

永久磁石の保磁力メカニズム

第2回 熱緩和過程と保磁力

広 沢 哲*

本講座の第1回⁽¹⁾では、多結晶材料である永久磁石の保磁力を理解するためには単純化した回転楕円体孤立粒子の一斉回転モデルでは不十分で、磁壁幅程度の領域での磁化反転で生じる磁気的な構造まで理解する必要があるという点を議論した。今回は、磁壁が材料内の磁気的な不均質に補足される場合の議論から始め、前回示した模式図(図2)のように、結晶粒界を挟んで隣の粒子に磁化反転が伝搬していく過程のエネルギー障壁の問題であることを念頭に、測定時間に依存する動的現象である保磁力の性質をとりあげる。最後に、磁性体の磁化が原子磁気モーメントの集団運動の巨視的な表れであることを想起して、第3回に続けたい。なお、本稿では、図および数式の番号は前回からの通し番号とし、文献番号は新たに付し直している。

5. 磁壁捕捉がある場合の保磁力

結晶粒界などの平板上の構造が磁壁を捕捉(ピンニングともいわれるが、近代磁石では粒界や相境界などの面欠陥で止まる場合を想定)する場合を想定し、磁壁を平面状として磁壁の中心位置の関数として磁壁の捕捉と離脱を取り扱うことは多くの読者にもなじみ深い議論と思われる。例えば、簡素化したモデルでは磁壁を厚みのない面と考えてその位置 x の関数 $E_{DW}(x)$ とし、磁界 H を印加してブロッホ磁壁を駆動する際のエネルギー

$$E = E_{DW}(x) + M_s H \cos \phi \quad (11)$$

の障壁がなくなる磁界の大きさ H_c を保磁力と考える(図12)。ここで ϕ は印加磁界と磁化容易方向(すなわちブロッホ磁壁面)との角度である。保磁力は関数 $E_{DW}(x)$ の微分が最大になる点を磁壁が越えるときの磁界の大きさなので、 $E_{DW}(x)$ の微分 $dE_{DW}(x)/dx$ の最大値(絶対値)に比例する。

磁壁をピン止めする平面上の構造周辺での磁気物性値の局所的な変化に対する表現式を仮定してマイクロマグネティックス理論を用いた磁壁離脱の臨界磁界(保磁力)の理論式としては、磁石分野の研究者の間ではクロンミュラー(Kronmüller)の式と呼ばれている式 $H_c = \alpha_K H_A - N_{eff} M_s$ が良く知られている(前回稿の式(9)と同じであるが、以下の議論には磁壁が補足される機構も含むので、第1項の係数は α_N ではなく主相の結晶磁気異方性定数 K_u に依存する係数という意味で、 α_K とした)。この式の第一項は反磁界を考慮しない場合の臨界磁界、その係数 α_K は異方性磁界に対する減少比率、第二項は磁化反転が起こる箇所に働いている局

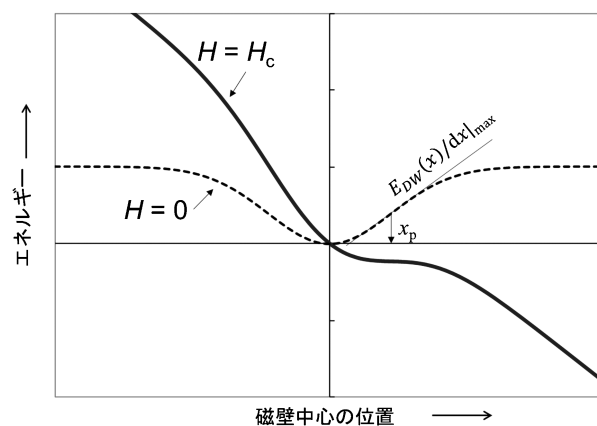


図12 一枚の磁壁を挟んだ仮想的な系に印加磁界(H)を印加した場合の磁壁位置とエネルギーの関係。破線は印加磁界(H)が零の場合、実線はエネルギー障壁が零になる印加磁界(H_c)を印加した場合に対応する。欠陥層の厚み(または幅)は磁壁幅より十分大きいとして描画している。ここで x_p はその時式(11)の x に対する変化率が0となる)の磁壁の位置である。

* 物質・材料研究機構；特別研究員(〒305-0047 つくば市千現 1-2-1)

Mechanisms of Coercivity of Permanent Magnets : 2. Thermal Relaxation and Coercivity; Satoshi Hirosewa*(*Materials Open Platform for Permanent Magnets, National Institute for Materials Science, Tsukuba)

Keywords: energy barrier, nucleation, pinning, thermal fluctuation, activation, magnetic viscosity

