

平成22年3月31日現在

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2007 ～ 2009

課題番号：19360147

研究課題名（和文）高速成膜 PLD 法により作製した厚膜磁石の異方化と高性能・超小型モーターへの展開

研究課題名（英文）Anisotropic thick film magnets prepared by high-speed PLD method and their application to an advanced and small motor

研究代表者 中野 正基 (NAKANO MASAKI)

長崎大学・工学部・准教授

研究者番号：20274623

研究成果の概要（和文）：本研究では、添加物を利用した異方性ならびに等方性 Nd-Fe-B 系磁石膜の磁気特性の改善について検討した。加えて、小型デバイスへの応用についても検討した。以下に得られた結果の概要を示す。

(1) 異方性厚膜磁石

Ga 添加したターゲットをもとに垂直異方性 Nd-Fe-B 系磁石膜を PLD 法により作製し、その磁気特性ならびに結晶構造について検討した。その結果、Nd_{2.6}Fe₁₄B + Ga_{0.5 at.%} ターゲットを用いた際、最も優れた磁気特性が得られた。(Mr : 0.95 T、Hc : 876 kA/m、(BH)_{max} : 146 kJ/m³) Ga 添加した全ての試料において、垂直異方化に起因する Nd₂Fe₁₄B 相の (004)、(006)、(008) 面のピークが観察された。更に、(008) 面と (410) 面の反射強度比は Nd 含有量の増加に伴い大きくなり、垂直方向への配向性の向上が確認された。

(2) 等方性厚膜磁石

PLD 法により作製した等方性 Nd-Fe-B 系厚膜磁石の磁気特性の改善を目的とし、ターゲットへの他元素の添加ならびにパルス熱処理法と添加物を融合させる手法を用いた際の磁気特性ならびに結晶構造への影響を検討した。その結果、Nd_{2.6}Fe₁₄B 組成のターゲットを用い作製した試料において、Zr、Nb、Ga を添加することにより、無添加の試料の保磁力に比べ、100 ～ 300 kA/m 程度増加した。加えて、PA 法により作製した試料 (Nd_{2.6}Fe₁₄B 組成) の保磁力は、CA 法により作製したものに比べ、200 kA/m 程度増加した。特に Ga を添加した試料では、最大 1700 kA/m 程度の著しく高い値が得られた。

(3) 各磁石膜を利用したデバイス

上記試料を摩擦駆動型モーターやミリサイズモーターへの応用を検討した。

研究成果の概要（英文）：In the study, an improvement in magnetic properties of anisotropic and isotropic Nd-Fe-B film magnets was carried out by using additives. In addition, several applications comprising the films were investigated. The obtained results are as followed.

(1) Anisotropic Nd-Fe-B films

An obtained film prepared from the Nd_{2.4}Fe₁₄B + Ga_{0.5 at.%} target had the coercivity, remanence and (BH)_{max} values of approximately 850 kA/m, 0.95 T and 150 kJ/m³, respectively. These magnetic properties are superior compared with those for the anisotropic PLD-made Nd-Fe-B films without additives. We also confirmed that the intensities of a X-ray diffraction peaks corresponding to the c-planes such as (004), (006) and (008) of the film were stronger than those of the additive-free film.

(2) Isotropic film magnets

PLD-made isotropic Nd-Fe-B thick film magnets were prepared from targets with Zr, Nb and Ga, respectively. They were crystallized by two annealing methods of conventional annealing (CA) and pulse annealing (PA), respectively. In the case of using $\text{Nd}_{2.6}\text{Fe}_{14}\text{B}$ targets, 0.5 at.% Zr, Nb and Ga addition increased the coercivity of the film by approximately 100 ~ 300 kA/m compared with that of additive-free samples prepared by CA method. We also confirmed further increase in coercivity of the film by PA method and the obtained film prepared from a $\text{Nd}_{2.6}\text{Fe}_{14}\text{B} + \text{Ga}_{0.5 \text{ at.}\%}$ target had large coercivity of approximately 1700 kA/m.

