

令和 3 年 6 月 11 日現在

機関番号：82626

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2020

課題番号：18K13986

研究課題名（和文）低温還元拡散プロセスによる針状希土類磁石粉末の創製

研究課題名（英文）Synthesis of needle-shaped rare earth magnet powder by low-temperature reduction-diffusion process

研究代表者

岡田 周祐 (Okada, Shusuke)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・材料・化学領域・主任研究員

研究者番号：90712480

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000 円

研究成果の概要（和文）：本研究では、従来Ca融点（850℃）以上まで加熱する必要があった還元拡散法について、新たに熔融塩を加えることで、Ca融点以下でも還元拡散反応による希土類-遷移金属合金粉末の合成が可能な低温還元拡散法の開発を行った。研究当初としては針状の希土類-遷移金属合金粉末を合成することを第一目的としていたが、研究の中で低温還元拡散法によって準安定相であるTbCu7構造Sm-Feが合成できることが明らかとなった。さらには、合成したTbCu7構造Sm-Fe粒子は単結晶粒子であることが分かった。本研究によりNd-Fe-B磁石を超える磁石製造プロセスの新たな候補を見出すことができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、新たな準安定相合金粉末の合成プロセスを開発することができた。さらには本プロセスで開発した粉末は主に単結晶粒子から構成されていることが明らかとなった。これは従来の準安定相合金合成プロセスにはない特徴である。本研究で開発した低温還元拡散法は特に高性能磁石材料合成への応用が期待できる。

研究成果の概要（英文）：In this study, we developed a new low-temperature reduction-diffusion process that enables the synthesis of rare earth-transition metal alloy powders by reduction-diffusion reaction even below the Ca melting point by adding molten salt to the reduction-diffusion method. Initially, the primary objective of this research was to synthesize needle-like rare earth-transition metal alloy powders, but in the course of the research, it was found that the metastable phase, TbCu7 type Sm-Fe, could be synthesized by the low-temperature reduction diffusion process. Furthermore, the synthesized TbCu7 type Sm-Fe particles were found to be single crystal particles. This study has revealed a new candidate for the magnet production process beyond Nd-Fe-B magnets.

研究分野：磁石材料

キーワード：希土類磁石 Sm-Fe-N 還元拡散法 TbCu7

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C-19、F-19-1、Z-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

希土類合金磁石粉末は Nd(Dy)-Fe-B 磁石を筆頭に、Sm-Fe-N 磁石、Sm-Co 磁石など、我々の生活に欠かせない材料であり、今後の自動車の電動化に伴い需要の大幅な増大が見込まれる。よって、これまで以上に高性能な磁石が望まれている。

高性能な粉末開発として、組成・結晶構造の制御から始まり、粒径の制御、そして粒子表面構造の制御が行われている。一部遷移金属や貴金属においてはこれに粒子形状の制御による特異な特性を加えることで更なる機能化が行われるが、希土類磁石粉末において“粒子形状の制御”は実現されていない。希土類磁石粒子を針状化出来れば、反磁界係数が低下し保磁力が向上する。球の場合は磁場でしか配向出来ないのに対し、押し出しなど磁場以外でも配向させることが可能となる。また、配向させプレス等で固定すると針状粒子の場合は回転できないため配向後の乱れが起きず角形性の良い磁石が作製できる。このように粒子形状を制御出来れば高性能（高最大エネルギー積）なボンド・焼結磁石の実現が期待できる。

2. 研究の目的

本研究では針状希土類合金磁石粉末を世界で初めて開発し、針状化による磁気特性への影響を明らかにし、高性能な磁石を実現することを第一の目的とする。そして、針状希土類磁石粒子と軟磁性粒子のコンポジット化を行うことで、異方性ナノコンポジット磁石実現の可能性を示すことを第二の目的としている。

3. 研究の方法

1) 低温還元拡散プロセス条件の開発

申請者は還元拡散法において熔融塩をいわば溶媒として適用することを新たに考え、還元拡散反応の低温化を検討してきた。針状粒子を合成するには新たに開発した低温での還元拡散反応について理解する必要がある。そこで鉄粒子、塩化サマリウム、LiCl もしくは LiCl-KCl 塩、カルシウムを用いて、従来 Ca の融点以上（約 850℃）以上でしかできなかった希土類合金粉末合成について、Ca 融点以下での反応温度による影響理解と作製した粉末について高輝度 XRD 分析と EBSD 分析による詳細解析を行った。