2022年9月29日受理[doi:10.2320/materia.62.375]

所的な反磁界を表している。実験家はこれらの係数に材料組織によって決まる因子が隠れていると考えて、上式の両辺を M_s で除して、 H_c/M_s を H_A/M_s に対してプロットして得られる直線の傾きと切片から係数 α_K と N_{eff} を実験的に決定して組織因子と関連付ける手法を考え出したが、以下に述べるマイクロマグネティックスモデルでは、これらは温度に依存する因子をその中に含むので、そのようなプロットでは厳密には組織に依存する部分だけを分離することはできない。

第一項の H_A は異方性磁界、その係数 α_K は局所的な磁気物性値の変化の仕方(すなわち局所的な構造)によって決まる因子で、磁気物性値の地形図を適切に仮定すると解析的な式で表現できる。例えば、佐久間らは欠陥層で階段状に交換スティフネス係数 A と磁気異方性定数が変化する場合について保磁力と欠陥層の厚みの関係について論じ⁽²⁾、クロンミュラーらは交換スティフネス係数が主相と同じで結晶磁気異方性のみが関数

$$K_u(z) = K_u - \frac{\Delta K}{\cosh^2(z/r_0)} \quad (12)$$

に従ってなめらかに変化する層状の不均質帯が磁壁を捕捉する場合の係数 α_K^{pin} 、および、その不均質帯自身が逆磁区核生成サイトとなる場合の係数 α_K^{nc} の値について論じている⁽³⁾。大雑把に述べれば、それらの係数は主相および不均質帯の磁性とその地形図パラメータ(例えば式(12)の K_u 、 ΔK と r_0)の関数であり、磁壁捕捉の効果は欠陥層が磁壁幅より薄い場合は、磁壁補足過程に対応する係数 α_K^{pin} は欠陥の幅に比例して増加するが、磁壁幅程度の領域では欠陥幅の逆数に従って減少する。したがってこのモデルでは、 α_K^{pin} は欠陥層がある厚みのときに最大になる。式(12)のモデルの場合、その最大値は核発生過程に対応する係数 α_K^{nc} よりも小さい。これは佐久間らのモデルの場合も同様である。したがって、欠陥層で逆磁区核が発生すればその表面境界である磁壁はその欠陥層に捕捉されることなく、磁化反転領域が拡大する。すなわち、磁気異方性の小さな欠陥層を仮定した上述の1次元モデルでは、逆磁区核の生成が保磁力の値を決定づける。

マイクロマグネティックスを用いることにより、係数 α_K^{pin} や α_K^{nc} の値を欠陥層の厚みと磁気物性値に関連付けて保磁力が異方性磁界に比較して非常に小さくなる要因を説明することができるが、連続体の描像を用いている限り、欠陥層の磁気物性値をその構造に基づいて直接導き出すことはできない。それを行うためには、材料の結晶構造や原子尺度での欠陥の構造から材料をモデル化する手法が必要となる。そのような原子描像の考え方については本講座の次の回のテーマとする。

一方、逆磁区が容易に生成する欠陥が他の場所にあるような場合には、磁壁捕捉能力が高い欠陥がその磁石の保磁力を決めることになる。保磁力が核発生支配型か磁壁捕捉(ピンニング)支配型かの実験的な判別方法として、保磁力の磁界印加角度依存性がしばしば取り上げられる。前回稿で孤立した単磁区粒子の磁化が一斉回転する場合は磁界印加角度が増加

すれば保磁力が急激に低下することを見たが、磁壁捕捉支配型では

$$H_c(\phi) = \frac{\partial E_{\text{DW}}(x_p)}{\partial x} (M \cos \phi)^{-1} \quad (13)$$

に従って保磁力が磁界印加角 ϕ の方向余弦に逆比例して増加する。この方位依存性はコンドルスキー(Kondorsky)型と呼ばれている。前回、図6に示した実際のNd-Fe-B異方性磁石の保磁力の角度依存性はStoner-WohlfarthとKondorskyの両曲線のいずれとも合致せず、両者の中間に位置している。その原因として、粒子間の磁氣的結合による局所的な有効磁界の方位および大きさの非一様性が考えられることを前回議論した。

これまでの議論から推察されるように、実際の磁石の、例えばNd-Fe-B磁石の結晶粒界の構造欠陥や2-17型Sm-Co磁石のセル壁における保磁力の温度依存性や角度依存性を議論するためには、ナノメートル領域の組織と磁気物性値の解析と計測を欠かすことができない。Nd-Fe-B磁石については、最近までの研究結果をNIMSのLiらがオープンアクセス文献⁽⁴⁾⁽⁵⁾にまとめているので、読者はそれらを参照頂きたい。本講座に関連が深いところでは、保磁力の測定における磁界の方位に対する依存性と粒界相の物性値との関係⁽⁶⁾や、保磁力の温度依存性と粒界相の磁性との関係⁽⁷⁾などが、組織情報に基づいたマイクロマグネティックス・シミュレーションによって議論されている。