(3) Applications

We applied the above-mentioned films to a friction-drive motor and a milli-size motor.

交付決定額

(金額単位：円)

| | 直接経費 | 間接経費 | 合計 |
|--------|------------|-----------|------------|
| 2007年度 | 10,700,000 | 3,210,000 | 13,910,000 |
| 2008年度 | 2,900,000 | 870,000 | 3,770,000 |
| 2009年度 | 1,000,000 | 300,000 | 1,300,000 |
| 年度 | | | |
| 年度 | | | |
| 総計 | 14,600,000 | 4,380,000 | 18,980,000 |

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子電気材料工学

キーワード：電気・電子材料

1. 研究開始当初の背景

ここ数年、スパッタリング法・エアロゾルデポジション法・めっき法などの成膜手法を用いた厚膜磁石の研究開発が国内外で盛んに進められている。これらの背景には、電子機器の小型軽量化に貢献できる「ある程度の体積を有する」小型磁石材料の早急な開発要求が起因している。本研究は、上記の「異方性Nd-Fe-B系厚膜磁石」の成果を発展させ、「体積 100 mm³級以下の高性能・超小型モータ」の開発に進展させるものである。

2. 研究の目的

本研究では Nd-Fe-B 系厚膜磁石の作製方法として、数 10 μm/h 程度の比較的高い成膜速度を得ることが可能な PLD 法を用い、異方性ならびに等方性厚膜磁石の磁気特性の向上を検討した。その際、添加物を利用した微細構造制御による観点より、Zr, Nb, Ga 等に着目し、磁気特性の評価ならびに結晶構造・微細構造の観察を通じ、その効果について検討した。

加えて、摩擦駆動型モータ等への応用も検討した。

3. 研究の方法

3-1 異方性厚膜磁石

ターゲットには、高周波溶解して作製した Nd-Fe-B系合金を用いた。表 1 に示すように、ターゲットとして $\text{Nd}_{2.4}\text{Fe}_{14}\text{B}$ 単体ターゲットに加え、Ga を微量添加した $\text{Nd}_x\text{Fe}_{14}\text{B} + \text{Ga}_{0.5 \text{ at.}\%}$ ($x = 2.0, 2.4, 2.6$) を用意した。成膜はターゲットに波長 355 nm の YAG レーザを照射し、ターゲット表面から Nd, Fe, B 等からなる原子や分子、イオンなどを解離放出させ、基板上に到達、堆積させた。基板加熱には、ターゲットと基板の空隙間に設けたヒータに電流を流すことにより発生するジュール熱を利用している。電流値を 5~25 A まで変化させた際、電流値 15A (基板温度 673K) 以下では結晶化せず、電流値 22A において最も高い保磁力ならびに異方性の向上が観察された。そこで、本実験では、電流値

22A (基板温度 873K) を利用した。約 7 T のパルス磁界を用いて着磁した後、VSM(最大印加磁界 2.5 T) を用いて磁気特性を測定した。上述の熱処理法により作製した全ての試料は垂直方向に異方化しており、本稿では垂直方向の磁気特性を中心に示す。その際、M-Hループは反磁界係数を 1 として補正した。表面状態、組成分析はSEM-EDXを用いて観察・測定し、結晶構造はX線回折を用いて同定した。膜厚はマイクロメータを利用して測定した。

