

1. 実施課題番号: 2007A1884
2. 実施課題名: XMCD-PEEM による Nd-Fe-B 系焼結磁石の磁区構造観察
3. 実験責任者所属機関および氏名: (株)豊田中央研究所 野崎 洋  
共同実験者: 高田幸生\*<sup>1</sup>、荒木 暢\*<sup>1</sup>、妹尾与志木\*<sup>1</sup>、真鍋 明\*<sup>2</sup>、矢野正雄\*<sup>3</sup>、  
小森 聡\*<sup>3</sup>、井戸田修一\*<sup>3</sup>、今田 真\*<sup>3</sup>、菅 滋正\*<sup>3</sup>  
\*<sup>1</sup> 株式会社豊田中央研究所  
\*<sup>2</sup> トヨタ自動車株式会社  
\*<sup>3</sup> 大阪大学基礎工学研究科物質創成専攻
4. 使用ビームライン: BL25SU
5. 実験結果

## [背景]

現在、ハイブリッド自動車のモータに使用されている Nd-Fe-B 系焼結磁石は、この物質の潜在能力と考えられる異方性磁界から、さらに高い保磁力発現が期待できる。高保磁力実現のための知見を得るには、Nd-Fe-B 系焼結磁石の複雑な磁区構造や磁化反転挙動を観察することが重要である。XMCD-PEEM (X 時磁気円二色性光電子顕微鏡) 測定は磁気イメージングの有用な技術のひとつである。

XMCD-PEEM 測定は、X 線入射によって放出される光電子強度の 2 次元分布を測定することで、元素毎の磁区状態を  $\mu\text{m}$  以下のスケールで観察する手法である。Nd-Fe-B 系焼結磁石に XMCD-PEEM 測定を適用することで、磁石内の磁区構造を元素毎に解析することができ、スピン反転や熱減磁の要因について新たな知見が得られることが期待できる。

現在までに行われた Nd-Fe-B 系焼結磁石の XMCD-PEEM 測定では、熱消磁状態と磁場消磁状態での磁区構造について解析され、熱消磁状態では 1 つの磁区が結晶粒界を介して磁氣的に結合していること、磁場消磁状態では表層の粒子が個々で単磁区化していることが明らかになっている<sup>[1]</sup>。しかしながら、磁石周辺に磁場が存在すると電子の軌道が歪むため、着磁状態での磁区像については報告されていない。

本報告では、着磁状態における磁石の磁区構造の解析を可能とするため、着磁した Nd-Fe-B 系焼結磁石から発生する磁場を制御し、XMCD-PEEM 測定で得られる磁区像について検討した。

## [試料準備]

### (1) 測定試料

本測定で用いた試料は、Nd-Fe-B 系焼結磁石から  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  相の  $c$  軸を一辺に含むよう

な  $3 \times 3 \times 3$  mm の立方体として切り出した。

## (2) 表面加工

観察面は  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  相の  $c$  軸に平行な面(試料の柱面)とした。観察面には機械研磨を施した後、#15000 の研磨紙で仕上げを行った。また、研磨面の表面酸化層を完全に除去するため、Ar 分圧  $3 \times 10^{-8}$  Torr、3 kV で3分間のスパッタエッチングを施した。エッチングレートは約 3.5 nm/min である。

表面酸化層を除去した後に、Pt を Ar 分圧  $1 \times 10^{-7}$  Torr オーダーの条件下で約 3 nm 積層し、酸化保護層とした。

## (3) 消磁条件

加工を施した試料を、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  のキュリー温度(約 310 °C)より高い 350 °C で1時間、真空中で保持し、無磁場中で冷却することで消磁状態とした。

## (4) 着磁条件

パルス励磁型磁気特性測定装置を用い、10 T の磁場を  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  相の  $c$  軸方向に平行に印加することで着磁状態とした。

## (5) 着磁試料の漏洩磁場抑制方法

上記の手順で着磁させた試料から発生する磁場が測定系へ及ぼす影響を抑制するため、 $3 \times 3 \times 3$  mm の立方体1個と  $3 \times 3 \times 9$  mm の直方体2個に切り出した純鉄材を図 1(a)のように組み付け、磁気閉回路を構成した。実際の測定サンプルの写真も図 1(b)に示した。

