報告：2022 前期寺子屋 BM 塾
第 31 期　BM 講座

寺子屋 BM 塾長
元・日立金属㈱
徳永　雅亮

2022 年度前期の BM 塾では、立命館大学の小林久理眞先生に永久磁石の保磁力に関して、3 回の連続講義をお願いした。①「保磁力の概念と基本式」、②「磁気余効現象と超常磁性」及び③「磁区構造の変化と保磁力の関係」の 3 講義である。

保磁力の問題は磁気特性としては明快に測定可能であるが、その機構の内容については局所的・断片的な議論は多いが、全体像が把握し難い。今回の小林先生による包括的且つ視点の高い議論で、しっかりその基礎を勉強できるものと考えられる。

第 1 講

2022 年 5 月 27 日（金）@ Zoom

講義：各論講義「保磁力の概念と基本式」

講師：小林　久理眞（立命館大学　客員研究員）

概要：Stoner-Wolfarth(S-W) モデルと Kronmuller の式の内容説明

受講生総数：73 名

記事：まず、現実の Nd-Fe-B 焼結磁石の実体を見てみよう。具体的に応用されている磁石は小さいものでも数 mm の大きさを持ち、結晶粒子のサイズは数μ m から 10 μ m なので、1 つの磁石は 100 万個から 1000 万個の結晶粒子で構成された多結晶・焼結体である。磁石のエネルギーを低く抑えるために、多数の細長い N-S 極の領域に分かれており、その 1 本を磁区と呼び、その幅は 1 μ m 程度である。磁区は研磨面を用いて MOKE（磁気光学カー効果）で観察できる。熱脱磁状態では多磁区構造が観察されるが、着磁のために大きな磁場（H）を印加すると、磁区構造が消えて、単磁区化する。着磁と反対方向に磁場印加すると磁気モーメントが反転する粒子（群）や多磁区構造に戻る粒子（群）が観察できる。

磁石に正負方向の磁場を印加することによってヒステリシス曲線が得られる。熱脱磁状態の磁石は多磁区状態にあり、大きな磁場による着磁後、磁場を取り除いても磁化が残る残留磁化状態（M_r、J_r、$J=\mu_0 M$）になる。着磁と逆方向の磁場を印加してゆくと、磁化が消失する磁場強度である保磁力 (H_{cJ}) が観察される。

磁石は以下の磁気的な階層構造を持つ。①現実の磁石サイズで生じること（反磁場）、②数μ m サイズの磁区構造及び③結晶構造を構成している原子サイズ以下の (nm 以下) の磁気構造の 3 つの階層である。結晶粒子は単磁区粒子（SDG）、着磁可能な多磁区粒子 (SMDG) 及び多磁区粒子（MDG）に分類できる。この結晶粒子の 3 分類は結晶粒子群についても可能である。単磁区粒子はヒシテリシス曲線の総ての領域で、常に単磁区状態を維持する。その変化は±の磁化方向のみである。着磁可能な多磁区粒子は熱脱磁状態で多磁区であり、着磁によって単磁区化する。磁場方向を逆にした場合に多磁区化する場合、単磁区のまま磁化反転する場合の 2 面性を持つ。多磁区粒子はフル着磁状態以外では常に多磁区状態を示す。ヒステリシス曲線で 3 種の粒子の役割を整理すると、単磁区粒子は角形の良いヒステリシス曲線を、多磁区粒子はヒステリシス曲線を示さず、保磁力はゼロで、着磁可能な多磁区粒子はヒステリシス曲線を示すが、一般に単磁区粒子よりもその保磁力は小さい。