3-2 等方性厚膜磁石

ターゲットには、高周波溶解して作製したNd-Fe-B合金を用いた。具体的には、Nd量の異なるNd_xFe₁₄B (x = 2.0, 2.6) に加え、他元素M (Zr, Nb, Ga) を微量添加したNd_xFe₁₄B + M_{0.5 at.%} (x = 2.0, 2.6) をターゲット組成とした。成膜はターゲットにYAGレーザー (λ = 355 nm) を照射し、Nd, Fe, B等の元素を解離放出させ、基板上に到達、堆積させることで行った。成膜直後の試料はアモルファスであったため、赤外線加熱炉 (定格出力 8 kW) を用いて、(1) 昇温速度: 400 °C/min、熱処理温度: 650 °C、保持時間: 0 min の熱処理法 (以下、Conventional annealing: CA法と呼ぶ)、(2) 極短時間の熱処理であるパルス熱処理法 (以下、Pulse annealing: PA法と呼ぶ) の 2 種類の熱処理法を用いて、Nd₂Fe₁₄B相を形成させた。なお、パルス熱処理法においては温度制御が困難であったため、メモリリレーによって熱処理時間を制御し熱処理した。磁気特性は約 7 T のパルス着磁後に、VSM(最大印加磁界 2.5 T) を用いて測定した。上述の熱処理法により作製した試料は異方化しておらず、等方性の磁気特性を示した。結晶構造はX線回折を用いて同定し、膜厚は磁気特性を利用して算出した。

4. 研究成果

4-1 異方性厚膜磁石

Ga添加のターゲットを用いて作製した試料の磁気特性ならびに結晶構造を検討した。用いた二つのターゲット組成はNd_{2.4}Fe₁₄Bならびに添加物Gaを微量に加えたNd_{2.4}Fe₁₄B + Ga_{0.5 at.%}である。各々のターゲットにより得られた約 20 μm厚の試料の減磁曲線を図 1 に示す。Gaを添加することにより、その保磁力は 100 kA/m程度増加し、600 kA/mを超える値を得られた。加えて、残留磁化値も 0.76 から 0.98 Tへ向上し、Ga添加はNd-Fe-B系厚膜磁石の磁気特性向上に有効であることが明らかとなった。この様子をX線回折による結晶構造観察により検討した結果を図 2 に示す。Ga添加の有無にかかわらず試料の回折パターンにおいて、Nd₂Fe₁₄B相の (004)、(006)、(008)面ならびに(105)面といった垂直異方化

に起因する結晶面からの反射強度が強く観察された。更に、Ga添加した試料において上述した垂直異方化に起因するピークの反射強度が無添加のものと比較して増加することが明らかとなった。以上の結果より、Ga添加が配向性の向上に有効であることが確認された。残留磁化ならびに保磁力の向上は、Ga添加の垂直方向への異方化に貢献する結晶粒の成長が促進されたためと考察される。加えて、保磁力向上の他の理由として、低融点であるGaがNd-Fe-B結晶粒 (Nd-Fe-B相を有する結晶粒) の粒界に比較的容易に拡散し、粒界表面のパーシベーション効果を利用した局所的な反磁界の抑制に基づく逆磁区サイトの発生の抑制ひいては磁化反転を抑える効果も推察される。

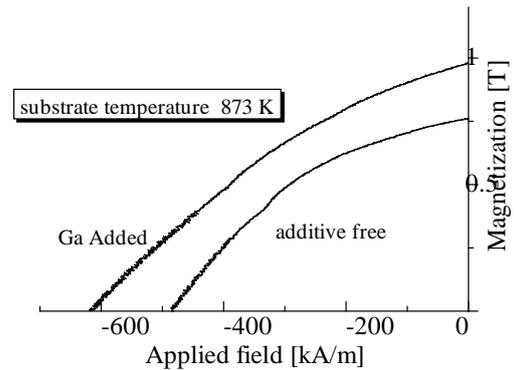


図 1 基板加熱法で作製した異方性 Nd-Fe-B 系磁石膜の減磁曲線

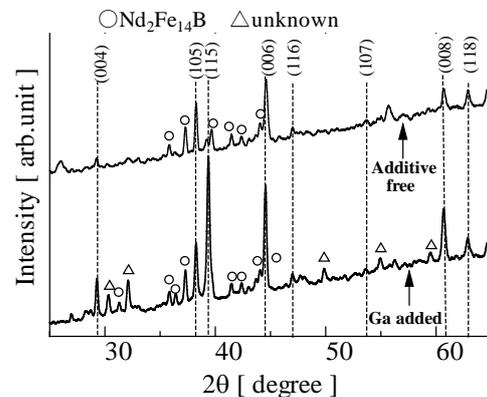


図 2 基板加熱法により作製したNd-Fe-B系磁石膜のX線回折図

ここでは、さらなる磁気特性向上を目的とし、Nd量の異なるGa添加ターゲットを用いた同様な実験を試みた。具体的には、ターゲットにGaを微量添加した 3 種類のNd_xFe₁₄B + Ga_{0.5 at.%} (x = 2.0, 2.4, 2.6) を用いて 873 K の基板温度のもと成膜した。作製した約 20 μm厚試料の減磁曲線を図 3 に示す。加えて、

