



TOHOKU
UNIVERSITY

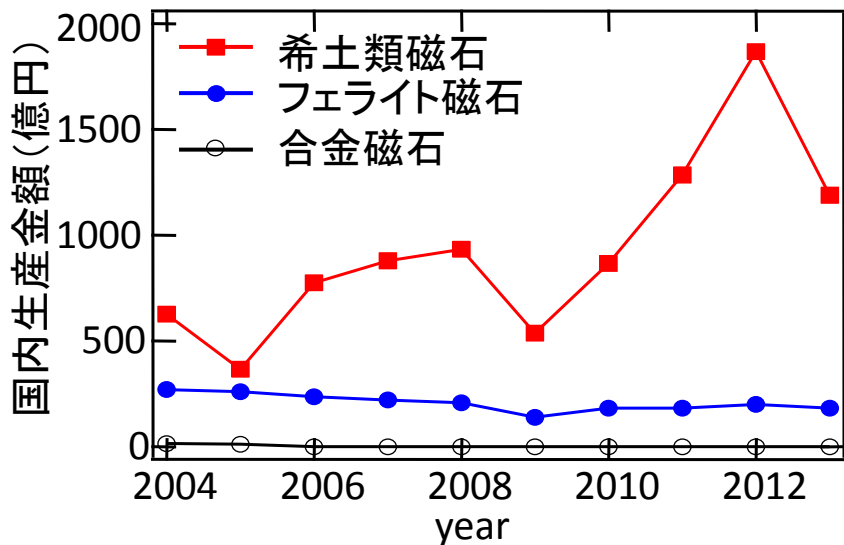
公益財団法人トーキン科学技術振興財団
平成26年度トーキン科学技術賞贈賞式
2015年3月5日 18:00~
於: 仙台国際ホテル

Nd-Fe-B薄膜におけるNd₂Fe₁₄B/Nd-rich 界面組織と保磁力メカニズム

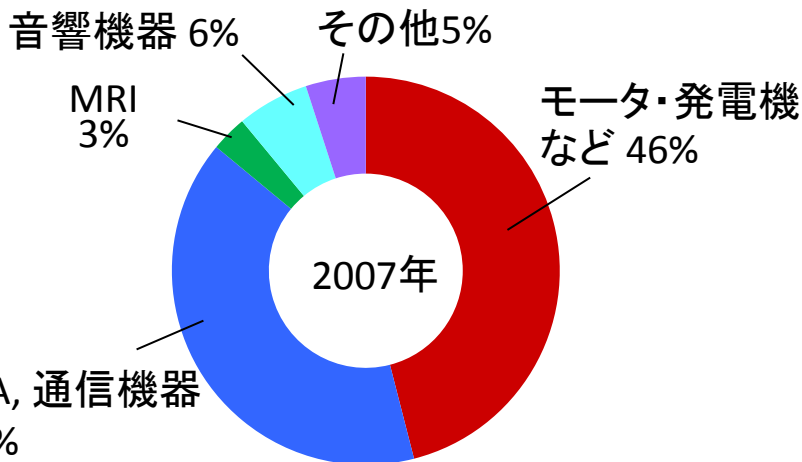
東北大学 大学院工学研究科
知能デバイス材料学専攻

助教 松浦 昌志

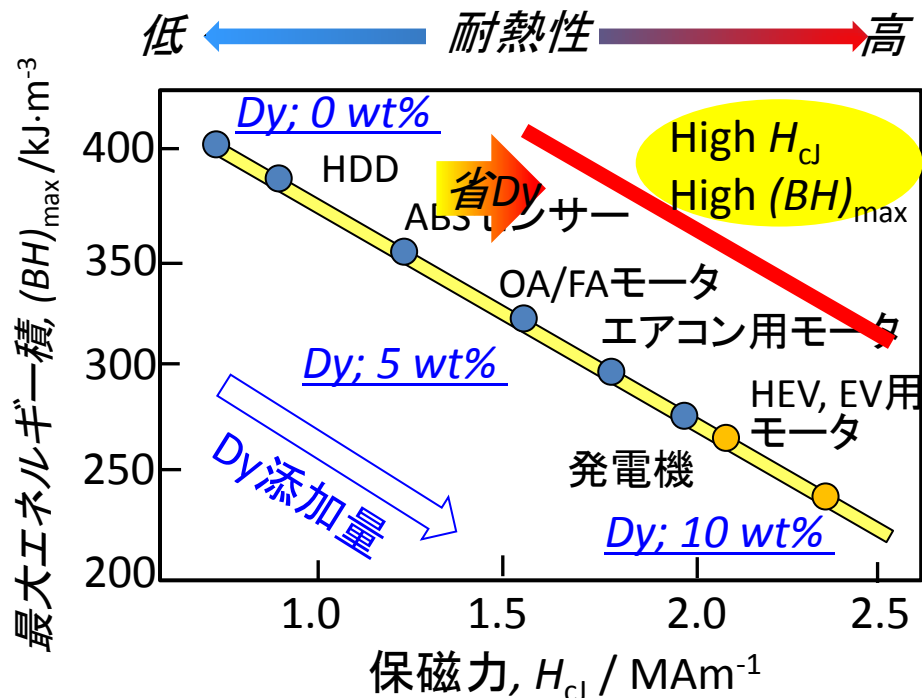
磁石の国内生産額推移^[1]