保磁力は磁石の N-S 極の配置が逆転（磁化反転）する際に必要な印加磁場であり、N-S 極と S-N 極の割合が 1:1 で、磁石全体の磁化はゼロである。保磁力の発現機構は核生成型とピンニング型に大別される。保磁力発現機構の差は初磁化曲線にクリアに現れる。核生成型は磁化の立上りが鋭く、着磁磁場に対する保磁力の変化が大きい。ピンニング型では磁化はなかなか立ち上がらず、更なる磁場印加で一気に立ち上がり、着磁磁場に対する保磁力の変化が小さい。希土類磁石の保磁力発現機構は 2 相分離型の Sm_2Co_{17} 以外は核生成型で整理されている。MOKE 及び MFM（磁気顕微鏡）を用いて、保磁力の異なる Sm_2Co_{17} 磁石の磁区幅を観察すると、保磁力の大きい磁石において磁区幅（d_D）が小さくなる結果が得られている。具体的には H_{cJ}=6kOe で d_D=2.40 ± 1.25 μ m、H_{cJ}=15kOe で d_D=1.05 ± 0.25 μ m、H_{cJ} =20kOe で d_D =0.81 ± 0.09 μ m である。析出硬化型の Sm_2Co_{17} では、磁壁が点欠陥以外に線状及び 3 次元欠陥等によってピンされると考えられている。

磁化反転に必要なエネルギー＜E_1＞は磁化反転核の Nucleation、Passage 及び Expansion に必要なエネルギー＜E_2＞と比較すると圧倒的に大きい。$E_1 \gg E_2$ である。この磁化反転核の大きさは 10 nm 以下と推定されているが、実験的には確かめられていない。磁気的な階層の異なる 3 つの磁化反転モデルが提案されている。①現象論（古典論）的モデルで、磁気モーメントの集団が N-S 極を反転させるモデル（解析式と計算）、②マイクロマグネティックスモデルと磁化反転計算、③量子力学的モデルと計算である。何れも、磁化反転のエネルギーが保磁力を決定する。本講義では①のモデルを用いて、磁化反転を議論するが、磁化反転核のような小さな領域の議論が可能かどうかは確証があるわけではない。

磁気モーメントに基礎をおいて保磁力の議論を進めるために、基礎的な部分を整理しておく。磁気モーメントは磁荷 q が L の距離を隔てて存在しているもので、磁荷は独立では存在しない。永久磁石材料の物性は磁気異方性磁場 H_a、単磁区粒子径 R_c で表現し、保磁力発現には粒界相とその磁性が重要になる。ただし、結晶粒子の磁気状態と試料内の磁区構造は別の問題と考えるべきで、磁区構造を議論する場合は結晶粒子集団を考える必要がある。

バルク磁石内の反転核生成には S-W モデルはそのまま適用できないことに注意しよう。反転核の局所的な反磁界や反転核表面の動的磁壁を

取込む必要がある。また、永久磁石の熱消磁状態では多磁区状態にあること、着磁されると単磁区化し、逆磁界が印加される第 2 ・3 象限では単磁区粒子として磁化反転するものと、多磁区化して逆方向に着磁され、再度単磁区化する結晶粒子の変化のモードを理解しよう。保磁力理論ではどの程度の磁場を印加すると磁化反転が起こるかをエネルギー論に則って考える。その際、一挙に生じる磁化反転よりも磁石の小さな部分である反転核から生じる磁化反転の方がエネルギー的に容易であることに注意する。

棒磁石に磁場 (H) 印加すると回転トルクが発生し、この回転トルクを用いて棒磁石のエネルギーを導出する。

磁気トルク $= LqH\sin\theta = mH\sin\theta$ (1)

ここで、L：棒磁石の長さ、q：棒磁石の両端にある磁荷、θ：棒磁石の長さ方向と磁場印加方向のなす角度、m：磁気モーメントで、$m=qL$ である。m を $\mu_0 M_s(=J_s)$ に置換え、トルクに回転距離移動を掛けると、

磁石のエネルギー $E_{mag} = -J_s H\cos\theta = -J\cdot H$ (2)

が得られる。磁場 H 中に存在する磁気分極 J を有する磁性体の磁気エネルギー（ポテンシャルエネルギー）である。

孤立する単磁区粒子の単位体積当たりのエネルギーは S-W モデルでは以下のように記述される。

$$E_{total} = E_{mag} + E_a = -J_s H\cos(\theta_0-\theta) + K\sin^2\theta \quad (3)$$