図4に示すようにNd_{2.6}Fe₁₄B + Ga_{0.5}at.%の組成を有するターゲットを用いた際、垂直方向の残留磁化 0.95 T、保磁力 876 kA/m、(BH)_{max} : 146 kJ/m³といった、最も優れた磁気特性が得られた。

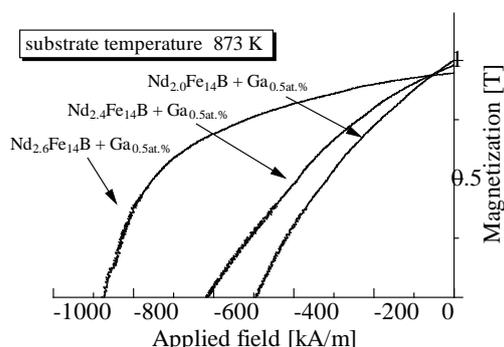


図3 Ga 添加した異方性 Nd-Fe-B 系磁石膜の減磁曲線

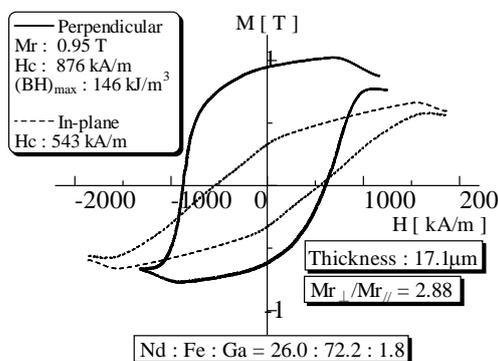


図4 Nd_{2.6}Fe₁₄B + Ga_{0.5}at.%ターゲットにより作製した試料の M-H ループ

4-2 等方性厚膜磁石

Nd_{2.6}Fe₁₄Bならびにその組成に添加物M (Zr, Nb, Ga)を微量加えたNd_{2.6}Fe₁₄B + M(0.5 at%)のターゲットを用い作製した試料に対し、CA法を施した試料の減磁曲線を図5に示す。試料の膜厚は20 ~ 30 μm程度である。無添加のターゲットを用い作製した試料に比べ、Zr, Nb, Gaを添加することにより、その保磁力は約100 ~ 300 kA/m増加した。保磁力増加に最も有効であった添加元素はGaであり、その試料の保磁力は1460 kA/m程度であった。現在のところ、添加物は保磁力増加のみに有効であり、残留磁化の向上には貢献しないこともわかった。

さらに、X線回折法により各試料の結晶構造を観察した結果を図6に示す。無添加の試料、添加物入りの試料の回折パターンにおい

て、Nd₂Fe₁₄B相のピークがほぼ同様に観測された。本測定においては、結晶粒の微細化に伴うピークの半値幅の広がりを観測することが困難であり、今後、添加物による保磁力向上のメカニズムの解明のためには、TEM等により微細構造の観察を行う必要がある。

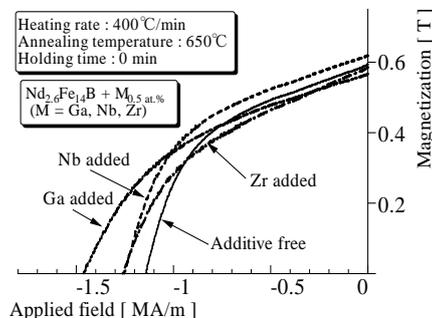


図5 CA法により作製したNd-Fe-B系厚膜磁石の減磁曲線

(ターゲット : Nd_{2.6}Fe₁₄B + M_{0.5}at.% (M = Zr, Nb, Ga))

