

熱間加工磁石の磁区構造

森田敏之*

Domain Structures of Hot-Deformed Magnet

Toshiyuki Morita

Synopsis

Hot-deformed magnets include a lot of small crystal grains with single magnetic domains. In this paper, the magnetic domain structures were investigated with AFM and MFM. The domain structures show maze-pattern along a plane parallel to the c-axis and stripe-pattern along a plane vertical to the c-axis.

The observed domain width is larger than the calculated one. This shows that domain boundary energy in hot-deformed magnets is larger than that in sintered magnets.

1. 緒言

$\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 金属間化合物を主相とする Nd-Fe-B 系金属磁石は、高い磁力と比較的良好な価格性能比からモーター、アクチュエーターなどに搭載され、家庭用電化製品、情報通信、医療分野で幅広く用いられてきた。また現在のところ、ハイブリッド車、電気自動車用の駆動用モーターや風力発電機の小型化、高性能化に必要な高い特性を持つ唯一の磁石であり、 CO_2 低排出化、環境負荷低減に向けて適用が広まっている^{1), 2)}。

Nd-Fe-B 系金属磁石はその製造方法から焼結磁石および熱間加工磁石に分類される。焼結磁石は粉末粒径数 μm の単結晶粉を磁場中で冷間成形することで配向させ、焼結による高密度化を経て製造される。これに対し熱間加工磁石は、厚さ 30 μm 前後の急冷薄帯を 200 ~ 300 μm 程度に粉碎し、熱間加工を施して高密度化、配向を行い製造される。

現在用いられている Nd-Fe-B 系金属磁石の多くは焼結磁石であり、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 金属間化合物特有の大きな結

晶磁気異方性から室温においては十数 kOe 程度の大きな保磁力を持つ。しかしながら駆動モーターの動作温度である 150 °C 程度では数 kOe まで低下し、使用環境で減磁する問題があった。この対策として Dy を添加し、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ の Nd の一部を Dy で置換して結晶磁気異方性を高め、高温保磁力を向上させることが一般に行われている。このようなことから Dy を含有した高保磁力磁石の使用量が急激に増加しているが、Dy のクラーク数は Nd の 1/10 以下であり、また資源が特定国に偏在しているため、安定に Dy 供給が行われるかが不安視されている²⁾。このため、焼結磁石に対して結晶粒が微細で、Dy を使用せずに高い保磁力が得られる熱間加工磁石が注目を集めている。

2. Nd-Fe-B 系熱間加工磁石の組織と初磁化曲線

一般的な熱間加工磁石の組織写真を Fig. 1 に示す。Fig. 1(a) に示す c 軸配向方向に垂直な面（以下、c 軸⊥面）で

2014年 12月 11日受付

* 大同特殊鋼(株)研究開発本部, 工博(Dr., Eng., Daido Corporate Research & Development Center, Daido Steel Co., Ltd.)

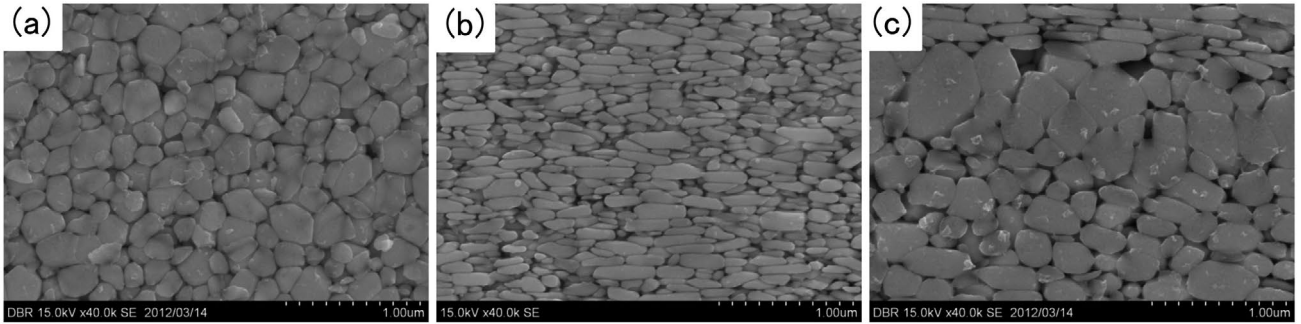


Fig. 1. Microstructures of typical hot-deformed magnet.