ここで、E_a：磁気異方性エネルギー、θ_0：磁性体の c 軸と磁場方向のなす角度、θ:磁性体の c 軸と磁化の方向のなす角度である。今、$\theta = 0$、$\theta_0-\theta = \pi$ の条件下で $\partial^2 E_{total}/\partial\theta^2 = 0$ を計算すると、$H = 2K/J_s$ が得られ、孤立粒子の保磁力を $H_c \equiv 2K/J_s$ と定義することができる。E_{total} の 2 次微分式の正負が反転する磁場を計算上の保磁力としている。S-W モデルでは磁気異方性エネルギーと磁気エネルギーのつり合いで、磁化方向の逆転が起こる磁場を計算している。S-W モデルの適用範囲は単磁区の孤立粒子に限定され、磁区構造や磁壁移動のない場合のモデルである。

反磁界について考えよう。反磁界は磁化した微粒子の内部磁場 (H_{in}) をできるだけ小さくして自己エネルギー ($E = \mu_0 H_{in} M$) を小さくしようとする。反磁場 (H_d) は $H_d = -NM_s$ で表され、磁石の内部磁場は

$$H_{in} = H_{ex} + H_d = H_{ex} - NM_s \quad (4)$$

と表される。ここで、H_{ex}：外部からの印加磁場、H_{in}：磁石の内部磁場、N：磁石形状による反磁界係数である。

Kronmuller の式を導出する。式 (3) の S-W モデルの E_{total} を角度条件 $\theta_0 \approx \pi$ 及び $\theta \ll 1$ を適用して書き換えると、θの関数として

$$E_{total} = -(J_s H/2)\theta^2 + K\theta^2 \quad (5)$$

が得られる。$\cos(\pi-\theta) = -\cos\theta$ 及び三角関数のテーラー展開の θ^2 の項までを用いて計算する。式 (5) の H に $H_{in}=H_{ex}-NM_s$ を代入し、E_{total} を 2 回微分することによってエネルギーが最も低い条件を求め、H_{ex} について解くと、

$$H_{ex} = (2K_1/\mu_0 M_s) + NM_s \quad (6)$$

が得られる。Kronmuller の式は S-W モデルの保磁力の式に形状磁気異方性を含む反磁場を導入して、どのような磁場で磁化が反転するかを数学的に計算したものである。現実の永久磁石の保磁力を表現するために第 1 項に係数 α を導入する。（$\alpha < 1$）上式を書き直すと

$$H_c = \alpha H_a - N_{eff} M_s \quad (7)$$

となり、第 1 項は α で補正された磁化反転磁場であり、第 2 項は形状磁気異方性の影響を拡大解釈するための項で、局所の問題を議論することが多い。Kronmuller の式の利用方法の 1 つに式 (7) を M_s で除して、温度をパラメータとしてデータを集積し、係数 α と切片 N_{eff} を決定することが行われている。実験的に得られた N_{eff} は論理的にあり得ない 1 を超える場合もあり、今後の詳細解明が必要である。

保磁力の c 軸方向からのズレに関する議論（配向度が保磁力に与える影響）は別問題として意識しておく必要がある。また、反磁界についても試料全体の反磁界分布、試料内部の局所の反磁界及び磁化状態に依存する反磁界を区別して認識することが求められる。Givord らのグループはこれらを分解し、具体的にヒシテリシス曲線の反磁界補正の手法を議論している。より詳細な検討により、ボンド磁石への適用が期待される。

S-W モデルと Kronmuller の式には磁区や磁壁のない、相互作用のない単磁区孤立粒子が根底にあること、現実の磁石の保磁力を議論するために Kronmuller の式に補正項を加える工夫されていることが今回の講義で非常に明快に理解できた。

第 2 講

2022 年 6 月 17 日（金）@ Zoom

講義：各論講義「磁気余効現象と超常磁性」

講師：小林　久理眞（立命館大学　客員研究員）

概要：時間 (t) に対する磁化変化と活性化体積 (v)

受講者数：75 名

記事：磁気余効現象とはヒステリシス曲線の減磁部分（第 2、3 象限）で印加磁場を止めると磁化はその印加磁場下で時間と共に減少することを指す。磁化の減少が最も大きいのは保磁力近傍の磁場で保持した場合である。従って、磁化は磁場 H 及び経過時間 t の関数と考えなければならない。測定に要する時間の異なる磁気測定方法は多種あるが、厳密には「磁気余効」の影響が含まれている。更に、ヒステリシス曲線は温度依存性を示す。温度依存性は材質毎に異なり、応用の際には確認が必要なことは言うまでもない。