Nd-Fe-B系焼結磁石の用途^[2]



Nd-Fe-B系磁石の用途



Dy添加のメリット・デメリット

- 保磁力向上 ⇒ 耐熱性向上
- × 最大エネルギー積の低下
- × 供給不安と価格の乱高下

➡ **Dyフリーでの高保磁力化が求められている**

[1] 一般社団法人 電子情報技術産業協会 (JEITA) データベース

[2] 佐川真人 監修, ネオジム磁石のすべて (アグネ技術センター), (2011).

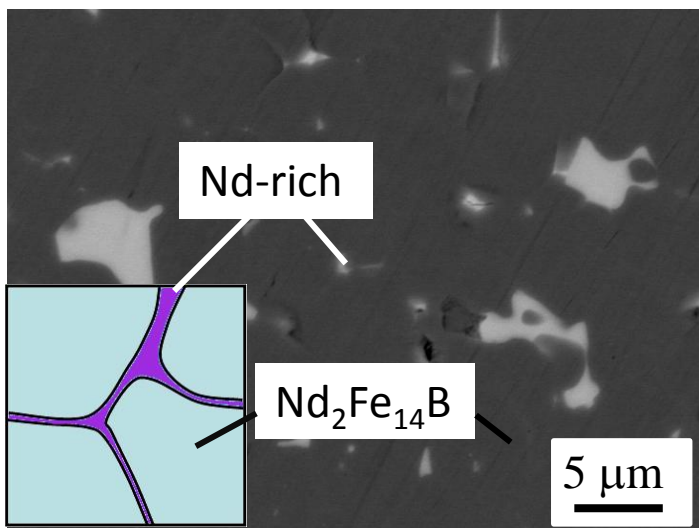


Nd-Fe-B系磁石の磁気特性

	J_r / T	H_{cJ} / kAm^{-1}	$(BH)_{\text{max}} / \text{kJm}^{-3}$
理論値	1.60	5330	512
報告値 ^[3]	1.56	653	474
到達率(%)	97	12	93

Dyフリーでも高保磁力発現の可能性あり

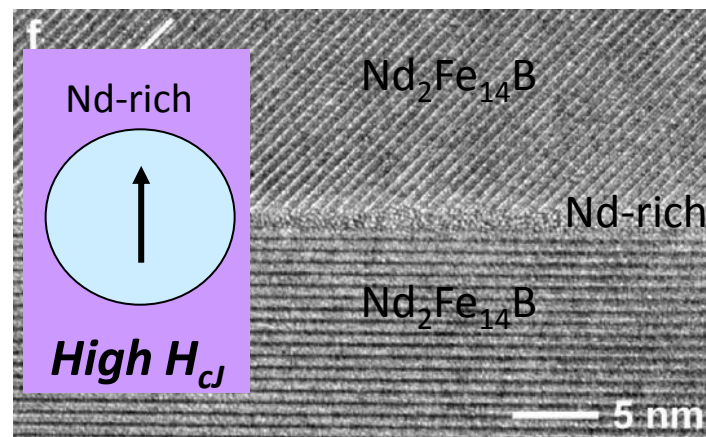
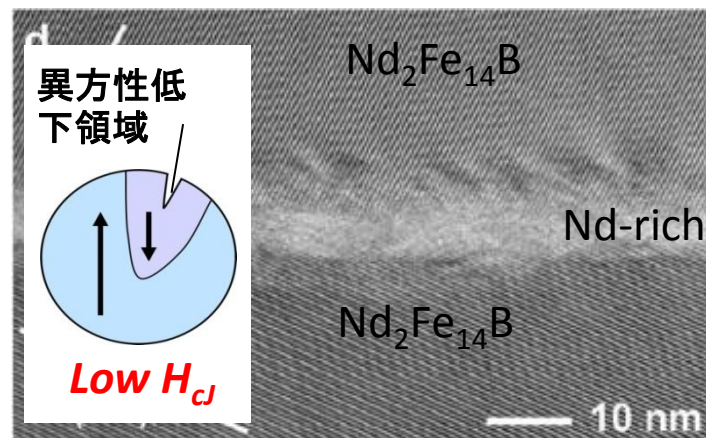
Nd-Fe-B系焼結磁石の組織



