

■受領No.1393

## 計算科学的手法を用いた ネオジム焼結磁石界面近傍の副相に関する微視的研究

代表研究者

立津 慶幸

名桜大学 リベラルアーツ機構 准教授



### 1. 研究目的

高性能永久磁石として知られるネオジム磁石のニーズが、ハイブリッド車の普及やロボット技術開発の促進に伴い急増している。このネオジム焼結磁石は、主相と呼ばれる $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ と合金的な組成を持つ副相により構成される金属間化合物である。これら主相と副相が形成する界面の制御は、保磁力と呼ばれる磁石の性能を決定づける物理量の向上と密接な関わりを持つことが理論・実験的手法を用いた相補的研究から理解されつつある。また、副相がアモルファスのように複雑な結晶構造を示すケースでは保磁力が低く、逆にきれいな格子を組むケースでは保磁力の高い磁石が得られることが実験的研究により分かっている。そこで本研究では、副相の組成と構造が保磁力に影響を与えるという実験的事実に着目し、計算科学的手法(第一原理計算)を用いて副相の組成と構造を同定する研究をおこなった。

### 2. 研究内容

ネオジム磁石が高保磁力を有する傾向として、Feを有するNdリッチ相と呼ばれる副相(Nd-Fe合金)が主相間において形成され、なおかつきれいな格子を形成することが実験的観測により示されている。しかし、副相の結晶構造や、こういった構成元素比を取れば結晶化するのかを同定するための直接的観測が困難であることから、詳細な結論

は得られておらず、副相と保磁力の関係性解明のためにも早急の解決が望まれている。また、磁性元素であるNdとFeで構成される副相の磁気状態に関しても詳細は不明である。このため、第一原理計算と呼ばれる計算科学的手法を用いてコンピューター上で安定構造と組成を同定し、更にはその磁性状態を調べる研究を進めた。

以前我々が行った研究において、面心立方、体心立方、六方晶構造をもつNd-Fe合金の生成エネルギーを解析した結果、面心立方構造が最も安定であるという知見が得られている。この結果を踏まえ、本研究では面心立方格子を有する代表的なFluorite、Cuprite、Half-Heusler構造を選択し、これらの構造を仮定したNd-Fe合金の生成エネルギーを計算した。全ての計算において原子位置と格子定数の最適化をおこない、エネルギーが最も安定な構造を最終結果として採用した。その結果、Fluorite構造を有するNd-Fe合金は、結晶構造内におけるFe含有率を0~33%の広い範囲で変化させた場合においても、面心立方格子を保ったまま安定に存在することを確認できた。図1に、今回選択した3つの構造における、最安定構造の生成エネルギーを示す。この結果、 $\text{Nd}_{0.67}\text{Fe}_{0.33}$ のFluorite構造が最安定であることを突き止めた。

一方、このFluorite型 $\text{Nd}_{0.67}\text{Fe}_{0.33}$ 合金は生成エネルギーが正であるため、実際には構造として不安定である。そこで、Al、Co、CuまたはGaが微量

に添加された高保磁力磁石に着目し、Fluorite型  $\text{Nd}_{0.67}\text{Fe}_{0.33}$  合金にこれらの元素を含め生成エネルギーを計算することで、副相の安定性を考察した。この結果を図2に示す。解析の結果、これらの添加元素は副相の安定性を増加させる役割があることを第一原理計算により初めて確認することができた。

元素組成比から理解できるように、磁性元素で構成される副相Nd-Fe合金は、主相と同様強磁性を示すことが予想される。この添加元素と、副相の磁気状態の相関を調べるため、本研究では強磁性状態を維持できる温度  $T_c$  (キュリー点) を計算した。その結果を図3に示す。グラフから明らかなように、Fluorite型Nd-Fe合金にCuまたはGaを添加することでそのキュリー点は減少し、特にGaはCuよりもその傾向が大きいことが理解できる。今回の計算で明らかになった副相のキュリー点減少は、

磁石の高保磁力化にとって重要な知見の1つである。その理由は、強磁性を示す主相同士の磁気的な結合を弱める働きを副相が担っていると考えられているため、主相よりも低いキュリー点を有する副相が望ましく、添加元素がその役割を担っていることが電子状態解析により明らかになったからである。