磁気余効現象はネールの地磁気に関する論文にそのルーツがある。岩石が地磁気を記憶する実体を岩石に含まれる強磁性鉱物粒子とし、その記憶の時間変化を考察した。強磁性鉱物粒子の大きさには分布があり、大きな粒子（体積 v の大きな粒子）の N-S 極を逆転させるには大きなエネルギーが必要で、反転のために必要な時間は長いと考える。ネールのイメージは式 (1) で表現できる。

$$\tau = \tau_0 \exp(E/k_B T), \quad E = -v J_s H \quad (1)$$

ここで、τ_0:標準緩和時間（非常に短い）、$\tau=t$:反転までの待ち時間、E：磁化反転エネルギーである。式 (1) は exp 関数で、E が大きくなると、τ は急激に大きくなることを示している。実験的に観測される磁気余効は以下の説明が最も理解し易い。強磁性体に磁場 H_1 を印加しておき、磁場を H_2 に増加させる。磁場 H_1 の時の磁気分極 J_1 は瞬時に H_2 に見合う磁気分極 J_2 には増加しない。磁場 H_1 を H_2 に増加させる時間を $t=0$ とすると、$t=0$ の瞬時にある程度増加した後、そこから J_2 まで時間経過とともに増加し、J_2 に到達する。この時間経過に伴う磁気分極増加が緩和過程である。

磁化の時間変化（減磁過程）は式 (2) で表現される。

$$J(t) = J_0[1 - \exp(-t/\tau)] \quad (2)$$

式 (1) と式 (2) は exp 関数の中の±が逆転しているが、+ が着磁過程、−が減磁過程それぞれの時間変化を示している。ネールのモデルである岩

石中の磁性鉱物粒子は孤立しているが、現実の磁石では相互作用のある結晶粒子で構成されているので、系としては相当の差がある。

過去の地磁気の方向を岩石に残された磁化の方向測定を用いて推定することができる。地球磁場の方向を記憶している岩石の地質年代を揃えること、以降の地殻変動による岩石の方位変化の確認及び多地点での岩石採取が地磁気の方向決定には必要である。

超常磁性は粒子径 (D) の対数 ($\ln D$) とその粒子の保磁力の関係に現れる。保磁力は $\ln D$ の減少に伴い増加し、単磁区粒子径 (R_c) で最大値を示した後、更なる $\ln D$ の減少に伴い低下し粒子径 D_p において保磁力が消え、常磁性化する。D_p は 10 nm 程度である。磁気異方性の小さい Fe 粒子を nm オーダーに微細化すると現れる。強磁性状態では保磁力の小さな軟質強磁性体であったものが、あたかも独立の大きな磁気モーメントを持つ巨大原子の様に振舞う。$Kv \sim k_BT$ 付近で超常磁性が顕在化する。超常磁性粒子の磁化反転する緩和時間は式 (3) で表現できる。

$$\tau_N = \tau_0 exp(Kv/k_BT) \qquad (3)$$

ここで、τ_N:この体積 v の「緩和時間」、τ_0:標準の緩和時間（ピコ秒オーダー）、v：磁化反転粒子体積、K：結晶磁気異方性である。Kv は結晶磁気異方性起源の磁気エネルギーである。磁化の時間変化を示す式 (2) と式 (3) を比較すると、$exp(-t/\tau)$ と $exp(Kv/k_BT)$ が同一の変化を表していることが理解できる。磁気余効を示す式 (1) と超常磁性を示す式 (3) を比較すると、形式的には似ているものの、別の物理現象である。超常磁性は無磁場で発現するが、磁気余効は印加磁場下の現象である。エネルギーの議論では磁気余効は磁気エネルギー ($\pm vJ_sH$) が主体となって発現する現象で、大きな印加磁場が存在する。超常磁性は磁気異方性エネルギー（$Ksin^2\theta$）が主体となって発現し、小さな K が有利になる。熱エネルギーとの関係で見ると、磁気余効は S-W モデルの磁気エネルギー ($\pm vJ_sH$) と熱エネルギー (k_BT) との均衡で、超常磁性は磁気異方性エネルギー (Kv) と熱エネルギー (k_BT) の均衡で生じる。確認しておきたいのは、磁気余効と超常磁性は物理的内容とその機構は区別するべきであるが、同じ表現形式で表すことができることである。