6. 磁壁の離脱における逆磁区核の生成

現実の磁石材料の組織サイズが磁壁幅などと比較して数桁も大きいことを考えると、結晶粒界のような面状の構造欠陥に捕捉された磁壁が離脱するプロセスを単純な一次元モデルで記述することでは不十分である。一次元モデルは磁壁がリジッドな平面状の形状のまま一斉に離脱する過程に相当しているが、実際には、部分的に離脱した領域(すなわち逆磁区)が生成し、その境界が構造欠陥に沿って移動することによって離脱領域が拡大する方が、小さな磁界で済むはずである。したがって、磁壁の離脱においても、初期の過程は図13に模式的に示すように、局所的な離脱部の核生成(nucleation)に続いて、その領域の拡大による磁壁の離脱が進行するものと考えられる。この離脱過程は慣習に従ってデピンニング(depining)と呼ばれている。少し補足すると、図13はハード磁性相の表面部分に磁壁幅よりも厚い低磁気異方性の欠陥層(結晶粒界相などを想定)が存在し、そこで磁化反転が既に起こった後、主相の表面部にトラップされた磁壁が主相内部側に侵入するという、Givordらが提唱したプロセス⁽⁸⁾を想定した模式図⁽⁹⁾である。主相表面に磁気物性値が主相の磁気物性値と強い相関を持つ磁壁幅程度の厚みの磁気的変質層があるという模式図になっているが、この磁気的変質層は必ずしも存在すると仮定する必要はない。

この場合、主相表面に生成した反転核の表面エネルギー(磁壁エネルギー)の増加分と磁化反転に伴う静磁気エネルギー

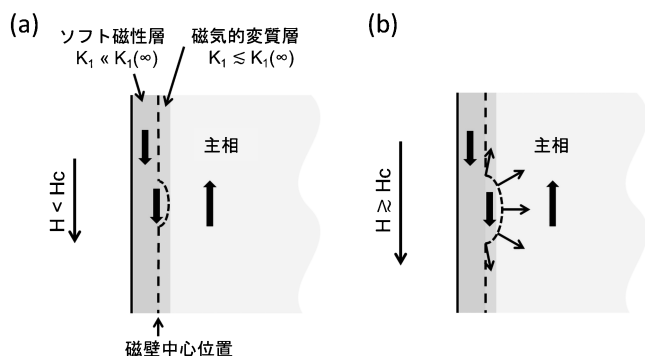


図13 大きな結晶粒の表面に形成された磁気的にソフトな磁性層(欠陥層)で形成された逆磁区が磁気的にハードな主相に侵入する過程の概念図(Used under the terms of the Creative Commons Attribution 3.0 license. 文獻(9)の図を日本語にしたものである.)

ーの低下とのバランスで臨界磁界を定義することができる。磁壁エネルギーの増加分は、軟磁性欠陥部での磁壁エネルギーと硬磁性の主相での磁壁エネルギーとの差と考えられるが、その具体的な見積りには、磁壁の内部構造を原子配列にまで立ち入って理解する必要がある。

そのためには、原子の磁気モーメントが実際の結晶構造や欠陥構造の中で相互に強く相互作用しながら集団運動している様子を我々が磁化測定をしている時間のスケールで見た場合の挙動として表現する必要がある。これには連続体のマイクロマグネティクスとはかなり異なる手法を要するが、これまで考慮していなかったような種々の課題に注意を向けることもできるようになる。例えば、有限温度では原子磁気モーメントが熱揺動によって向きを時々刻々ランダムに変えていると考えた場合、磁化が磁化容易方向を向いた場合よりも磁化困難方向に向いた場合の方が、原子磁気モーメントがその方向にある確率が小さいため、磁化の大きさの期待値が方位に依存する。実際、例えば $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ の磁化の大きさには方位依存性があり、磁化容易方向を向いているときの飽和磁化は困難方向のそれよりも室温で約3~4%大きい⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾。さ

らに、局所的な領域の磁化の熱平均値が周囲との強磁性的交換結合の強さに依存していることを考えると、古典的なマイクロマグネティクス理論では考慮されていない磁化の伸び縮みを考慮する必要があるかもしれない。したがって、磁気的な相関長の範囲で磁化の平均の方向が少しずつ変化している磁壁のような構造が出現する際の、エネルギー障壁の地形図を実際に計算するにはどうすればよいかが問題となる。これらは次回のテーマとし、ここではもっとマクロな観点から、過渡現象としての保磁力の性質について整理し、エネルギー障壁についてどのように理解してきたかを見ておきたい。