4. 研究成果

1) 低温還元拡散による単結晶 TbCu₇ 構造 Sm-Fe 粒子を実現

従来、還元拡散法では安定相しか生成しない（Th₂Zn₁₇ 構造 Sm₂Fe₁₇ 相、もしくは SmFe₃ 相）。これに対し、熔融塩を用いて還元拡散温度を低温化することで生成する結晶相が変化すること、特に LiCl 熔融塩を用いて 550-700℃で還元拡散を行った場合に準安定相である TbCu₇ 構造の Sm-Fe 粒子が生成することが明らかとなった（図 1）。

TbCu₇ 相は組成幅を有しており、特に SmFe₁₀ 程度の鉄濃度であれば、その窒化物である SmFe₁₀N_x は Nd-Fe-B を超える磁気特性となる可能性を有している。これまで TbCu₇ 構造 Sm-Fe-N は超急冷法やメカニカルアロウイング法などの非平衡プロセスでしか合成できず、等方性粉末しかないと高い残留磁化を実現できなかった。一方、Th₂Zn₁₇ 構造 Sm₂Fe₁₇N₃ 粉末合成において還元拡散法は異方性粉末を合成可能な手法として良く知られている。よって、低温還元拡散法であれば TbCu₇ 構造 Sm-Fe-N 異方性粉末が合成できる可能性が高い。そこで、作製した粉末について放射光を用いた高輝度 XRD 分析による鉄濃度の同定と EBSD 分析による粒子結晶構造について分析を行った。