磁気余効の測定方法を見てみよう。試料を 5T で着磁する。第 2 象限の保磁力に近い A 点まで減磁して、磁場掃引を止め、例えば、60 分間保持する。60 分保持によって磁化が減少し、B 点に達する。磁場をゼロに戻すと、磁化は多少増加し、C 点に達する。A、B 及び C 点の磁化をそれぞれ M_A、M_B 及び M_C とする。A 点と磁場ゼロの間の磁場の差を ΔH とすると、以下の可逆及び不可逆磁化率が得られる。

χ_{rev}（可逆磁化率）$= (M_C - M_B)/\Delta H$

χ_{irr}（不可逆磁化率）$=(M_A - M_C)/\Delta H$

A 点から B 点までの磁化の時間変化は 5 秒程度経過後から $\ln(t)$ に対して、直線的に変化する。数式としては式 (4) の様に表記される。

$$M(t)=M_0-S(t) \qquad (4)$$

ここで、$M(t)$：時間 t における磁化、M_0：直線的減少分の t=0 の値であり、S を磁気粘性（定数）と呼ぶ。

具体的に、式 (4) で表現される磁化の減少を種々の大きさの強磁性鉱物粒子を含む岩石を念頭に考える。強磁性鉱物粒子は様々な体積 (v) すなわち、様々な緩和時間 (τ) を持ち、この鉱物粒子を反転核と考える。磁化の減少がこの反転核の磁化反転で起こると解釈する。各反転核は反転エネルギー (E) に分布があると考え、その分布関数を $F(E)$ とする。分布関数 $F(E)$ は E で 0 から∞まで積分すると 1 を示し、分布関数の基本的性質を持つ。ΔE のエネルギー範囲の反転核が磁化反転すると磁化は式 (5) で表される変化を示す。

$$dM = -2M_sF(E)dE \qquad (5)$$

係数の 2 は、磁化全体が M から $-M$ に磁化反転する際の変化分 $2M$ の 2 である。なお、式 (4) と式 (2) は磁化の方向を逆（±）にすると明らかに似ている。数学的に式 (2) から式 (4) を導くことができる。

磁気余効を読み解く重要な式は式 (1)、(4) 及び (5) である。磁気余効理論の創始者はネール研の Dr. D. Givord であり、ネールの岩石中の「磁化反転粒子」を永久磁石にも適用できる「活性化体積 (v)」という概念に仕上げた。活性化体積を求める論理を見てゆこう。式 (4) に現れる S は $S = S_{rev} + S_{irr}$ に分解できる。磁気粘性係数を可逆 (rev) と不可逆 (irr) に分解している。前掲の磁化率は磁場を取り除く（B → C）と復活した磁化から求まる χ_{rev} と時間 t の変化に純粋に対応する磁化減少から求まる χ_{irr} が定義されている。χ_{irr} 値に相当する S の値を用いて、以下の計算を行う。

$$S = \chi_{irr}S_v \qquad (6)$$

S_v は時間で割った「磁場」の次元を持ち、この磁場は磁気余効測定中、磁化に有効に印加されていたと考える。最後に磁気エネルギーと熱エネルギーを比較（$vJ_sS_v=k_BT$）して活性化体積 v を求める。注意事項としては S 及び S_v が磁気粘性係数、磁気粘性、粘性係数、磁気余効定数のように多くの訳語で示されていることがある。また、ネールは S_v を「ゆらぎ磁場」と呼んでいる。

式 (1) の両辺の自然対数をとると、

$E = k_BT(\ln(t) - \ln(\tau_0))$ が得られ、微小変化 d を取ると

$dE = k_BTd(\ln(t))$ と変形でき、式 (5) に得られた式を代入すると、式 (8) が得られる。

$$dM/d(\ln(t)) = -2M_sF(E)k_BT \qquad (8)$$

式 (8) の左辺は式 (4) を $\ln(t)$ で微分したものと同じなので、式 (7) が得られる。

$$dM/d(\ln(t)) = S \qquad (7)$$

S は式 (6) で表され、$dM/d(\ln(t) = \chi_{irr}S_v$ が導かれる。次元を見ると、$\chi_{irr}=dM/dH$ であり、$S_v = dH/d(\ln(t))$ であることが確認できる。