# [XMCD-PEEM 実験条件]

## (1) 測定条件

XMCD-PEEM 測定は SPring-8 の軟 X 線固体分光ビームライン BL25SU に設置されている PEEMSPECTOR (ELMITEC 社製)で行った。

より明瞭な観察像を得るため、測定前にプレチャンバー内でスパッタエッチングを施し、Pt を除去した。 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  相の  $c$  軸と平行に X 線を入射させ、室温で磁区観察を行った。着磁状態では Fe、Nd について、消磁状態では Fe について測定した。

## (2) XMCD-PEEM 測定

XMCD-PEEM 測定では右偏光 (ID1) および左偏光 (ID2) の X 線を入射させたときの観察像が得られ、 $(\text{ID1}-\text{ID2})/(\text{ID1}+\text{ID2})$  の画像処理を施すことで観察視野内の磁区像を抽出した。磁区像中の、白く映る部分は入射 X 線方向と磁化方向が平行に、黒く映る部分は反平行に配列している磁化領域である。また灰色の部分は入射 X 線方向に対して磁化方向が平行あるいは反平行に配列していない領域であることを示している。

また、右偏光 (ID1) および左偏光 (ID2) の X 線を用いて得られる観察像を足し合わせることで (ID1+ID2) により、磁区コントラストの影響を除いた元素の分布像を得ることができる。白く映る部分が測定元素の多く含まれる領域、黒く映る部分が測定元素の少ない、もしくは存在しない領域を示している。

## [結果と考察]

### (1) 着磁試料からの漏洩磁場の抑制

着磁させた試料では、試料から発生する磁場により、観察面直上での磁場が 70 mT であった。一方、図 1(a)で示すように、試料に純鉄材を組み付け磁気閉回路を構成することによって、観察面直上での磁場を 0.5 mT 程度まで低減できた。

### (2) 着磁した試料の磁区像

着磁した試料の、Fe- $L_{III}$  端エネルギーおよび Nd- $M_{IV}$  端エネルギーでの磁区像をそれぞれ図 2(a)、(b)に示す。X 線の入射方向は  $Nd_2Fe_{14}B$  相の  $c$  軸・着磁方向と平行とした。得られた磁区像はいずれの視野(直径 25 – 100  $\mu m$ )でも白い領域と黒い領域が存在することが判る。試料に純鉄材を組み付けて試料からの発生磁場を抑制することにより、XMCD-PEEM 測定による着磁状態の Nd-Fe-B 系焼結磁石の磁区構造観察が可能となった。

図 2(a)、(b)に示すように、Fe と Nd ではほぼ同様の磁区像になっていることが判る。これは Fe, Nd の有するスピンの試料内で平行に配列していることを示している。また、Fe および Nd のいずれも、局所的に灰色の領域が点在しているが、大部分が白く映っており、着磁方向に平行にスピンの配列している。

上記の灰色部分の領域について、Fe, Nd の組成分布に着目して検討を行った。Fe および Nd の組成分布像をそれぞれ図 3(a)、(b)に示す。Fe 元素の視野内分布では、白い領域の中に黒い領域が点在していることが判る。一方で Nd 元素の視野内分布では、図 3(a)とコントラストが逆転している様子が見られる。これらは試料内で Nd-rich な組成を有した領域が点在していることを示している。

図 2 で示した Fe に関する磁区像に、図 3(b)で示した Nd-rich な領域を重ね合わせた像を図 4 に示す。Nd-rich な領域(青色部分)が、図 2 に示す Fe の磁区像の灰色の領域に対応していることが判る。これは試料内に点在する Nd-rich な領域のスピンの着磁によって配列していないと考えられる。

