - B_r = \Delta B_1 + \Delta B_2$:

ΔB_1 : 飽和磁化時、回転磁化によって強制的に c 軸から外れた方位に磁化していた磁区の磁化ベクトルが、外部磁界をゼロに戻す過程で、 c 軸方向に復元することによって由来する磁化低下分。

ΔB_2 : 飽和磁化時、単磁区化していた多磁区粒子が、外部磁界をゼロに戻す過程で、もとの多磁区状態に戻ることに由来する磁化低下分。

B_r : 残留磁化は、単磁区粒子と着磁可能な多磁区粒子が担っている。

ネオジム磁石の熱消磁状態では、
 (1) ΔB が小さいので、通常が多磁区粒子の比率はわずかである。
 (2) XMCD-PEEM の磁区観察結果より、単磁区粒子の比率も非常に小さい。
 →したがって、ほとんどの結晶粒は着磁可能な多磁区粒子に分類されると推定される

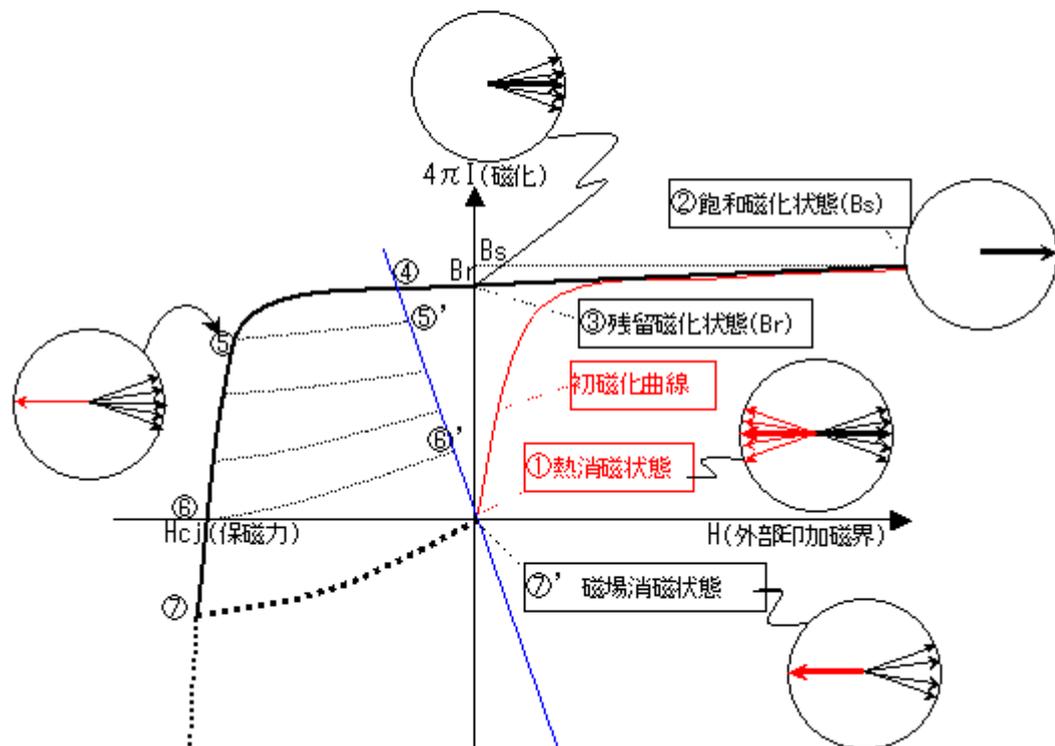


図 19. ネオジム磁石の模式的な磁気ヒステリシス曲線(点線：マイナースペック)

今回のXMCD-PEEMの磁区観察結果と上述の推定に基づいて、熱消磁状態における結晶粒の磁区分類と磁区構造の初期状態について模式的に示す(図20)。

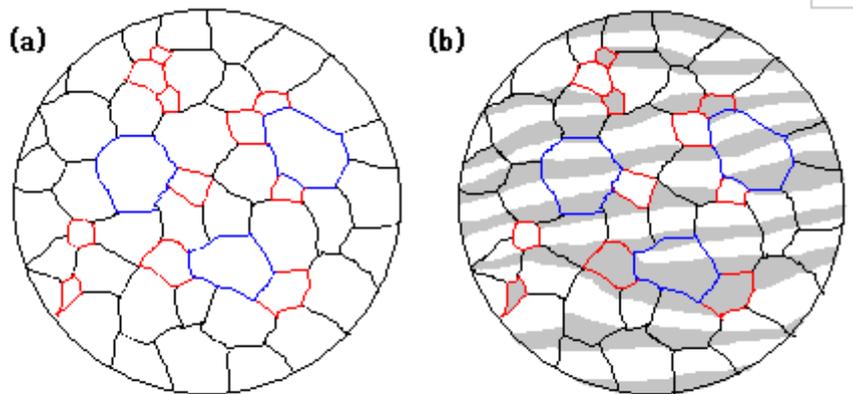
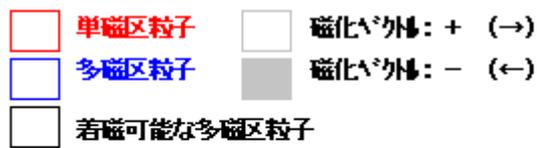