7. 過渡現象としての保磁力の性質

(1) 熱活性化過程

ストーナー-ウォールファースのマイクロマグネティクス理論では印加磁界下での磁化反転過程の最低エネルギーの経路を計算し、エネルギー障壁がなくなる印加磁化の大きさが保磁力を与える。一方、有限の温度では障壁の高さが有限であっても熱のエネルギーをもらってその障壁を超えることができる。この問題の基本的な議論はブラウン(W. F. Brown, Jr.)によって、すでに1960-1970年代になされている⁽¹²⁾⁽¹³⁾ので、それらを参考にしつつ、ここでは次回への準備として一部を説明するにとどめる。

正方向を向いた磁化に逆磁界を印加して生じた準安定状態が、どのように障壁を乗り越えて磁化反転に至るのか、その過程を確率的過程として理解する必要がある。一斉回転モデルや平面磁壁がピニング面から一様に離れる1次元モデルのような単純なモデルの場合なら図14のような概念図を示すことができ、このエネルギー障壁(E_B)を熱エネルギーによって乗り越えるとして議論することができる。ただし、有限温度ではエントロピーの効果も含む自由エネルギーとする必要がある。次に、エネルギー障壁と緩和時間の関係について少し整理してみよう。

準安定状態にある系がエネルギー障壁を越えてより安定な

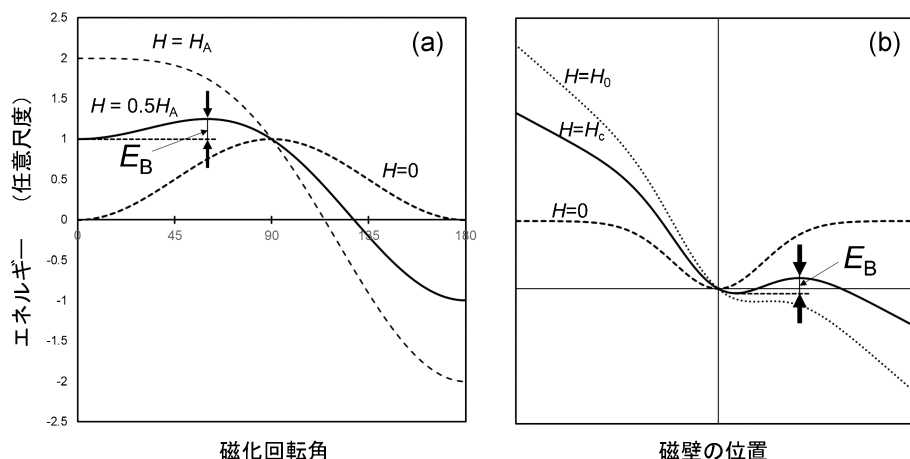


図14 一斉回転モデル($\phi=0$) (a) と磁壁離脱モデル(b)の保磁力付近の磁化反転に対するエネルギーとエネルギー障壁(E_B)の概念説明図。

状態に遷移する速さ r は、系の状態がエネルギー障壁の山の頂上になる頻度に等しいとすると、エネルギー障壁の高さを F_B として

$$r = f_0 \exp\left(-\frac{F_B}{k_B T}\right) \quad (14)$$

と表わされる。 f_0 は 1 秒間の試行回数であり、 $10^{10} \sim 10^{12}$ である。準安定状態が安定状態に向けてエネルギー障壁 F_B を越えて緩和する時の緩和時間(の平均値)は一般に $\tau_0 = f_0^{-1}$ を $10^{-10} \sim 10^{-12}$ 秒オーダーの因子(ミクロな試行時間)として

$$\tau = \tau_0 \exp\left(\frac{F_B}{k_B T}\right) \quad (15)$$

で与えられる。緩和時間が 1 秒となる磁界の強さを、通常測定される保磁力とみなせる。 τ_0 をどのように設定するかで実際の値が多少変化するが、 10^{-11} 秒とすると、

$$F_B = (\ln 10^{-11}) k_B T = 25.3 k_B T \quad (16)$$

となる時の印加磁界 H を保磁力と見なせる。室温 (300 K) での F_B の値は 1.05×10^{-19} J (6.54 eV) となる。このエネルギーを担っているのはどの程度のかの数の原子なのか、あるいは、どの程度の大きさにまたがる範囲が成長を始めた逆磁区核と見なせるのだろうかということについて、次に考えてみよう。