主相: $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相, 粒界相: Nd-rich相

Nd-Fe-B系焼結磁石の保磁力機構

Nd-Fe-B系焼結磁石粒界のTEM像^[4]



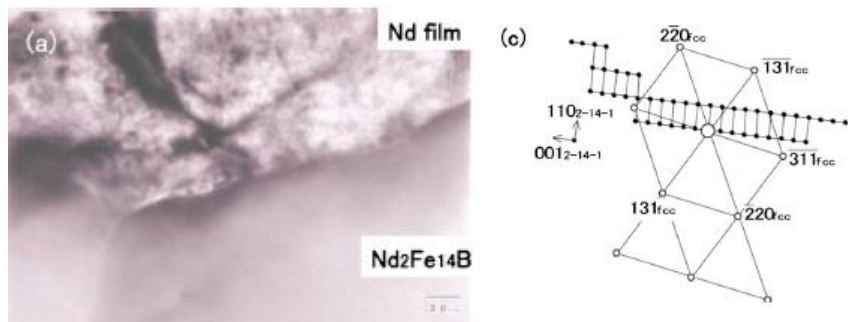
**$\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相とNd-rich相の
界面が保磁力に影響**

[3] 播本、松浦, 日立金属技報, Vol. 23, 69 (2007).

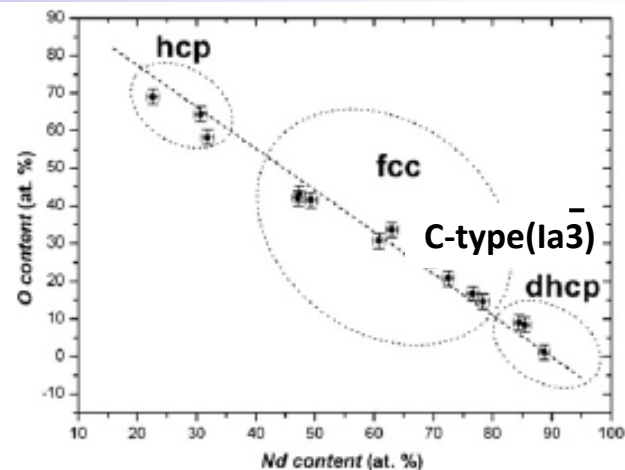
[4] Y. Shinba et al., J. Appl., Phys., 97, 053504 (2005).



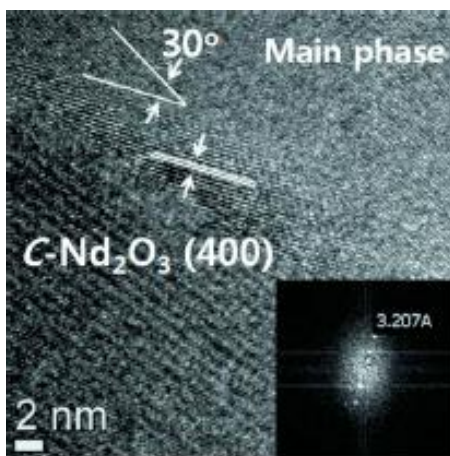
課題 - Nd-Fe-B系焼結磁石の粒界組織 -



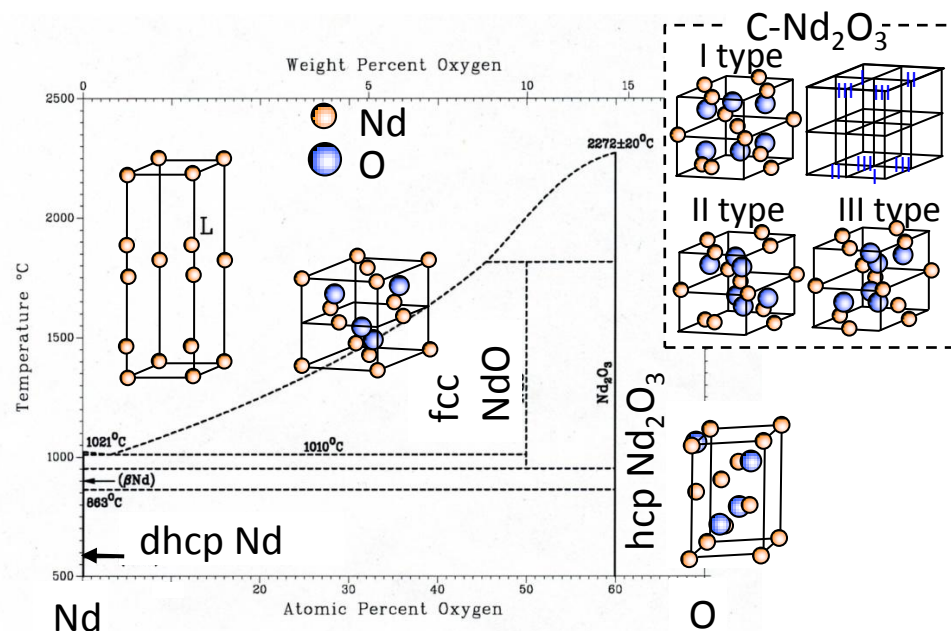
fcc NdO_x相がNd₂Fe₁₄Bとの界面に存在^[5]