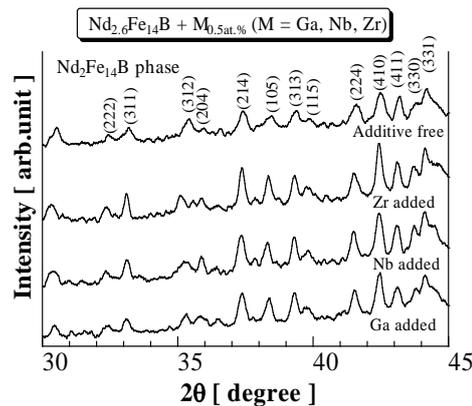


図6 CA法により作製したNd-Fe-B系厚膜磁石のX線回折図

上記の結果より、ターゲットへのZr, Nb, Gaの添加とパルス熱処理法を融合させる手法がNd-Fe-B系厚膜磁石の保磁力の増加に有効であり、Nd_{2.6}Fe₁₄B + M_{0.5}at.% (Zr, Nb, Ga)組成のターゲットを用いた際には、1400 kA/m以上の高い保磁力が得られることが明らかとなった。この結果は、ターゲットに含まれるNd量を減少させることにより、保磁力をミリサイズモータへの応用としての目標値である800 kA/m程度までの減少にとどめ、残留磁化ならびに(BH)_{max}を向上させる

手法として有効であると考えられる。

次に、ターゲットに含まれるNd量を減少させた化学両論組成である $\text{Nd}_{2.0}\text{Fe}_{14}\text{B}$ のターゲットに各元素 M (Zr, Nb, Ga) を 0.5 at.% ずつ添加し、上記と同様な実験を試みた。これらのターゲットを用い作製した試料の減磁曲線を図 7 に示す。なお、図 7 に掲載した試料は、熱処理時間：1.9 ~ 2.0 sec の条件下のPA法により作製したものである。無添加の試料においては、Nd量を化学両論組成まで減少させることにより、保磁力は 300 kA/m 程度まで低下した。Zr, Nb, Gaを添加した試料においては、残留磁化はやや減少するものの、保磁力は無添加の試料のものに比べ 150 ~ 300 kA/m 程度高い値を示し、 $(BH)_{\text{max}}$ 値は 60 kJ/m³以上の値が得られた。これらの結果より、ターゲットへのZr, Nb, Gaの添加は、ターゲットに含まれるNdを減少させた際にも保磁力向上に有効であり、結果的に $(BH)_{\text{max}}$ を向上させることが明らかとなった。現在のところ、本実験では添加物量を 0.5 at.%と固定しており、今後、最適な添加物量についても検討を進める予定である。

図 8 厚膜磁石を搭載したモータ

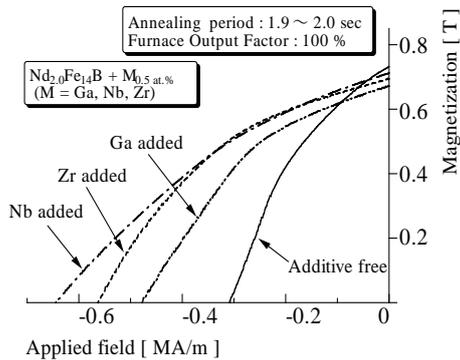
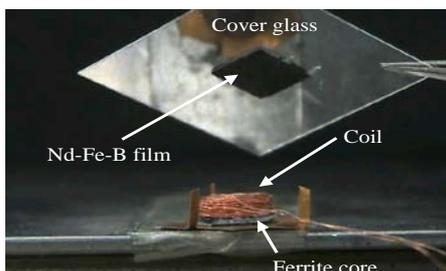


図 7 PA法により作製したNd-Fe-B系厚膜磁石の減磁曲線(ターゲット: $\text{Nd}_{2.0}\text{Fe}_{14}\text{B} + \text{M}_{0.5}\text{at.}\%$ (M = Zr, Nb, Ga))

