

## 軟 X 線ナノビーム走査型 XMCD による Nd-Fe-B 系焼結磁石の結晶方位と磁区構造の関係解析

### Analysis of Relationships between Crystal Orientation of Grains and Magnetic Domains in Nd-Fe-B Sintered Magnet by Soft X-ray Nano-beam XMCD

榎 智仁<sup>a</sup>, 古澤 大介<sup>a</sup>, 西内 武司<sup>a</sup>, 竹澤 昌晃<sup>b</sup>  
Tomohito Maki<sup>a</sup>, Daisuke Furusawa<sup>a</sup>, Takeshi Nishiuchi<sup>a</sup>, Masaaki Takezawa<sup>b</sup>

<sup>a</sup>日立金属, <sup>b</sup>九州工業大学  
<sup>a</sup>Hitachi Metals, Ltd., <sup>b</sup>Kyushu Institute of Technology

Nd-Fe-B 系焼結磁石において結晶方位と磁区構造の関係を明らかにすることを目的とし、配向方向に平行な面において電子線後方散乱回折 (EBSD) と BL25SU の軟 X 線磁気円二色性 (MCD) 顕微鏡装置による磁区観察を同位置で行った。その結果、熱消磁状態では多くの領域において多磁区粒子となっており、磁区は隣接する粒子をまたがって連続する場合が多いことがわかった。また、観察面に対し平行な磁場中で明瞭な磁区構造変化を得ることに成功した。

キーワード： 永久磁石、Nd-Fe-B、結晶方位、磁気円二色性

#### 背景と研究目的：

電気自動車 (EV) やハイブリッド自動車 (HEV) の世界的な市場拡大に伴い駆動用モータ市場も成長が見込まれており、これらに使用される Nd-Fe-B 系焼結磁石には高温環境下でも利用できる高耐熱材料が必要とされている。耐熱性を向上させる一つの方法として保磁力の向上があり、Dy や Tb といった重希土類元素を添加することで保磁力を増大させ、高温での不可逆熱減磁を抑制することが行われている。しかしながら重希土類元素は資源リスクの高い原料として認識されており、これらの使用量を削減したうえで高保磁力・高耐熱性を有する磁石材料に対する要望が強い。

Nd-Fe-B 系焼結磁石の保磁力は主相である Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 化合物粒子の配向度に強く依存し、配向度が低下するほど保磁力が増加することが経験的に知られてきた[1]。Dy、Tb の添加による保磁力増加が Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 化合物粒子の Nd を Dy や Tb で置換することで異方性磁場を向上させているのに対し、配向度が変化した場合の保磁力増加は組織に由来する粒界付近の磁区構造変化によるものと予想されている。配向度による保磁力変化のメカニズムを解明できれば、高保磁力化のための組織制御手法の提案につながり、重希土類元素の使用量削減に貢献できる。

著者らは結晶方位と磁区構造の関係を実験的に評価するため、走査電子顕微鏡/電子線後方散乱回折 (SEM/EBSD) により試料表面の結晶方位データを取得し、同位置で磁場印加可能な磁気光学カー効果顕微鏡による磁区観察を行ってきた[2]。研磨した表面層は磁石内部よりも低保磁力であるが、表面層の保磁力と磁石内部の保磁力には相関があることが示唆されており[3]、表面層の磁区構造と組織の関係から磁石内部の保磁力機構を推定できる可能性がある。配向方向に平行な面の磁場中磁区観察により、磁区構造変化と結晶方位の関係を解析することに成功したが、磁気カー効果顕微鏡では一部の観察領域で十分な偏光が得られないために明瞭な磁区コントラストが得られず、解析が困難な問題があった。

本課題の目的は、Nd-Fe-B 系焼結磁石研磨面において観察領域全体における明瞭な磁区コントラストを得るとともに、結晶方位と磁区構造の関係および磁場による磁区構造変化を明らかにすることである。

#### 実験：

磁区構造評価の実験には BL25SU に設置した軟 X 線磁気円二色性 (MCD) 顕微鏡装置を用いた。試料表面にビーム径約 φ100 nm に集光した円偏光軟 X 線を照射し、試料を走査することでマッピングを行った。X 線のエネルギーは Fe L3 吸収端に設定した。X 線吸収率の測定には全電子収量

法を用い、集光ビームの生成には有効径約 310  $\mu\text{m}$ 、最外輪帯幅 40 nm のフレネルゾーンプレート (FZP)を用いた。磁気イメージングは  $60\times 60 \mu\text{m}^2$  の領域に対して 150 nm ステップで行った。試料には保磁力の異なる 2 種類の焼結磁石、① : Nd-Fe-B 焼結磁石および② : Nd-Dy-Fe-B 焼結磁石を用いた。本実験では隣接粒子間の結晶方位の角度差を大きくして磁区構造との関係性を評価しやすくするため、通常の焼結磁石よりも配向度を低下させた専用試料を用いて実験を行った。1 mm 角に加工した①、②磁石をそれぞれ 2 個、計 4 個の試料を 1 つの試料ホルダーに固定した。試料を超高真空チャンバーにセットし、表面の酸化膜を除去するため Ar イオンミリングを行った。その後それぞれの磁石の配向方向に平行な面の研磨面において、事前に配向分布を評価した位置で磁気イメージングを行った。