すなわち、S_v は磁場を時間で割った次元をもつ。式 (5) を H で偏微分すると、式 (9) が得られる。

$$\partial M/\partial H=dM/dH= -2M_sF(E)(\partial E/\partial H) \qquad (9)$$

式 (1) から得られる $\partial E/\partial H=-vJ_s$ を式 (9) に代入すると、

$$\partial M/\partial H = 2M_sF(E)vJ_s \qquad (10)$$

が得られる。

式 (6) と $S = \chi_{irr}S_v$ から

$$dM/d(\ln(t))=(dM/dH)\cdot\{dH/d(\ln(t))\} \qquad (6')$$

が得られる。式 (8)、式 (10) と $S_v=dH/d(\ln(t))$ を式 (6′) に代入すると、最終的に $vJ_sS_v=k_BT$ が得られ、$v=k_BT/J_sS_v$ となる。この v が活性化体積である。75℃での NdFeB 焼結磁石の測定結果から活性化体積の寸法は D=3 nm という結果が得られている。

磁化反転現象の主役である活性化体積を磁気余効定数の測定結果を用いて解析的に評価する方法を説明して頂いた。磁化反転のトリガーが活性化体積を有する反転核に起因するというモデルが良く理解できた。数学的取り扱いもしぶとくフォローすれば、理解可能なレベルであった。

第 3 講

2022 年 7 月 15 日（金）@ Zoom

講義：各論講義「磁区構造の変化と保磁力の関係」

講師：小林　久理眞（立命館大学　客員研究員）

概要：小林先生のグループの研究を中心に、磁壁運動の関係する現象の説明

受講者数：74 名

記事：反転核の生成による保磁力機構のプロセスは以下の段階に分類される。Nucleation（反転核の生成）、Passage（核の周辺部への移行）、Expansion（反転領域の拡張）及び Pinning（ピンニング）である。第 3 回目の講義は Expansion と呼ぶ残留磁化時における多磁区領域内での磁壁運動に関する実験結果について勉強する。

外部磁場 (H_{ex}) 下にある高配向単磁区領域 (SDR) に磁化 (M) が発生すると反磁界 (H_d) が外部磁界と反対方向に生じる。磁石内部の磁界 (H_{in}) は $H_{in}=H_{ex}+H_d$ で表され、$H_{in}>0$、$H_d<0$ 及び $|H_{ex}|>|H_d|$ が付帯条件になっている。単磁区領域の G-L 自由エネルギーを規格化された磁化を横軸として記述すると、磁化ゼロの状態が最も自由エネルギーが高く、±磁化の増加によって自由エネルーは低下し、深くなる。第 1 象限では H_{ex} 方向に SDR は磁化されており、試料自体の H_d と局所的な SDR の H_d は区別できない。$m=1$ の状態では自由エネルギーは低エネルギー状態になる。第 2 象限では H_{ex} の方向はマイナス方向に反転し、反磁界と H_{ex} は SDR 領域の自由エネルギーを増加させ、高エネルギー状態になる。マイナス方向に H_{ex} を印加することによって G-L 自由エネルギーのプラス側の磁化における最小値が持ち上げられ、磁化がプラスからマイナス方向に反転する。磁化反転核と考えても良い SDR はある磁場下で反転する。

SDG 相当の磁化反転核が生成すると、磁化反転によって反転核領域のエネルギーは低下するが、反転領域表面に遷移層（磁壁様）を形成する必要がある。遷移層の形成はエネルギーを上げる。G-L 自由エネルギーのピークと谷の差 $E_{act}(1)$ は以下の様に記述できる。

$$E_{act}(1)=K_u v(nuc)+\gamma\beta v^{2/3}$$

ここで、K_u：結晶磁気異方性、$v(nuc)$：反転核の体積、γ：磁壁エネルギー、β：反転核の形状に依存する係数である。第 2 項が磁壁エネルギーである。反転領域の体積膨張（$v\rightarrow V$）を考える。体積が V に増加することによって、磁壁エネルギーは $E_{act}(1)=\gamma\beta' V^{2/3}$ に増加する。