は、結晶粒は円形であるが、Fig. 1(b)に示す *c* 軸配向方向に平行な面（以下、*c* 軸//面）では、結晶粒は *c* 軸配向方向に対して扁平な形状をしている。平均結晶粒径は、一般的には幅数百 nm、厚さ数十 nm 程度であり³⁾、単磁区結晶粒径とされる $0.3 \mu\text{m}$ と近い¹⁾。また、一部の粉末境界では、Fig. 1(c)に示すような球状の結晶粒が存在する。

このような微細な組織を反映して、熱間加工磁石の初磁化曲線は Fig. 2 のような挙動を示す³⁾。これは、熱消磁状態の焼結磁石が基本的に多磁区結晶粒よりなり、磁壁の移動で磁化が行われるのに対し、熱間加工磁石は単磁区結晶粒と多磁区結晶粒が混在した状態であり、多磁区結晶粒は微少な磁場で磁化されるが、磁化に逆磁区の発生が必要な単磁区結晶粒は磁化に保磁力と同程度の磁場が必要になるため、多磁区結晶粒の磁化に対応する1段階目と単磁区結晶粒の磁化に対応する2段階目が存在する、ステップを持った初磁化曲線となったと考えられる。

しかしながら、熱消磁状態の熱間加工磁石の単磁区結晶粒分布に関しては不明であり、それが磁化過程に与える影響も明らかになってはいない。本研究では、原子間力顕微鏡 (AFM) と磁気力顕微鏡 (MFM) を用いて、熱消磁状態の熱間加工磁石の磁区構造を調査し、単磁区結晶粒の分布を明らかにすることを目的とした。

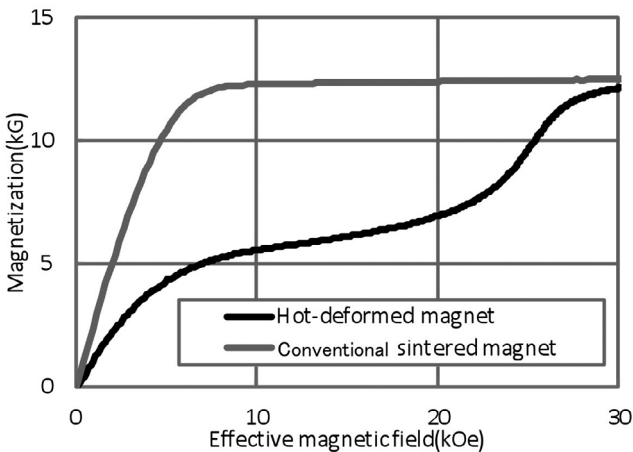


Fig. 2. Initial magnetization curves of typical sintered magnet and hot-deformed magnet.

3. 試験方法

超急冷法により作製した薄帯を粉碎して原料粉とした。粉末成分は Nd_{29.3} Fe₆₁. Co_{3.5} B_{0.90} Ga_{0.50} mass% である。冷間成形により、原料粉末から圧粉成形体を作製し、800℃で熱間加工し異方性 Nd-Fe-B 磁石を作製した。

供試材の *c* 軸//面の組織を Fig. 3 に、室温での初磁化曲線を Fig. 4 に示す。供試材の結晶粒は、Nd₂Fe₁₄B の単磁区結晶粒径である $0.3 \mu\text{m}$ 程度である。前報で用いた初磁化曲線の変極点での磁化と飽和磁化の比で表わされる単磁区結晶粒率³⁾は、供試材では約 60% であった。したがって、本調査で用いた供試材は、単磁区粒と多磁区粒の両方を有する組織である。また、材料の減磁曲線を Fig. 5 に示す。

c 軸⊥面および *c* 軸//面が観察面となるように $6 \text{ mm} \times 10 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$ の試料を切出し、機械研磨、バフ研磨で鏡面仕上げを行った後に観察に供した。MFM 測定は SII ナノテク社製の環境制御走査型プローブ顕微鏡 NanoNavi II / E-sweep を用いて行った。雰囲気は 10^{-4} Pa 程度の真空であり、高保磁力 FePt 探針の先端を S 極として、AFM による形状像および MFM による磁気像を取得した。

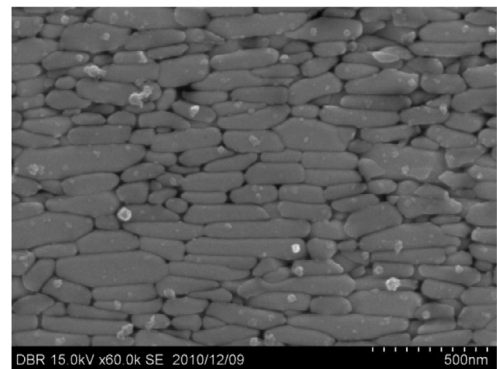


Fig. 3. Microstructures along parallel plane to *c*-axis.