### (3) 消磁した試料の磁区像

消磁した試料の Fe- $L_{III}$  端エネルギーでの磁区像を図 5 に示す。X 線の入射方向は  $Nd_2Fe_{14}B$  相の  $c$  軸方向と平行とした。800 nm – 5  $\mu m$  幅の  $c$  軸方向に長い磁区が存在している。粒径が 10  $\mu m$  程度であることを考慮すると、1 つの粒子内で反平行の磁区が存在し、多磁区状態になっており、1 つの磁区が複数の粒子にまたがって形成されていることが判る。

$Nd_2Fe_{14}B$  合金は  $c$  軸方向に磁化容易方向を持っており、熱消磁状態では入射 X 線方向に平行もしくは反平行な磁区がほぼ同量に存在することで、全体の磁化が 0 になっていることが判る。

## [結言]

(1) Nd-Fe-B 系焼結磁石に純鉄材を組み付けて磁気的な閉回路を構成し、試料からの発生磁場を抑制することにより、着磁状態の Nd-Fe-B 系焼結磁石の磁区構造観察が可能に

なった。

- (2) 着磁した Nd-Fe-B 系焼結磁石内では、局所的にスピンの平行に配列しない領域も点在するが、大部分が着磁方向に平行に磁化されている。
- (3) 消磁した Nd-Fe-B 系焼結磁石内では、*c* 軸方向に長い磁区が反平行に配列して、全体の磁化が 0 になっており、1 つの磁区が複数の粒子にまたがって形成されている。

#### **[参考文献]**

- [1] 住友金属株式会社: SPring-8 Experiment Report、課題番号 2005B0830, 2006A0229, 2006B0201

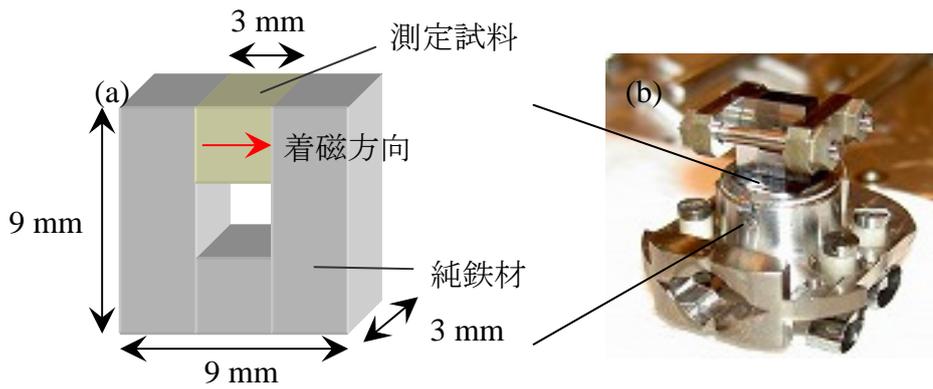
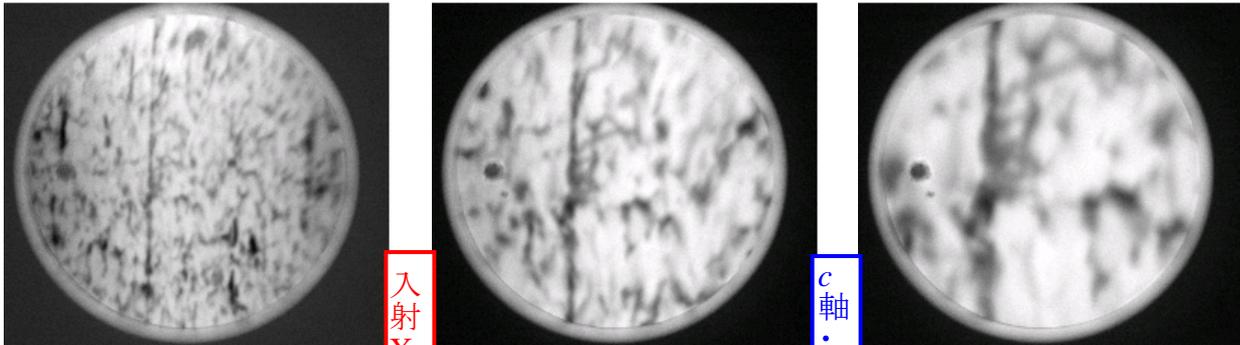
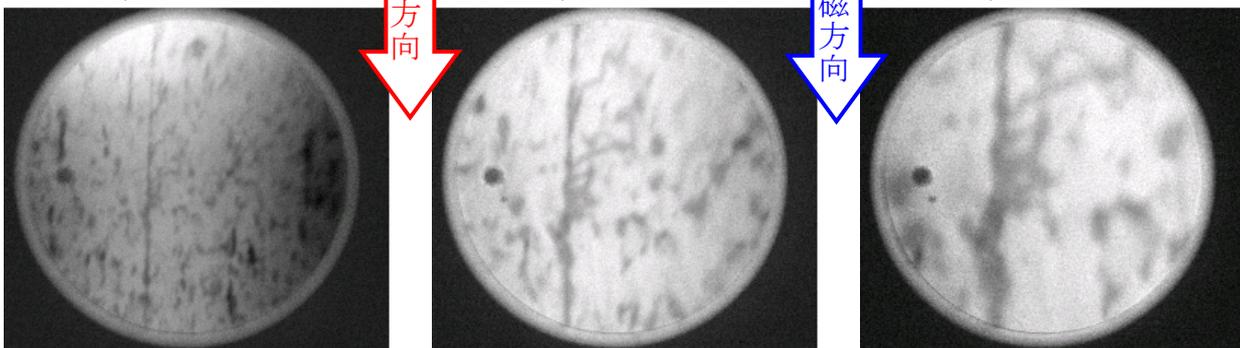