Nd-rich相の結晶構造は酸素量によって変化^[7]



界面にC-Nd₂O₃ (Ia $\bar{3}$)が形成^[6]



焼結磁石中; 複数のNd-O相を含むNd-rich相

各出現相の保磁力、組織との関連: 未解明

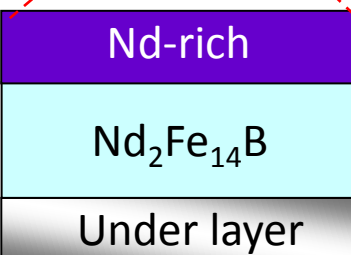
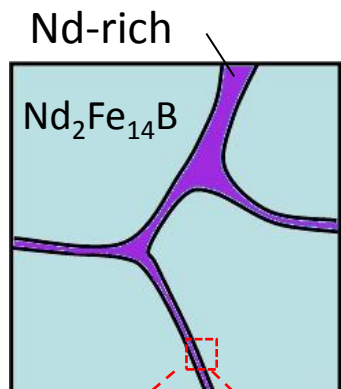
[5] T. Fukagawa and S. Hirotsawa, *J. Appl. Phys.*, **104**, 013911 (2008).

[6] D.W. Park et al., *J. Appl. Phys.*, **107**, 09A737 (2010).

[7] W. Mo et al., *Scripta Mater.*, **59**, 179 (2008).

[8] T.B. Massalski et al., *Binary alloy phase diagram*, ASM international.