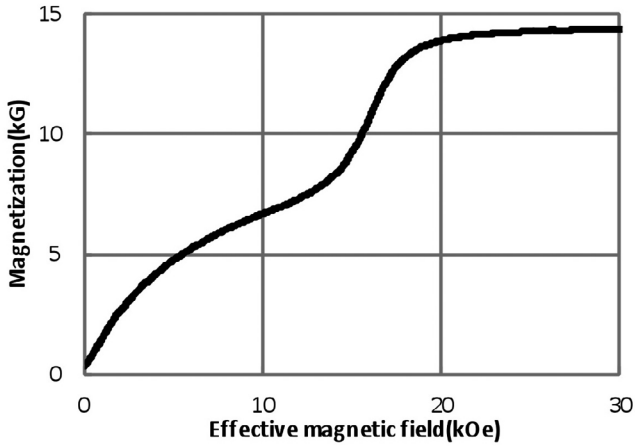


Fig. 4. Initial magnetization curve of hot-deformed magnet.

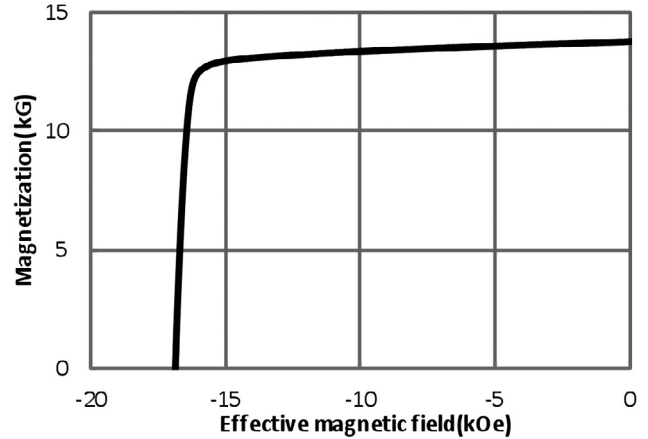


Fig. 5. Demagnetization curve of hot-deformed magnet.

4. 実験結果と考察

4. 1 熱消磁状態の磁区構造

熱消磁状態の c 軸上面の観察結果を Fig. 6 に示す。(a), (b) および (c) はそれぞれ AFM 像, MFM 像および模式図である。MFM 像の明暗は、明部が試料表面と探針間で引力が、暗部では斥力が生じていることを表す。粉末内部ではメイズパターンの磁区構造を示し、その幅は粉末中央では $1 \mu\text{m}$ 程度であるが、粉末境界に近づくほど狭くなる。粉末境界ではメイズパターンの領域 (Fig. 6(b)A), とメイズパターンでない領域 (Fig. 6(b)B)

が存在し、メイズパターンでない領域は引力と斥力の中間的なコントラストを示している。また、割れ領域 (Crack) も中間的なコントラストを示している。

粉末内部の詳細観察結果を Fig. 7 に示す。(a), (b) はそれぞれ AFM 像および MFM 像である。磁区幅が $1 \mu\text{m}$ を超える領域があり、これは結晶粒より大きいため、この領域には多数の単磁区結晶粒が存在すると考えられる。また、磁区境界には結晶粒界に沿った凹凸が存在し、本測定領域の磁区境界が結晶粒界を通過している個所があると推定される。

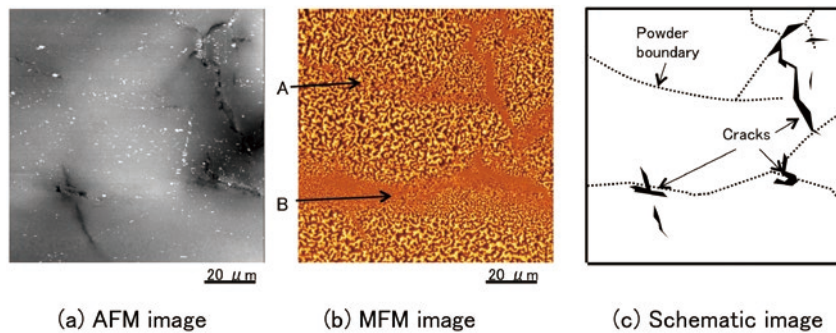


Fig. 6. AFM, MFM and schematic images along vertical plane to c -axis.