本研究では、ネオジム磁石内部に存在するNd-Fe合金の安定構造同定と、添加元素の関係性および合金の磁気物性を第一原理計算を用いて調べ、CuやGa添加型ネオジム磁石が高い保磁力を有する理由を電子状態解析により議論した。今後は、このNd-Fe合金がネオジム磁石内の界面に存在した場合の第一原理計算に着手し、界面近傍に関する電子状態解析から得られる知見を永久磁石開発の応用に役立てたいと考えている。

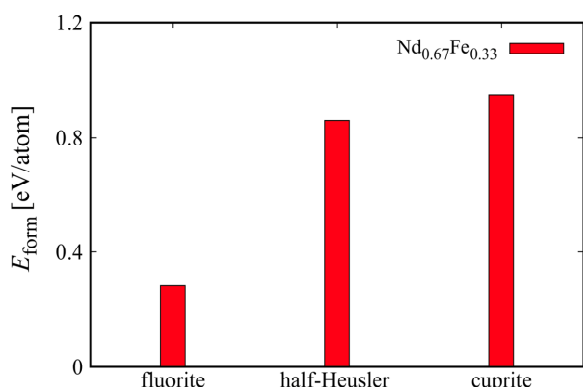


図1. Fluorite、Cuprite、Half-Heusler構造を持つNd-Fe合金の生成エネルギー。値が小さい方が安定となる。

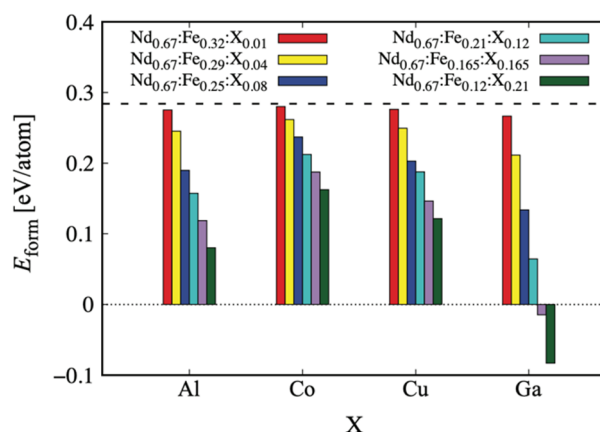


図2. Fluorite構造のNd-Fe合金にAl、Co、Cu、Gaを微量添加した際の生成エネルギー。Ga添加は構造安定性に寄与することが分かる。

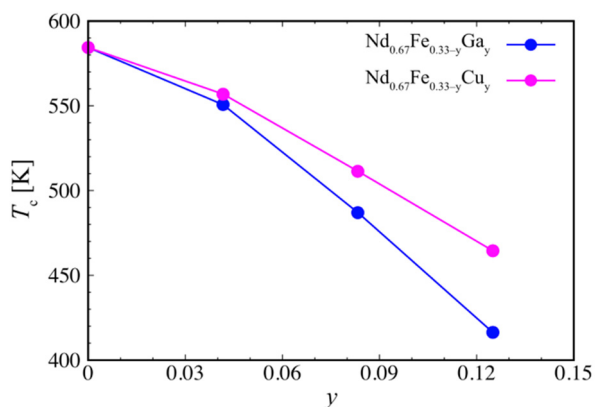


図3. CuとGaを添加した場合の、Fluorite構造を有するNd-Fe合金のキュリー点の変化。

### 3. 発表(研究成果の発表)

- [1] Yasutomi Tatetsu, “First-principles study for material science”, OISTセミナー(沖縄科学技術大学院大学, 2020年)
- [2] 相内優太, 立津慶幸, 寺澤麻子, 合田義弘, “First-principles study on structures of Nd-Fe alloys”, 2020年春季(第166回)日本金属学会(東工大, 2020)
- [3] Yuta Ainai, Sonju Kou, Yasutomi Tatetsu, and Yoshihiro Gohda, “First-principles study on magnetism of a crystalline grain-boundary phase in Nd-Fe-B permanent magnets”, Japanese Journal of Applied Physics, 59, 06094 (2020).