薄膜技術を用いたモデル界面



焼結磁石

- ・酸素含有量;
700 mass ppm～程度^[9]
- ・不純物元素(C, Al, Cu, Ga等)の混入

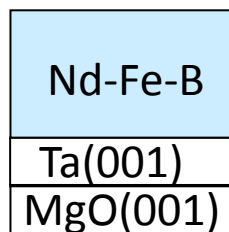
薄膜

- ・酸素量のコントロール可
- ・不純物元素抑制

各種Nd-rich相(出現相)が、界面組織および保磁力へ及ぼす影響を調査可能

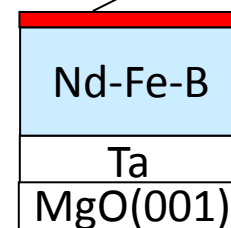
Nd-Fe-B層成膜

UHVスパッタリング
到達真空度; 1×10^{-7} Pa



酸化処理

Oxidized under Ar gas
Oxidized layer



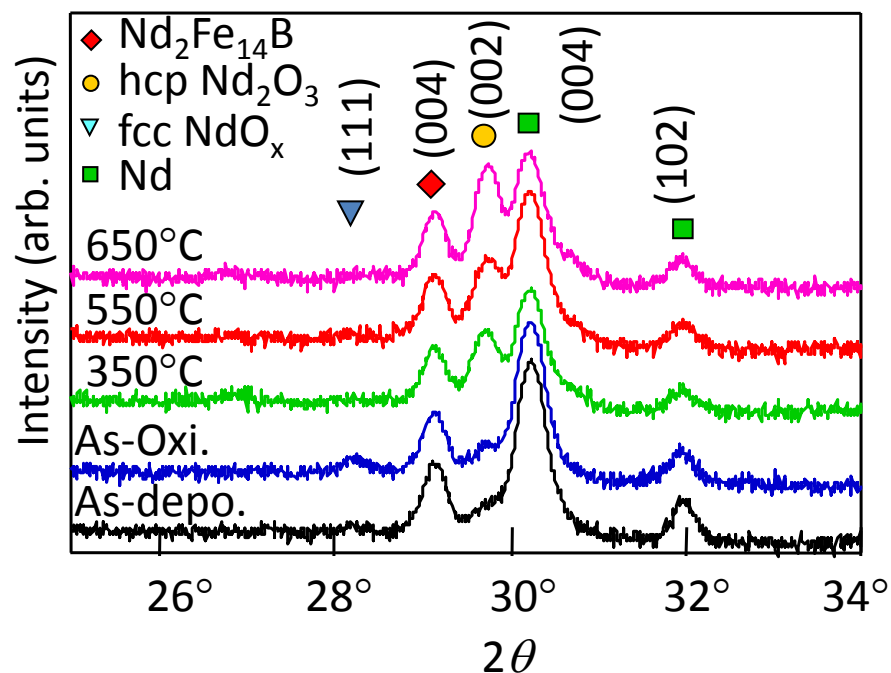
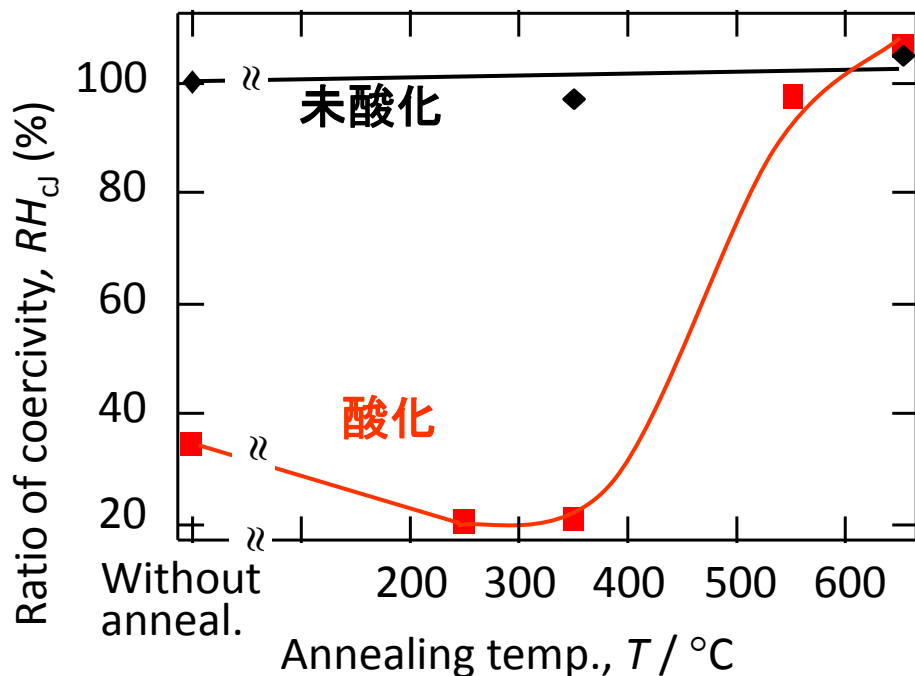
Atmosphere	Oxygen content [mass ppm]
UHV; $\sim 10^{-7}$ Pa	$\sim 2 \times 10^{-7}$
Low vac.; $\sim 10^{-2}$ Pa	~ 0.02
Ar gas	~ 2

薄膜技術を用いて酸素量を制御したモデル界面の作製

目的: 酸素濃度の異なる雰囲気下で酸化させたNd-Fe-B薄膜の保磁力に及ぼすNd₂Fe₁₄B/Nd-rich界面組織、出現相の影響調査

Ta
Oxidized phase
Nd-Fe-B; 100 nm
Ta; 14 nm
MgO(001)

酸化; Arガス
(O₂ ~ 2 ppm)