図20. 針状磁石の(a)結晶粒組織と(b)磁区構造模式図(①熱消磁状態)

単磁区粒子を除いて、すべての結晶粒が多磁区状態であり、XMCD-PEEMの観察結果から、隣接する結晶粒と磁気的に結合している場合が多いと推定される。

(3) 初磁化過程と飽和磁化状態(図21a) 磁気ヒステリシス曲線中、原点～(②飽和磁化状態)

外部磁界を印加(+方向; 右向)すると、多磁区粒子中の磁壁移動によって、すべての結晶粒が正方向のc軸方向に磁化される。さらに、飽和磁化に至る過程で回転磁化により、c軸方向から磁場印加方向に磁化が回転して磁化ベクトルが完全に一方向に揃う。

(4) 残留磁化状態(図21b) 磁気ヒステリシス中③ (実際には磁石形状に依存する反磁界係数のため、青色直線上④)

印加磁界をゼロに戻す過程で、磁化の方向がc軸方向に戻るとともに、多磁区粒子が多磁区状態に戻る。単磁区粒子と着磁されうる多磁区粒子は、初磁化方向に磁化された状態を保つため、全体としては飽和磁化よりも少し小さい残留磁化状態となる。

(5) 逆磁界印加(図21c) 磁気ヒステリシス中⑤

逆磁界を印加すると、磁区反転する。その際、結晶配向の観点から最も反転しやすい結晶粒は、より正方向に近い磁化ベクトルをもつ結晶粒である(近角のモデル)。その他の要因として、粒界生成物や局所的な反磁界の大きい結晶粒の鋭角領域/クラックなどが考えられる。

(6) 逆磁界除去(図21d) 磁気ヒステリシス中⑤'

逆磁界を除去すると、磁気ヒステリシス上でマイナーループを描く場合は、逆磁区の領域が収縮しつつも残り、残留磁化が減少する。マイナーループ上の残留磁化は、逆磁界を大きくするほど小さくなる(④→⑤'→⑥'→⑦')。

(7) 逆磁界印加(保磁力以上)(図21e) 磁気ヒステリシス中⑦

保磁力以上の大きな逆磁界を印加すると、着磁されうる多磁区粒子の一部はその周辺環境によって単磁区化される。また、単磁区粒子もその周辺環境により、逆磁区に単磁区化すると推定される。

(8) 逆磁界除去(図21f) 磁気ヒステリシス中⑦' 残留磁化ゼロ: 磁場消磁状態

逆磁界を除去したときに磁気ヒステリシス上の原点に戻る場合は、残留磁化がゼロの「磁場消磁状態」に到る。このとき、逆磁界によって単磁区化された多磁区粒子は着磁されたまま残留する。磁石全体としては、残留磁化がゼロとなる。