反転磁化拡張後の残留磁化状態（$H_{ex}=0$）において、SMDG（着磁可能な多磁区粒子）による再多磁区化領域が形成される。試料は磁化されており、反磁界が存在し、高エネルギー状態であるが、再多磁区化領域は磁化ゼロであるので、その分エネルギーは低下する。再多磁区化部分は±の磁化が磁壁を挟んで存在するために、磁化は互いに打ち消し合いゼロとなっている。この状態の磁気エネルギーは

$$E_{mag}=-M_s H_d(V-v)+\gamma(S+S')$$ となる。

ここで、V：試料全体の体積、v：再多磁区化領域の体積、S：SMDG 領域周囲の面積、S'：SMDG 領域内の磁壁の面積である。これまでの議論を纏めると、磁化反転核が発生すると、ヒステリシス曲線の第 2、3 象限では反転核の体積が大きくなった方が試料全体のエネルギーは低下する。その反転核の成長に必要なエネルギーはその領域の表面に発生する磁壁の磁壁エネルギーである。

ここからは具体的な実験結果である。まず、第 1 は Step 法による Nd-Fe-B 焼結磁石の減磁過程の解析である。保磁力レベル 13kOe と 22kOe の 2 種の試料を用いて、ヒステリシス曲線の第 2、3 象限における磁壁運動を示す領域の確認によって着磁後の再多磁区化現象を実験的に検証する。5T 程度の磁場を用いて着磁後、第 2、3 象限でマイナーループを描く。マイナス方向のある磁場 (H_B、この磁場における磁気分極を J_B とする。) から磁場を低下して磁場ゼロにすると、磁化は磁場ゼロ付近で上昇し、磁気分極は J_B' を示す。マイナーループ描画で得られる集合を J_r とする。メジャーループ測定で得られる J–H カーブとマイナーループ描画で得られる J_r–H カーブから J–J_r が求められる。J–J_r によって磁壁運動の存在が確認できる。保磁力 13kOe の試料では磁壁運動の存在が確認されたが、保磁力 22kOe 試料では磁壁運動がほとんど存在しないことが明らかとなった。

第 2 の実験は 5 種類の Nd-Fe-B 焼結磁石の熱消磁状態及び磁気消磁状態の磁化率測定である。用いた試料は A1、A2、B1、B2 及び B3 で、それらの保磁力はそれぞれ 1.20、0.80、1.60、1.35 及び 1.11T である。磁化率測定には特殊な VSM を用いた。VSM の磁極はケイ素鋼板、部品はコイル線材である Cu 線以外は金属を使用せず、磁気応答の遅れのほとんどない測定系を設計した。熱脱磁状態における± 3kOe における磁化曲線は試料間の差はなく、何れも +3kOe の磁場で 1.2T 程度の磁気分極を示した。磁気消磁は着磁後、第 3 象限までマイナス磁界を印加し、磁界をゼロに戻した場合に磁気分極がゼロになるようにトライアンドエラーで行った。磁気消磁後のヒステリシス曲線の第 1 象限の磁気分極の大きさは A2 が最も大きく、B3、A1、B2 及び B1 の順に低下する。+3kOe の磁界における磁気分極は保磁力の小さい試料ほど大きいことになる。

この現象を縦軸に磁化率、横軸に再生された磁壁運動を J_s との比で示すと直線関係で整理され、磁気消磁状態の磁化率は再多磁区領域内の磁壁運動で生じることが理解される。

第 3 の実験は Nd-Fe-B 焼結磁石内部の磁束密度のホール素子を用いた直接測定である。本実験では大型磁石に「穴」を開けて、ホール素子を挿入して、磁束密度を測定し、計算機シミュレーション結果との比較を行っている。大型磁石の寸法は 24(x) x 38(y) x 18(x)(mm^3) で、「穴」は x 方向に平行に掘り、1(y) x 0.8(z)(mm^2) の断面積を持つ。穴の数は y 方向に 5 ヶ、z 方向に 3 ヶの計 15 ヶである。中央部 (z=0) の穴を y 方向に 5 点測定したデータはシミュレーション結果と良い一致を示す。穴の存在によって磁石全体の反磁界 [$H_d(S)$] と反対方向に穴による反磁界 [$H_d(h)$] が生じていることに注意しなければならない。着磁された大型磁石を 60℃及び 100℃で熱処理した状態の磁束密度を測定する。100℃で熱消磁した試料では中央部で、あたかも「穴」が消えたような反磁場が観測される。穴の周囲に多磁区領域が形成され、その領域は試料全体としての反磁場に従い、磁区構造を変えていくと解釈できる。ただし、室温及び 60℃熱減磁では本現象は見られない。