保磁力回復挙動、Nd-O相が熱処理によって変化

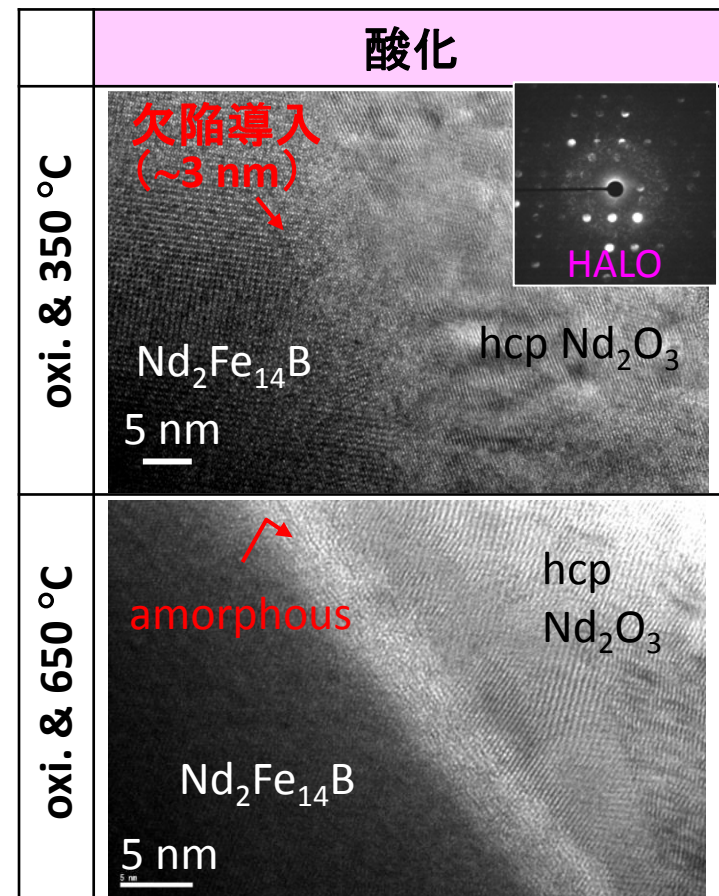
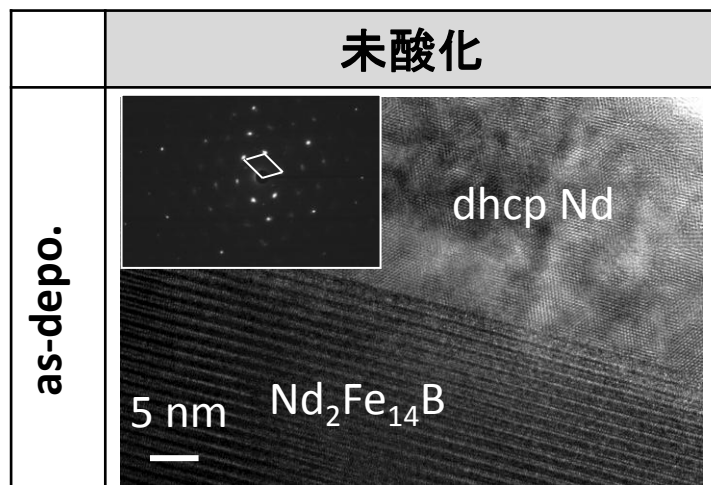
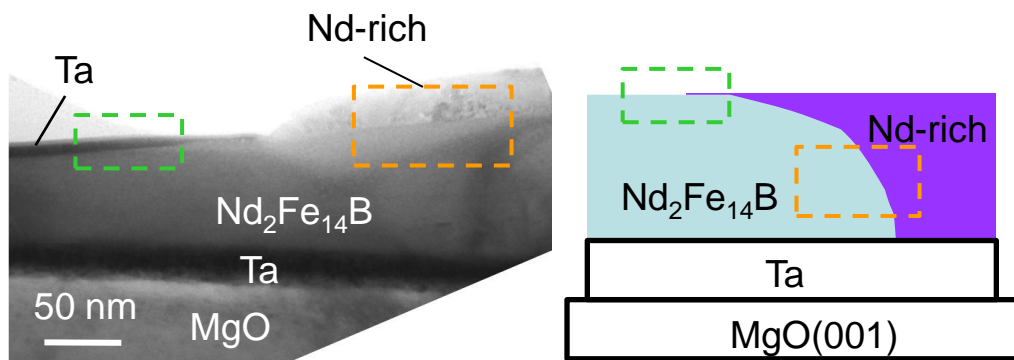
各種Nd-O相がNd₂Fe₁₄B/Nd-rich界面組織. 保磁力に影響を示唆