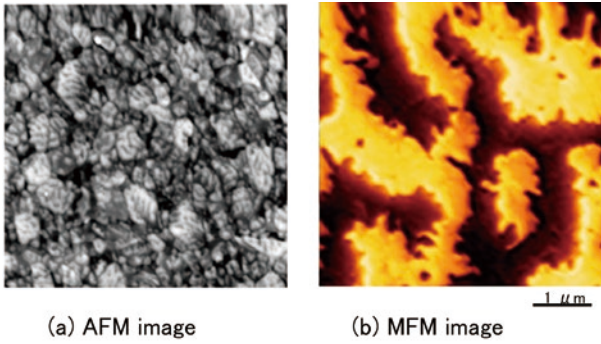


Fig. 7. AFM and MFM images at center of powder for hot-deformed magnet.

粉末境界部の観察結果を Fig. 8 および Fig. 9 に示す。両図共に (a) が AFM 像で (b) が MFM 像である。粉末境界近傍では、メイズパターンが粉末粒内に比べて細かく、磁区幅は結晶粒サイズと同程度である。また、粉末内部と同様に磁区境界には結晶粒界に沿った凹凸が存在する。Fig. 9 に示す領域の磁区のコントラストは Fig. 7, 8 のような明暗二色ではなく、コントラストの異なる様々な中間色が存在する。したがって、本領域は配向していない球状の結晶粒で構成される領域と推定される。また図中の矢印で示すように、結晶粒内に多数の磁区が存在するものもあり、この領域では多磁区の結晶粒が多数存在していると考えられる。

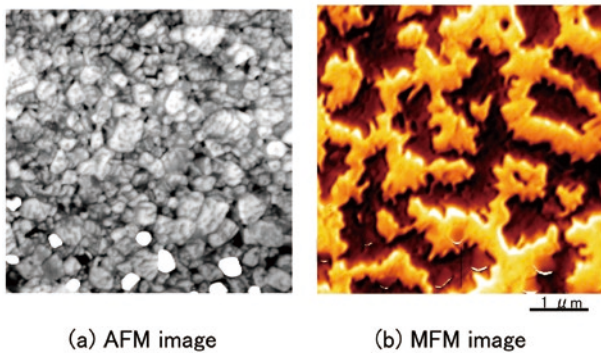


Fig. 8. AFM and MFM images at powder boundary of hot-deformed magnet.

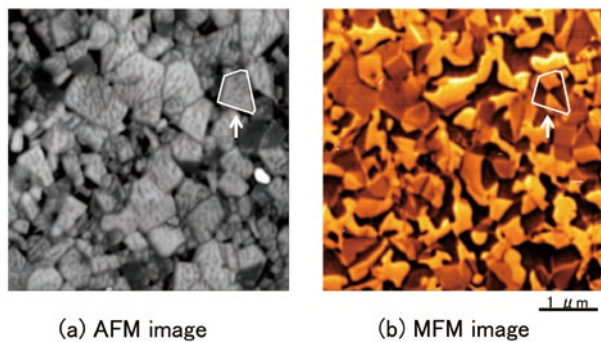


Fig. 9. AFM and MFM images at other powder boundary of hot-deformed magnet.

4. 2 熱消磁状態のc軸平行面の磁区構造

熱消磁状態の *c* 軸 // 面の磁気像を Fig. 10 に示す。配向方向は紙面左右方向である。粉末内部には磁化容易方向に平行な幅数 μm の縞模様が存在する。この縞模様は、配向方向と試料面のずれに起因する漏洩磁界によるものと推定され、磁区構造を示すと考えられる。粉末内部では縞の幅は *c* 軸上面の粉末内部の磁区幅と同程度であり、粉末境界で途切れているように観察された。これは、結晶粒間の磁気的分断が弱いために一つの磁区として存在し、配向していない結晶粒界で分断されたものと考えられ、このような個所は粉末粒レベルが一つの磁気的単位となっていると考えられる。

図中には、矢印で示すような明暗のコントラストを示すドットが確認できる。このドット間隔は、縦方向には約 100 nm、横方向には約 300 nm であり、供試材の結晶粒の大きさとほぼ同じである。したがって、これらのドットは、結晶粒間の漏れ磁場を検出した結果と考えられる。Fig. 11 にモデル図を示す。単磁区の結晶粒では粒内の磁化方向は一方のみであるため、磁化方向が異なる結晶粒同士が接する領域には、同一方向の場合に比べて漏れ磁場が大きいいため MFM 像にドットが現れたと考えられる。