上述の 3 つの実験から結論できることは、$Nd_2Fe_{14}B$ 系焼結磁石の実測磁壁幅が 1 μ m 程度、もしくは 1 μ m 以下であり、再多磁区化領域は少なくとも数μ m のサイズが必要で、磁壁の運動性を加味すると数μ m を超えるサイズと考えられる。磁化反転領域の体積 (V) は低保磁力試料では試料全体積の 50% 程度の場合もあると考えられ、反転領域一つの体積 (v) とその発生数 (N) から、$V=Nv$ となり、v と N は重要な観察対象になり得る。

小さな反転核が一気に膨張、拡張する機構を論じるには古典的な

Becker のモデルが理解し易い。

Becker のモデルでは磁気エネルギー：$E_{mag}=-VJ_s\cdot H$（反転核内部のマイナスエネルギー）と磁壁エネルギー：$E_{DW}=\gamma S$（反転核表面のプラスエネルギー）の和を考える。ここで、V:反転核の体積、γ:磁壁エネルギー、S：反転核の表面積である。

球状反転核の半径 R を仮定すると、$V = (4\pi R^3/3)$、$S = 4\pi R^2$ である。全エネルギーを R の関数で表現し、R の偏微分ゼロを導入すると、$R=2\gamma/J_sH$ が得られる。$Nd_2Fe_{14}B$ 系焼結磁石の静的な典型的な物性値を用いると、H=1T 印加時に R=40nm というサイズが算出される。磁気エネルギーと磁壁エネルギーは求められた R において釣り合っているので、そのサイズ以上になれば、反転核内部のマイナスの磁気エネルギーが反転核表面のプラス磁壁部分の形成エネルギーを生み出せることを意味する。印加磁界が増加すれば、R は小さくなり、成長できる反転核のサイズも小さくなる。R 以下の核は消滅するので胚芽 (Embryo) で終わる。

再度 Kronmuller の式との関連を考える。Kronmuller の式が基礎とする単磁区粒子の磁化反転では、バルク磁石内部の反転核生成のエネルギー論は成立しない。単純化すれば磁壁である表面遷移層の形成エネルギーを考慮して、はじめてエネルギー論が成立する。
Kronmuller の式 [第 1 講義の式 (7)] の第 1 項の係数 α は磁壁形成エネルギーのために小さくなる。

今後の課題としては、反転核 1 つの体積 (v) とその発生数 (N) を実験的に観察できるかどうかである。ナノ秒、ピコ秒で nm サイズの領域で発生する磁化反転の直接観察は難しい課題であるが、磁化反転途中の過程にある磁石の静的な観察は十分可能である。

磁壁運動に絡む実験結果を明瞭に示し、S-W モデルや Kronmuller の式では取り扱えないエネルギー論を明快に示して頂いた。磁化反転核のダイナミックな観察は現状不可能であるが、その代替として、磁化反転途中の静的な観察が可能であることが理解できた。

2022 年後期講座予定

第 32 期 BM 塾では豊田中研田島伸様による軟磁性材料概論及び圧粉磁心の概論を取り上げる。講義は軟磁性材料に関して初学者に近い塾生を対象とした基礎的な内容とし、3 回連続の各論講義をお願いする。

第 1 講
2022 年 9 月 9 日（金）@Zoom
講義：各論「軟磁性材料概論 1」
講師：田島　伸（豊田中研　主席研究員）

第 2 講
2022 年 10 月 14 日（金）@ Zoom
講義：各論「軟磁性材料概論 2 と圧粉磁心概論 1」
講師：田島　伸（豊田中研　主席研究員）

第 3 講
2022 年 11 月 18 日（金）@ Zoom
講義：各論「圧粉磁心概論 2」
講師：田島　伸（豊田中研　主席研究員）