図 1. 着磁材測定試料の(a)概略図と(b)写真

(a) Fe の視野内の磁区像



(b) Nd の視野内の磁区像



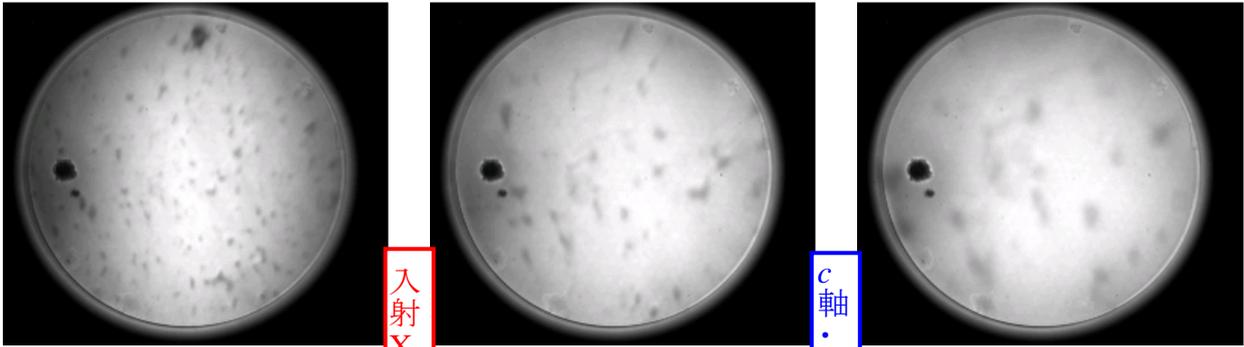
観察視野: 100  $\mu\text{m}\phi$

観察視野: 50  $\mu\text{m}\phi$

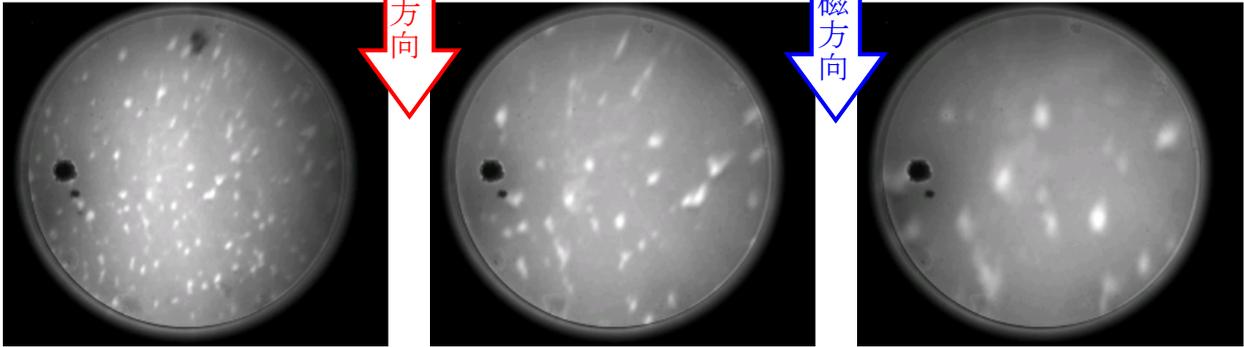
観察視野: 25  $\mu\text{m}\phi$

図 2. 着磁した Nd-Fe-B 系焼結磁石の磁区像  
 ((a) Fe- $L_{III}$  端、(b) Nd- $M_{IV}$  端の X 線を入射させた場合、  
 入射 X 線方向//Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 相の  $c$  軸方向)

(a) Fe の視野内の元素分布



(b) Nd の視野内の元素分布



観察視野: 100  $\mu\text{m}\phi$

観察視野: 50  $\mu\text{m}\phi$

観察視野: 25  $\mu\text{m}\phi$

図 3. 着磁した Nd-Fe-B 系焼結磁石の組成分布像  