TOHOKU UNIVERSITY

-Nd-Fe-B薄膜の熱処理に伴う組織変化-

公益財団法人トーキン科学技術振興財団
平成26年度トーキン科学技術賞贈賞式

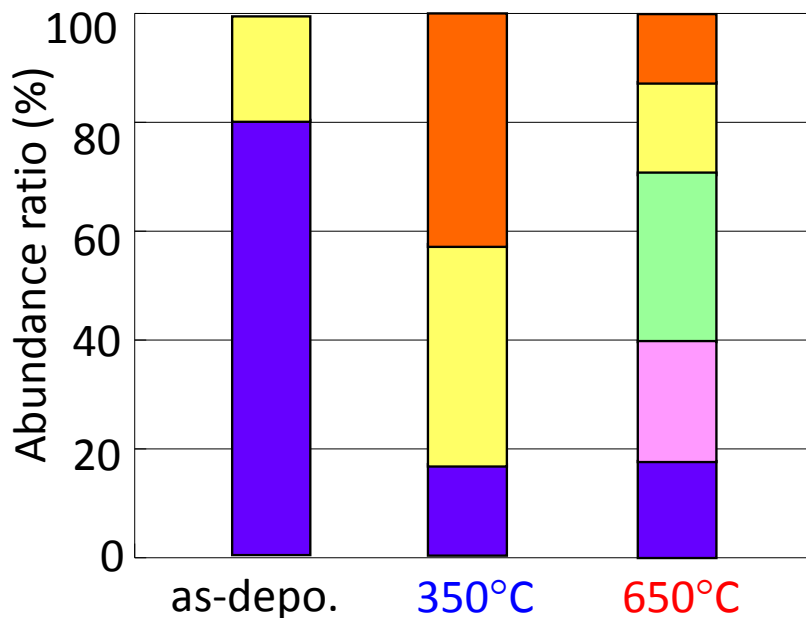


アーキテクトな酸化抑制

熱処理に伴い保磁力と出現相、界面組織が変化

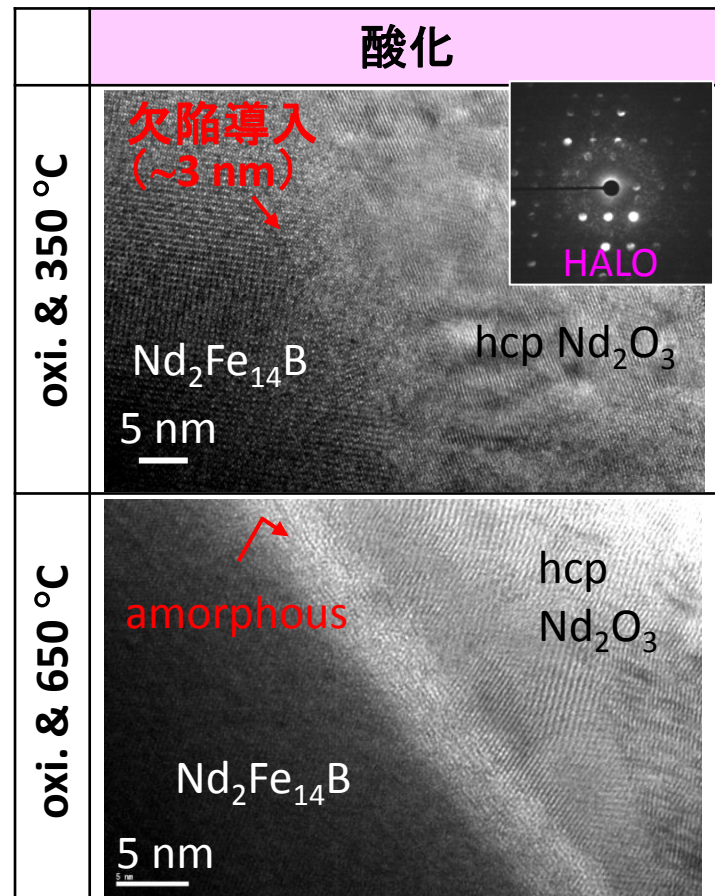


界面における出現相の存在割合



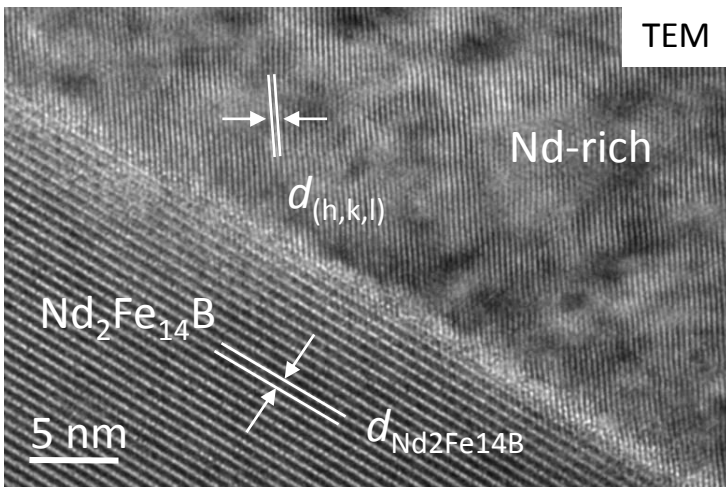
保磁力**低下** ⇒ 40%を超える *hcp Nd₂O₃* 相出現
 保磁力**回復** ⇒ 50%を超える **非平衡相**出現