磁化反転の素過程で一つの局所領域(磁化反転核)の磁化が回転して磁化反転が開始するという前回の図 9 の描像に基づくと、磁化が反転した局所領域の体積 V_a と、その体積分の磁化減少 ΔM との関係は、

$$V_a \Delta M = M_s \quad (17)$$

であり (M_s は単位体積当たりの自発磁化の大きさ)、それによるエネルギーの利得は $\Delta M \cdot H$ である。したがって、 ΔM と印加磁界 H との関係が分かれば磁化反転がどの程度のミクロな領域で始まるのかが分かる。前回議論した図 9 や図 11 の、磁化反転核の大きさは磁壁幅と同じ桁のサイズ領域という描像が正しいとすれば、 ΔM は保磁力の近傍ではあまり大きく印加磁界に依存せず、準安定状態のエネルギーが逆方向の印加磁界の増加と共にどんどん高くなる(不安定になる)(図 15(a)) ことによって、エネルギー障壁が低くなっていく(図 15(b))。この障壁がなくなる臨界磁界が熱活性化過程を考えない場合の保磁力 H_0 になる。

ここまでの議論は概念的なものであるが、マイクロマグネティックスを用いて磁化反転核の生成過程の最もエネルギーが低い磁気構造を数値的に算出して終状態に至るまでのエネルギー地形図を知ることができる。研究例としてバンス (Bance) らの直径約 50 nm の表面に軟磁性層を配した多面体 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 孤立粒子に対する計算の例⁽¹⁴⁾があり、エネルギー障壁の高さが $25 k_B T$ になる印加磁界を保磁力とみなした場合、その値は室温でエネルギー障壁がなくなる印加磁界(熱活性化過程がない時の保磁力)よりもおよそ 15% 小さいことが示されている。結晶格子点に配置した原子磁気モーメント集団の熱揺らぎも考慮した議論は次回の本講座で紹介する。

(2) 磁化の時間依存性

ここで議論している磁化反転過程は熱活性化過程による非

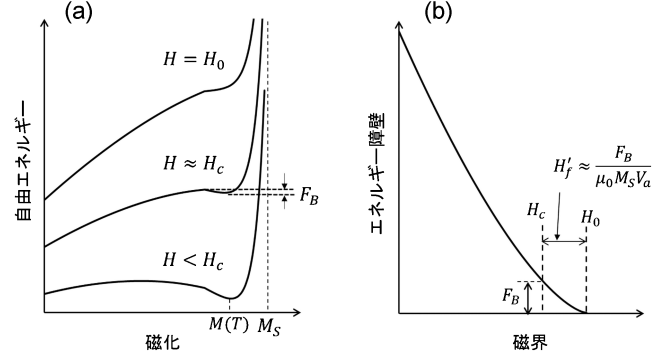


図15 緩和過程がある場合のエネルギー障壁と磁化(a), および、これと逆向きの印加磁界(b)との関係を示す概念図。一定の緩和時間(本稿では 1 秒)で緩和する障壁の高さを F_B , その時の磁場を保磁力 H_c , エネルギー障壁がなくなる磁界の大きさを H_0 , H_0 と H_c との差を H'_f と表記した(この記号のプライム記号は伝統による)。図(a)は系の体積よりも非常に小さく整合回転ができる程度の領域の磁化回転によって保磁力が支配される状況を想定したもので、一斉回転や 1 次元の磁壁補足の場合(図14)とは異なることを強調しているが、曲線の形状は概念的である。図中の M_s は全ての原子の磁気モーメントが完全に平行配列した状態に対応し、 $M(T)$ が温度 T での磁化に対応する。

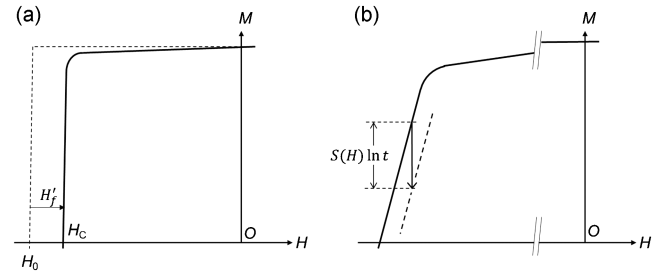


図16 有限の緩和時間(例えば 1 秒)の減磁曲線(実線)と緩和時間が零の場合に対応する仮想的な減磁曲線(点線)および熱揺動磁界の概念図(a), および、測定時間が長い(例えば 1000 秒)の減磁曲線(破線)に向かう磁化の緩和の概念図(b)。