磁場印加には液体ヘリウム再凝縮冷凍機を備えたボア径  $\phi 149$  mm の超伝導マグネット(オックスフォードインスツルメンツ製)を用いた。このときの磁場印加方向は、試料の配向方向に対しては平行方向、ビーム方向に対しては垂直方向となるようにするため、既設の超伝導マグネットの配置を変更し漏れ磁場を利用することで対応した。印加磁場の大きさは超伝導マグネットの端面から 70 mm 外側にある試料位置において、設定磁場 5 T で約 0.3 T であった。はじめに熱消磁状態の磁気イメージングを各試料それぞれ行った後、磁場中での磁気イメージングを行った。

### 結果および考察：

図 1 に、配向方向を左右方向とした Nd-Fe-B 焼結磁石研磨面の熱消磁状態における磁区像を示す。磁区像は左円偏光および右円偏光による X 線吸収像をそれぞれ取得した後、差分をとることでコントラストを強調させたものである。本測定では観察面に対し面直方向の磁化の成分を検出しており、赤は観察面手前方向、青は観察面奥方向の磁化を表す。主相である  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  化合物粒子のほぼ全てについて明瞭な磁区コントラストを得ることに成功した。同位置で評価した結晶方位データとの対応付けにより、磁区コントラストが強い粒子は磁化容易軸が観察面面直方向に傾いた粒子であることが確認された。また、多くの領域において多磁区粒子となっており、磁区は隣接する粒子をまたがって連続している場合が多いことがわかった。キュリー温度以上からの冷却によって磁区が形成される場合は、粒界の影響をあまり受けずに粒内で多磁区化することで磁氣的安定状態に達すると考えられる。

図 2 に、図 1 と同位置における印加磁場+0.3 T 中の磁区像を示す。磁場方向は試料の配向方向に平行とし、右方向を正とした。観察面に対し平行な磁場中であっても明瞭な磁区像が得られた。熱消磁状態と同様に結晶方位データとの対応付けにより、印加磁場方向の磁区の面積が増加していることがわかった。これらと同様の結果は Nd-Dy-Fe-B 焼結磁石においても得られた。今後磁区構造変化と粒子間方位差の関係や組成による差異を解析することによって、結晶方位が磁壁移動におよぼす影響をより明確化できると考えられる。

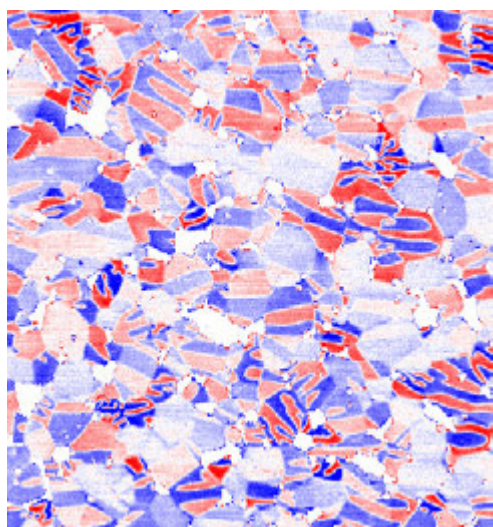


図 1. Nd-Fe-B 焼結磁石研磨面の熱消磁状態における磁区像(左右方向が配向方向)

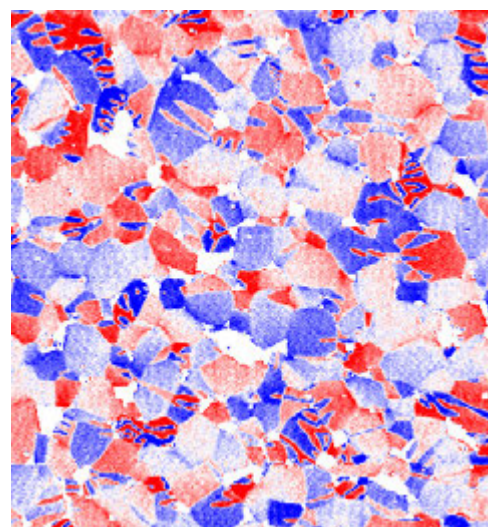


図 2. Nd-Fe-B 焼結磁石研磨面の印加磁場 +0.3 T 中における磁区像

#### 今後の課題：

本課題では観察中に Nd-Fe-B 系焼結磁石が磁気飽和に達するまでの外部磁場を印加することはできなかったため、今後より大きな磁場中での磁区観察が望まれる。さらには磁気飽和状態から逆方向に磁場を印加する減磁過程における磁区構造変化を観察することができれば、Nd-Fe-B 系焼結磁石の保磁力機構に対する理解がより深まることが期待される。

#### 参考文献：

- [1] Y. Matsuura, *et al.*, *J. Magn. Magn. Mater.* **336**, 88 (2013).
- [2] T. Maki, *et al.*, Proceedings of the 24th International Workshop on Rare-Earth and Future Permanent Magnets and their Applications, 637 (2016).
- [3] 楨智仁 他、日本金属学会 2016 年春期講演大会概要集、S1.27 (2016).