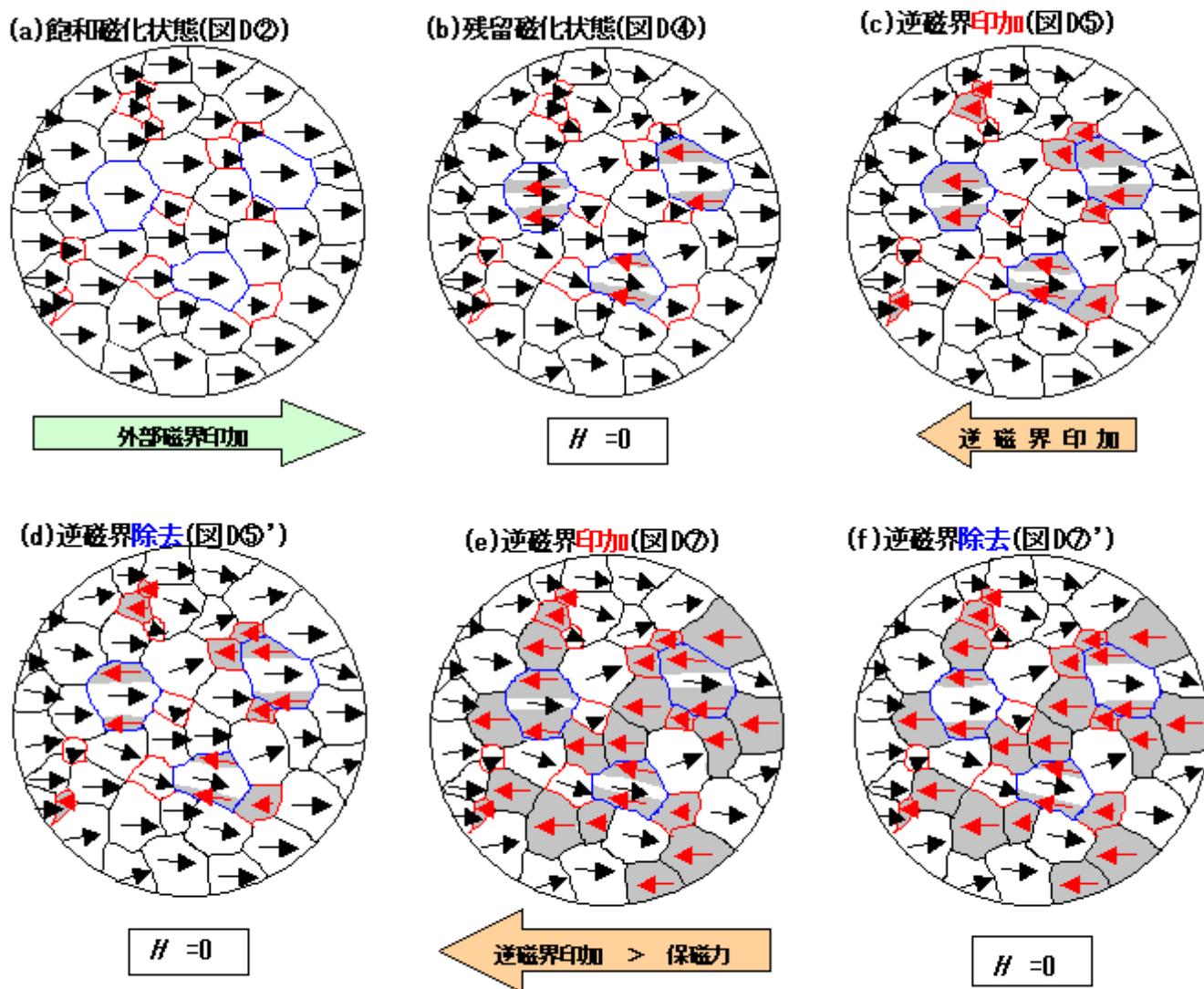


図21. 外部磁界印加による磁区構造の変化過程の推定模式図

5. 結言

ネオジム磁石の磁区構造について、XMCD-PEEM法を用いて熱消磁状態および磁場消磁状態の観察する研究手法を構築した。特に磁場消磁状態については、精密な消磁を必要とするため、SQUIDを用いて消磁することによって、磁区観察が可能となった。以下、再現性についての確認が必要ではあるが、磁区構造について得られた知見を示す。

- (1) 熱消磁状態では、結晶粒界を介して磁区構造が結合する傾向が強い。
- (2) 一方向に磁場消磁した場合、表層ではほぼ全ての結晶粒がそれぞれ単磁区化している。ただし、表層結晶粒の磁化ベクトルは磁場消磁操作においてほぼ全てが反転おり、バルク内部の磁区構造を反映していない。

一方、磁場消磁状態の磁区観察における大きな課題として、内部の磁区構造情報を取得するためのサンプル作製技術が要求される。磁場消磁操作時に磁区反転してしてしまう表層結晶粒領域を除去して、内部磁区構造を表面に露出させた状態での観察手法の確立が次の課題となる。

そして、磁場反転した磁区が、特に副相の種類/位置や結晶粒組織の形態とどのようなジオメトリックな関係にあるかによって、逆磁区の生成についての実験的な事実を把握できれば、高保磁力化のための合金組織制御上の有力な手がかりともなるため、今後の研究課題として継続的に取り組みたい。

小林教授(静岡理工科大)らのグループで研究されている保磁力機構についての参考文献の一例

- 1) 小林久理眞、伊藤建護、佐川眞人：電気学会マグネティクス研究会資料214(2004)17-22
「Nd₂Fe₁₄B系焼結磁石の磁化過程の精密解析」
- 2) 小林久理眞、中村美香、秋屋貴博、早川一生：電気学会マグネティクス研究会資料172(2001)13-17
「Zn金属との反応によるSm₂Fe₁₇N₃磁性粒子の保磁力向上の原因について」
- 3) 小林久理眞、杉山浩之、中村美香：電気学会マグネティクス研究会資料276(2000)13-18
「Sm₂Fe₁₇N₃磁石の多磁区粒子における磁壁運動と、同単磁区粒子の磁化反転挙動の相関性について
含；金属添加効果を用いた同様の相関性についての研究結果」
- 4) 小林久理眞：日本応用磁気学会誌Vol. 22(1998)357-360
「着磁可能Sm₂Fe₁₇N₃磁石多磁区粒子における着磁および核生成挙動の解析」
- 5) 小林久理眞：まてりあVol. 42(2003)405-412
「永久磁石の磁化反転機構」
- 6) Kurima Kobayashi and Dominique Givord:日本応用磁気学会誌Vol. 21(1997)1175-1180
“Separation of Magnetic properties of Single-, Multi-, and Saturable Multi-domain Particles”