平衡状態から平衡状態に向けての遷移の速さ(式(14))の問題であり、図16に模式的に示すように、磁化変化 ΔM は測定時間に依存する。これは磁力測定の際の測定機器の時定数や試料に流れる渦電流効果による磁界侵入の遅れなどで発生する見かけ上の時間依存性ではなく、準安定状態の緩和に関係する本質的なものである。この時間依存性は、磁気粘性、あるいは、磁気余効と呼ばれており、これを測定して V_a の大きさを推定することが古くから行われている。ネオジウム磁石については Givord らの研究⁽¹⁵⁾などが知られている。以下に磁化の時間依存性の表現式について少し整理する。実験事実として、印加磁界を段階的に変化させた後の磁化の時間応答が時間の対数にほぼ比例して変化することが知られており、磁化の平均の時間依存性は、

$$M(H, t) = M(H, t_0) - S \ln(t/t_0) \quad (18)$$

の形の式で与えられる。

一方、ひとつのスピンの磁化が準安定状態から緩和する過程を考えると、緩和の速さが式(14)で与えられ、緩和時間 τ を持つ緩和過程に対する一般的な形の式

$$M(H, t) = M_s - 2M_s \exp(-t/\tau) \quad (19)$$

に従って磁化が時間的に変化する(単位体積当たりの飽和磁化を M_s とする)。この関数は緩和時間の近傍では時間の対数に対してほぼ直線となるが、 τ のエネルギーバリア依存性(式(15))を入れて、個々のスピン間に強い相互作用がないとして全体の平均が系の磁化の変化を与えると考える。

エネルギーバリアの分布関数 $f(E)$ を考えると式(19)の全エネルギー範囲に亘る平均値は

$$M(H, t) = M_s - 2M_s \int_0^\infty f(E) \exp\left[-\left(-t/\tau_0\right) \exp\left(-\frac{E}{k_B T}\right)\right] dE \quad (20)$$

と表される。分布関数 $f(E)$ が緩和時間 τ に係る緩和過程のエネルギーの近傍ではほぼ一定の値 $f(F_B)$ とすると、その幅にわたる積分操作によって $\exp(-t/\tau_0)$ 項が現れ、係数 S は

$$S = 2M_s k_B T f(F_B) \quad (21)$$

であることが導かれる⁽¹⁶⁾⁽¹⁷⁾。 S は磁化 M と同じ次元を持つ量で、磁気粘性係数または磁気余効定数と呼ばれている。 F_B は、永久磁石の保磁力の測定において、典型的には $25.3k_B T$ である。

磁気予効の測定では磁界を少し(ΔH)だけ変化させた時の緩和時間 τ の間に見られる磁化の変化 ΔM を測定し、測定結果は両者の比、すなわち帯磁率、

$$\chi_{\text{irr}} = \frac{dM}{dH} \quad (22)$$

として整理される。 χ_{irr} は緩和現象による不可逆的な変化なので、不可逆帯磁率と呼ぶ。

一方、この緩和に関与するスピンの割合は F_B 近傍の $f(E)$ dE なので磁化変化は、

$$\Delta M = -2M_s f(E) dE \quad (23)$$

と表現することができ($E = F_B$)、磁界の変化 ΔH と関連付けると、

$$\Delta M = -2M_s f(F_B) \frac{dE}{dH} \Delta H = \chi_{\text{irr}} \Delta H \quad (24)$$

と表すことができる。式(24)を使って不可逆磁化率とエネルギーバリアの分布関数とを関連付けると、

$$\chi_{\text{irr}} = -2M_s f(F_B) \frac{dE}{dH} \quad (25)$$

であり $dE/dH = -\mu_0 V_a M_s$ なので、磁気粘性係数(磁気余効定数)は

$$S = \frac{k_B T \chi_{\text{irr}}}{\mu_0 M_s V_a} = S_v \chi_{\text{irr}} \quad (26)$$

と表すことができる。ここで、 S_v は

$$S_v = \frac{k_B T}{\mu_0 M_s V_a} \quad (27)$$

であり、磁界の次元を持つ。したがって、現象論的に熱活性化プロセスを磁化に働く有効磁界として表現できることが示唆され、 S_v は熱揺動磁界 H_f と呼ばれる項と関連付けられる。

熱揺動の保磁力への影響をその効果を表す磁界成分 H_f として表現すると、保磁力の表現式(9)が、

$$H_c(T) = \alpha_K H_A(T) - N_{\text{eff}} M_s(T) - H_f'(T) \quad (28)$$

となる。右辺第3項の $H_f'(T)$ が温度 T における熱揺動効果による保磁力の低下を表す。ヒステリシスは緩和現象なので、 H_f' は磁界の掃引速度に依存するが、本稿では立ち入らない。上述の磁気粘性の説明は磁界を段階的に変化させた後、一定磁界の下で緩和する場合に対応している。 H_f' と S_v の関係は、緩和時間1秒の場合、

$$H_f' = 25.3 S_v \quad (29)$$

である。 S_v を H_f と表記して熱揺動磁界とする伝統があるので、本稿では我々が測定する保磁力への影響をこれと区別するため、プライム記号を付けて H_f' と表記している($H_f' = 25.3 H_f$)。なお、 H_f は、式(18)の磁化の時間依存性を磁界の時間変化に帰着して、 $H(t) = \text{定数} + H_f \ln t$ と表現する現象論(減磁方向を正としている)において、時間依存項の磁界の次元を持つ係数である。