保磁力と出現相の関係を定量的に示した





界面における出現相の格子定数変化

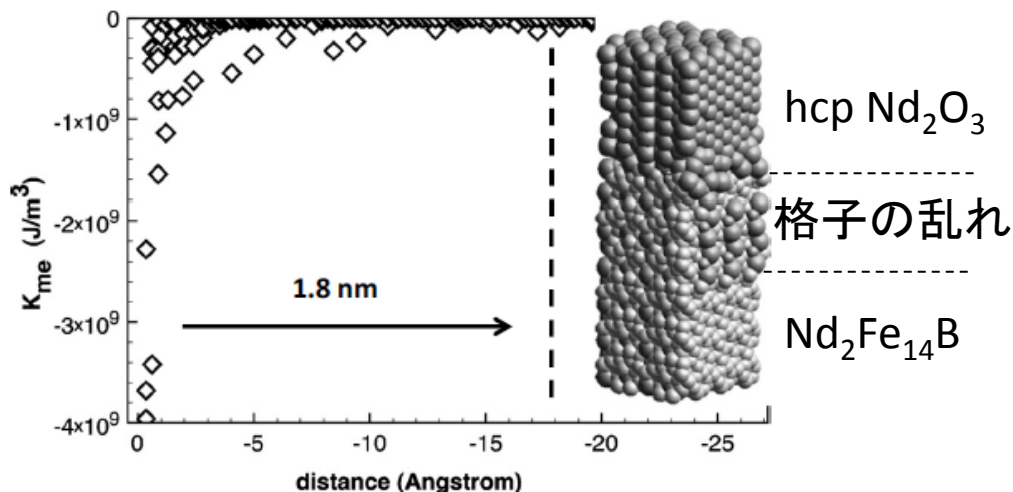


Nd₂Fe₁₄B/Nd-rich界面における各種Nd-rich相の格子定数変化を調査

Nd-O相の格子定数変化*

- ✓ C-Nd₂O₃, (fcc NdO_x); 5~10%
- ✓ hcp Nd₂O₃; ~1%

界面における歪の影響^[10]



シミュレーションにより、Nd₂Fe₁₄B/Nd-rich界面での歪が保磁力に影響することを報告^[10]

[10] G. Hrkac et al., *Appl. Phys. Lett.*, **97**, 232511 (2010).

C-Nd₂O₃, fcc NdO_x, (amorphous)相は格子定数に幅を持つ

- ➡ 界面における歪の緩和
- ➡ 保磁力低下の抑制を示唆



◆保磁力と出現相の関係の定量評価を実現

- ✓保磁力低下に伴いNd₂Fe₁₄B/Nd-rich界面においてhcp Nd₂O₃相が40%以上出現した。このとき、界面では~3 nmの欠陥が見られた。
 - ✓保磁力回復に伴いNd₂Fe₁₄B/Nd-rich界面にて、非平衡相(C-Nd₂O₃, amorphous)が支配的に存在。
- hcp Nd₂O₃相の抑制、非平衡相の形成により保磁力低下を抑制

◆各出現相の、界面近傍での格子定数変化を示した

- ✓界面において、hcp Nd₂O₃相の格子定数はほとんど変化しない(~1%)ことが分かった。
 - ✓界面において、C-Nd₂O₃, fcc NdO_x相の格子定数は5~10%の幅を持つことが分かった。
- 界面の歪の緩和により、保磁力低下の抑制を示唆

本成果に関連する主な発表論文

- Masashi Matsuura, et al., J. Appl. Phys., 105, 07A741 (2009).
- Masashi Matsuura, et al., Mater. Trans., 50, 2139 (2009).
- M. Matsuura, et al., J. Phys.; Conference series, 200, 092019 (2010).
- Masashi Matsuura, et al., Mater. Trans., 51, 1901 (2010).
- Masashi Matsuura, et al., J. Phys.; Conference series, 266, 012039 (2011).
- M. Matsuura, et al., IEEE Trans. magn., 47, 3273 (2011).
- 松浦 昌志ら, 日本金属学会誌(解説論文), 76, 65 (2012).
- M. Matsuura, et al., Proceeding of the 21st Workshop on Rare-Earth Permanent Magnets and their applications (REPM' 12), Nagasaki, Japan, 2-5 September 2012.



謝辞

本研究の遂行にあたり、多大なご指導・ご鞭撻を賜りました、東北大学大学院工学研究科 杉本諭 教授に心より御礼申し上げます。

また、岡田益男 先生、高梨弘毅 先生、今野豊彦 先生、佐久間昭正 先生、手束展規 先生、後藤龍太 博士、小林恒誠 博士、宮崎孝道 博士をはじめ、大変多くの先生方、スタッフの方、先輩方、学生の皆さまにご指導・ご助言・ご協力を頂きました。心より感謝申し上げます。