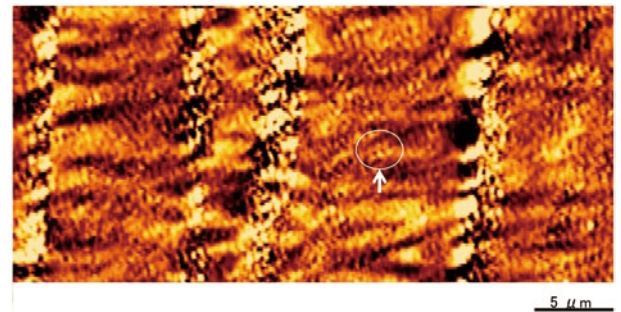


Fig. 10. MFM image at parallel plane to *c*-axis of hot-deformed magnet.

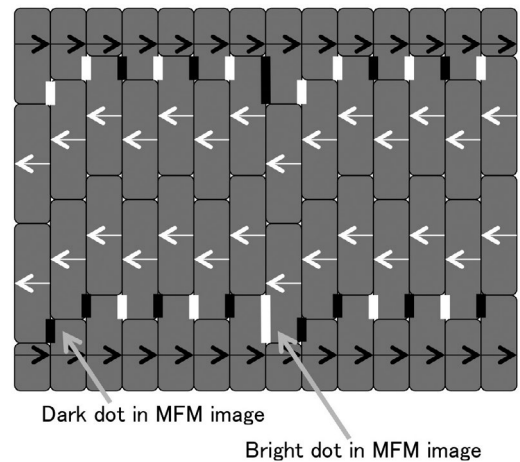


Fig. 11. Schematic illustration of MFM dot pattern along parallel plane to *c*-axis.

一般的に磁区幅 d は、磁壁のエネルギー γ 、磁区長さ l 、飽和磁化 J_s を用いて以下のように表わせる⁴⁾。

$$d = 3.04 \times 10^{-3} \sqrt{\frac{\gamma l}{J_s^2}}$$

この式より、磁区幅は磁壁エネルギーおよび磁区長さの増加に対して増加する。このことから粉末境界近傍でのメイズパターンの緻密化は、磁区長さが粉末の中央で長く、境界部で短いことが原因と考えられる。また、 $\gamma = 2.5 \times 10^3 \text{ J/m}^2$ 、 $J_s = 1.9 \text{ Wb/m}^2$ とし、磁区長さを粉末中央部での粉末厚さの $10 \mu\text{m}$ とすると、 $d = 0.27 \mu\text{m}$ となり実測より小さい値となる。この原因として磁壁が結晶粒単位で蛇行しており、磁壁面積の増加や Fig. 11 のドットような領域での静磁エネルギーの増加により、見掛け上磁壁のエネルギーが上昇している可能性が考えられる。

このことから熱間加工磁石が多数の単磁区結晶粒を含む理由は、結晶粒径が単磁区結晶粒径に近いことだけではなく、粉末が磁区構造の単位であり磁区長さが大きいことと、結晶粒微細化に伴い磁壁が蛇行して見掛け上磁壁エネルギーが上昇することで磁区幅が広がることが影響を与えていると考えられる。

5. 結 言

高保磁力探針を用いて、熱消磁状態の熱間加工磁石の磁区観察を行い、以下の知見を得た。

- (1) 今回の観察では c 軸上面では、粉末粒内はメイズパターンを示し、中央部では磁区幅は結晶粒径より広い。粉末境界近傍では磁区幅が狭くなり、粉末境界はランダムな方位をもつ球状の結晶粒が存在する。
- (2) 今回の観察では c 軸//面では、磁化容易方向に平行な縞状の磁区構造であり、粉末粒を単位としている。
- (3) 熱間加工磁石の磁区は粉末粒を単位としているため磁区の長さが長く、焼結磁石よりも磁区構造が粗い。また、磁壁エネルギーが高いと考えられる。

(文 献)

- 1) 佐川真人: 永久磁石－材料科学と応用－, アグネ技術センター。
- 2) 佐川真人: ネオジム磁石のすべて, アグネ技術センター。
- 3) 森田敏之: 電気製鋼, 82(2011), 7。
- 4) 近角聰信: 強磁性体の物理(下)－磁気特性と応用－, 裳華房。