要するに、磁化 M_s 、磁気予効定数 S 、および、 χ_{irr} を測定すれば、活性化体積 V_a が分かる。永久磁石材料の測定では保磁力近傍の磁界に対して S_v がほぼ一定の範囲があり、その値を用いて V_a が決定される。適正な熱処理がされた焼結 Nd-Fe-B 磁石では室温付近で S_v の測定結果はおおよそ 7 kA/m であり⁽¹⁸⁾⁽¹⁹⁾、 $\mu_0 M_s = 1.61 \text{ T}$ とすると、 $V_a \approx 3.7 \times 10^{-25} \text{ m}^3$ である。球換算すると半径が約 4.5 nm となる。これは、磁化反転の開始時点で磁壁幅(Nd₂Fe₁₄Bでは室温で約 4.2 nm)程度の領域の磁化が反転し始めるという、前回稿の図9および11に示した直感的な描像を支持している。

$H_f' = 25.3 S_v$ の値は約 180 kA/m であり、Nd-Fe-B 三元系の焼結磁石の典型的な保磁力を仮に 800 kA/m とすると、熱緩和の無い保磁力 H_0 の値は 980 kA/m となり、その約 18% が H_f' として失われていることになる。仮に緩和時間を 0.01 秒と短くした測定(パルス磁界による測定など)の場合は $H_f' = 20.7 S_v \approx 150 \text{ kA/m}$ で保磁力の測定値はわずかに(約 30 kA/m)増加する。これらの数値は組成が同じでも、もちろん材料組織によって異なり、組成が同じで高保磁力の材料では V_a が大きく、低保磁力の材料では V_a が小さく見積もられる。すなわち、逆磁区核の生成あるいは磁壁の離脱が小さな活性化体積で起こる材料は保磁力が小さい。活性化体積程度のサイズの領域の磁気物性値がそれを許す程度に劣化していると考えられることもできるが、上記の議論ではその根拠が明白ではなく、もっと徹底的な議論が必要である。

(3) 多粒子系のマクロな磁化反転過程

焼結 Nd-Fe-B 磁石の結晶粒径は小さなものでも約 $1 \mu\text{m}$ 、通常は数 μm 程度であり、また、熱間塑性加工法により製造される異方性 Nd-Fe-B 磁石ではこれよりも約一桁小さく、数百 nm である。本稿でここまで見てきた磁化反転過程は単一の過程をミクロなスケールで見ただけで、膨大な数の結晶粒からなる実際の磁石の保磁力を理解するには不十分である。とはいえ、多粒子磁石の磁化反転カスケードが開始

する臨界現象をミクロなスケールで記述しておけば、磁石の保磁力の本質的な部分を理解したことになり、材料の改善につなげていくことも可能であると考えられる。隣接粒子との相互作用がある場合、一つの粒子で逆磁区が生成拡大して粒子内全域に磁化反転が進行するとその隣接粒子に働く磁界がそれに応じて変化する結果となり、変化後の有効磁界が隣接粒子の逆磁区生成の臨界磁界よりも大きければ、磁化反転過程が決定論的に進行し始める。これが磁化反転カスケードである。

隣接粒子の影響については、前回、保磁力の粒径依存性の議論の中で、磁気双極子相互作用による静磁界の影響を考察した。焼結磁石のように主相粒子が密に詰まった材料ではこの双極子相互作用を始めとする隣接粒子間の磁気結合が存在する。その結果、一般に減磁曲線の保磁力近傍の角型性が良く、マクロな磁化が急激に反転するようにふるまう。これに対して、結晶粒界に非強磁性を析出させた材料も提案され、主相比率が減少する分だけ残留磁束密度が低下するが保磁力が高くなっていることを前回紹介した。Nd-Fe-B系焼結磁石の粒界相を非強磁性相にした材料について、粒子間の強磁性的磁気結合を切断すると保磁力が増加するが減磁曲線の保磁力近傍の傾きが大きくなり角型性が低くなる傾向にあることが、磁化反転過程のカー(Kerr)顕微鏡による磁区観察およびマイクロマグネティックシミュレーションによる解析により理解できることが報告されている⁽²⁰⁾。