(a) Fe- $L_{\text{III}}$  端、(b) Nd- $M_{\text{IV}}$  端の X 線を入射させた場合、  
入射 X 線方向//Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 相の  $c$  軸方向)

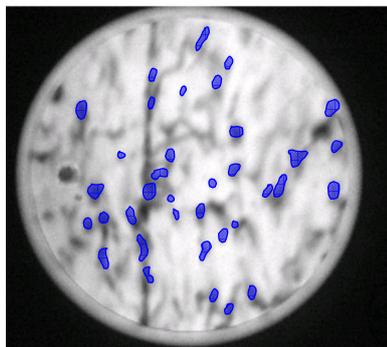


図 4. Fe 元素の磁区像 (白色及び灰色部分) に Nd-rich な領域 (青色部分) を  
重ね合わせた解析結果  
(入射 X 線方向//Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 相の  $c$  軸方向、観察視野 50  $\mu\text{m}\phi$ )

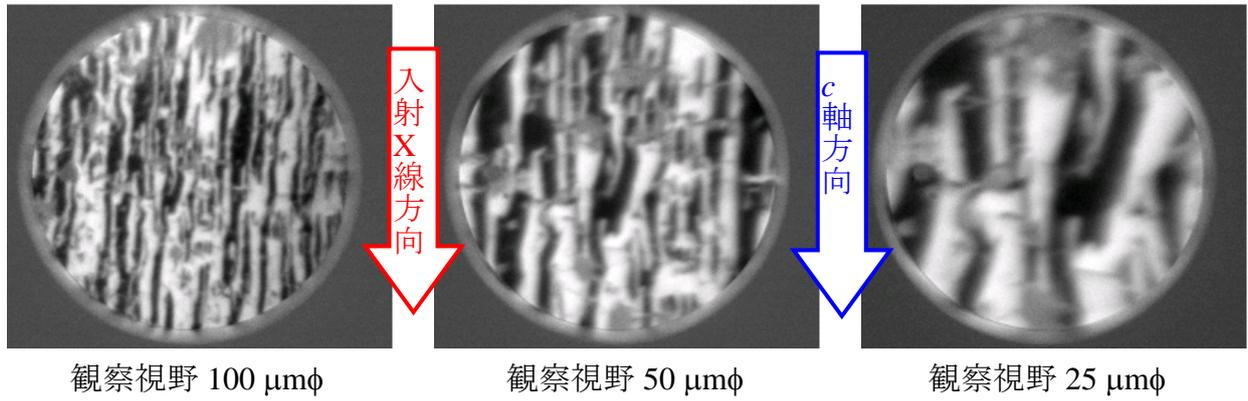


図 5. 消磁した Nd-Fe-B 系焼結磁石の磁区像  
(Fe- $L_{III}$  端の X 線を入射させた場合、入射 X 線方向//Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 相の c 軸方向)