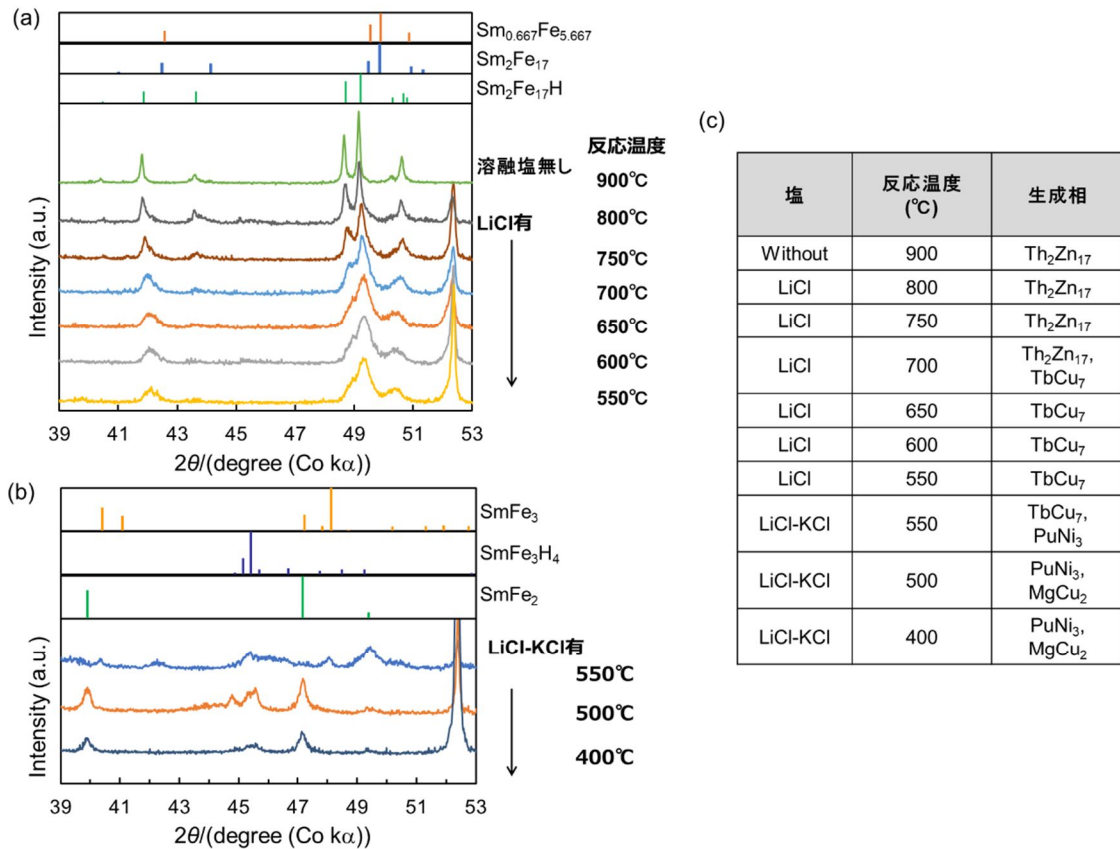


図 1 (a) LiCl 溶融塩もしくは(b)LiCl-KCl 共晶溶融塩を用いて各温度での還元拡散反応により生成した粉末の XRD パターン、及び(c) XRD パターンより同定した生成相

高輝度 XRD 分析において c/a はおよそ 0.8456 であり、 $\text{SmFe}_{8.5}$ 程度であることがわかった。高鉄濃度化には例えば Zr などの元素添加が有効であることが知られており、本低温還元拡散プロセスへの適用が必要であると考えられる。EBSD 分析結果を図 2 に示す。図 2(c) より、作製した粉末のほとんどは単結晶粒子であることがわかった。この粉末の窒化技術を開発することで、異方性 TbCu_7 構造 Sm-Fe-N 粉末が作製できることが示された。

当初予定していた針状 Sm-Fe 粒子ではないが、本研究により単結晶 TbCu_7 構造 $\text{SmFe}_{8.5}$ 粉末を初めて合成することができたことが明らかとなった。現在、窒化技術と高鉄濃度化技術の開発を行うとともに、針状粒子合成に向けての取り組みをおこなっている。

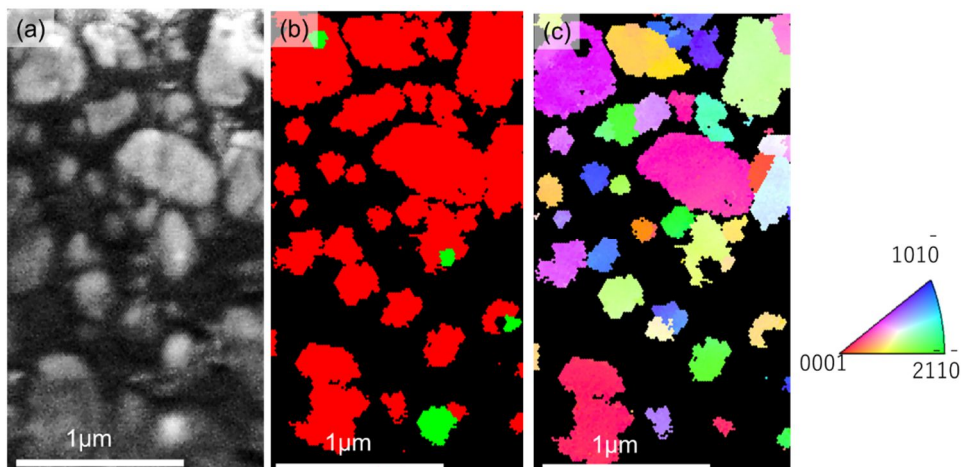


図 2 合成した粉末の TKD 分析結果 (a) Image quality マップ, (b) phase マッピング (赤: TbCu_7 構造 Sm-Fe, 緑: α -Fe), (c) TbCu_7 構造 Sm-Fe の結晶方位マップ

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Okada Shusuke, Takagi Kenta	4. 巻 -
2. 論文標題 Novel synthesis of single-crystalline TbCu7 type Sm-Fe powder by low-temperature reduction-diffusion process using molten salt	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Rare Earths	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jre.2021.05.017	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 —

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件／うち国際学会 0件）

1. 発表者名 岡田周祐、高木健太
2. 発表標題 低温還元拡散法によるTbCu7型Sm-Fe合金微粉末の合成
3. 学会等名 日本金属学会2020春期講演大会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 合金粒子の製造方法および合金粒子	発明者 岡田 周祐	権利者 産業技術総合研究所
産業財産権の種類、番号 特許、特願2018-135182	出願年 2018年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

—

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------