8. 第2回まとめ

今回は磁化の緩和過程という観点で磁石の保磁力について考察した。熱活性化過程による緩和がある場合、すなわち通常の使用環境では保磁力の表式には熱揺動の効果を表す磁界 H_f が含まれる(式(28))。緩和過程は磁石の結晶粒と比較するとはるかに小さな数nm程度の領域の磁化が熱活性化過程によって反転することによって開始する。

次の課題は、このような、主相の結晶格子と同程度の小さな領域における磁化反転核の生成と実際の材料の構造とがどのように結びつけられるかという、保磁力理論の根幹的な課題である。これは、最近の原子解像度の組織解析の技術や、結晶界面の原子構造の大規模第一原理計算の情報を駆使して、材料の保磁力を解析したり、特性改善の具体的な方法を提案したりするために、理解しておくことが必要な点である。次回は、準安定状態からエネルギー障壁を超えるときに、磁壁幅程度の領域の原子磁気モーメントが反転するとい

う過程について、原子解像度の視点で見ればどのような議論が可能なのか、最近の進歩を踏まえて述べる。

文 献

- (1) 広沢 哲：まてりあ, **62**(2023), 307-313.
- (2) A. Sakuma, S. Tanigawa and M. Tokunaga: J. Magn. Magn. Mater., **84**(1990), 52-58.
- (3) H. Kronmüller, K.-D. Durst and M. Sagawa: J. Magn. Magn. Mater., **74**(1988), 291-302.
- (4) J. Li, H. Sepehri-Amin, T. T. Sasaki, T. Ohkubo and K. Hono: Sci. Tech. Adv. Mater., **22**(2021), 386-403.
- (5) J. Li, H. Sepehri-Amin, 佐々木泰介, 大久保忠勝, 宝野和博：粉体および粉末冶金, **69**(2022), S38-S51.
- (6) J. Li, Xin Tang, H. Sepehri-Amin, T. T. Sasaki, T. Ohkubo and K. Hono: Acta Mater., **187**(2020), 66-72.
- (7) J. Li, Xin Tang, H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo, K. Hioki, A. Hattori and K. Hono: Acta Mater., **199**(2020), 288-296.
- (8) D. Givord, M. Rossignol and V. M.T.S. Barthem: J. Magn. Magn. Mater., **258-259**(2003), 1-5.
- (9) S. Hirosawa, M. Nishino and S. Miyashita: Adv. Nat. Sci. Nanotechnol., **8**(2017), 013002 (1-12).
- (10) D. Givord, H. S. Li and R. Perrier de la Bâthie: Solid State Commun., **51**(1984), 857-860.
- (11) H. Sato, Y. Kubo, T. Yoshioka, H. Tsuchiura, Y. Mizuno, K. Koike, K. Takahashi and H. Kato: AIP Adv., **11**(2021), 025224 (1-4).
- (12) W. F. Brown, Jr.: Phys. Rev., **130**(1963), 1677-1686.
- (13) W. F. Brown, Jr.: IEEE Trans. Magn., MAG-15 (1979), 1196-1208.
- (14) S. Bance, J. Fischbacher, A. Kovacs, H. Oezelt, F. Reichel and T. Schrefl: JOM, **67**(2015), 1350-1356.
- (15) D. Givord, Q. Lu, M. F. Rossignol, P. Tenaud and T. Viadieu: J. Magn. Magn. Mater., **83**(1990), 183-186.
- (16) R. Street and J. C. Woolley: Proc. Phys. Soc. A, **62**(1949), 562-572.
- (17) R. Skomski: J. Phys.: Condens. Matter., **15**(2003), R841-R896.
- (18) D. Givord, A. Lienard, P. Tenaud and T. Viadieu: J. Magn. Magn. Mater., **67**(1987), L281-L285.
- (19) 西尾博明：日本応用磁気学会誌, **13**(1989), 209-212.
- (20) M. Soderžnik, H. Sepehri-Amin, T. T. Sasaki, T. Ohkubo, Y. Takada, T. Sato, Y. Kaneko, A. Kato, T. Schrefl and K. Hono: Acta Mater., **135**(2017), 68-76.



広沢 哲

★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★
 1981年 京都大学大学院工学研究科博士後期課程修了
 1984年 住友特殊金属(株)(現 日立金属(株))入社
 2012年4月- 現職
 専門分野：希土類磁石材料
 ◎Nd-Fe-B系焼結磁石、および、ナノコンポジット
 磁石の研究開発等に従事。元素戦略プロジェクト
 の磁石分野研究代表者として活動後、その成果を
 基盤とする産学連携マテリアルズオープンプラッ
 トフォームの企画運営に2022年から従事。
 ★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★