4-3 小型デバイスへの応用

上記の異方性厚膜磁石を摩擦駆動型モータへ応用した結果、低速・高トルクのモータを実現できた。(図 8)



5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 9 件)

- ① M. Ishimaru, M. Itakura, N. Kuwano, S. Sato, M. Nakano, and H. Fukunaga, Microstructure of Anisotropic Nd-Fe-B Film Magnets Prepared by Pulsed Laser Deposition, 査読有, Materials Science Forum, vol. 561-565, 2007, 1131-1134.
- ② H. Fukunaga, H. Nakayama, M. Nakano, and T. Yanai, Magnetic Properties of Multi-Layered Nanocomposite Film-Magnets, 査読無, Proceedings of the 10th Joint Symposium of Nagasaki University and Cheju National University on Science and Technology, 2008, 11-14.
- ③ F. Yamashita, Y. Okada, K. Kawamura, H. Murakami, M. Ogushi, M. Nakano, and H. Fukunaga, Preparation of ring-shaped rare earth bonded magnets with continuously controlled anisotropy directions, 査読無, Proceedings 20th Workshop on Rare Earth Permanent Magnets and Applications, Creta Greece, 2008, 91-94.
- ④ M. Nakano, S. Tsutsumi, H. Takeda, T. Yanai, H. Fukunaga, F. Yamashita, Improvement in magnetic properties of anisotropic Nd-Fe-B film magnets, 査読無, Proceedings 20th Workshop on Rare Earth Permanent Magnets and Applications, Creta Greece, 2008, 231-232.
- ⑤ M. Nakano, H. Takeda, F. Yamashita, T. Yanai, and H. Fukunaga, Improvement in magnetic properties of PLD-made Nd-Fe-B thick film magnets, 査読有, IEEE Trans. Magn., vol. 44, No. 11, 2008, 4199-4201.
- ⑥ M. Nakano, S. Tsutsumi, T. Yanai, H. Fukunaga and F. Yamashita, PLD-fabricated anisotropic Nd-Fe-B thick films with Ga additive, 査読有, Journal of Applied Physics, vol. 105, No. 7, 2009, 07A739-1~07A739-3.
- ⑦ M. Nakano, K. Yamaguchi, T. Yanai, F. Yamashita, H. Fukunaga, Change in the direction of anisotropy in PLD-fabricated Sm-Co thick film magnets, 査読有, Journal of Applied Physics, vol. 105, No. 7, 2009, 07A729-1~07A729-3.
- ⑧ M. Nakano, S. Sato, T. Yanai, H. Fukunaga, and F. Yamashita, Anisotropic Nd-Fe-B thick film magnets prepared on

various substrates, 査読有, Journal of Physics: Conference Series, 2010, 082021-1~082021-4.

- ⑨ F. Yamashita, O. Yamada, S. Ohya, O. Kobayashi, M. Nakano, and H. Fukunaga, Preparation of ring-shaped composite bonded magnets with continuously controlled anisotropy distribution for internal space, Journal of Physics: Conference Series, 2010, 082027-1~082027-4.

[学会発表] (計 13 件)

- ① PLD-fabricated Nd-Fe-B thick films with additives, 52nd Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, 2007年11月9日(金), Tampa, Florida, USA.
- ② Nd-Fe-B 磁石膜の磁気特性改善に関する検討, 平成19年度粉体粉末冶金協会秋季大会, 2007年11月20日(火), 京都工芸繊維大学(京都).
- ③ 異方性厚膜磁石の磁気特性向上に関する検討, 平成20年電気学会全国大会, 2008年3月19日(水), 福岡工業大学(福岡).
- ④ Nd-Fe-B 系厚膜磁石の保磁力に及ぼす添加物の影響, 日本金属学会2008年春季大会, 2008年3月27日(木), 武蔵工業大学(東京).
- ⑤ Anisotropic Nd-Fe-B thick film magnets with Ga additive, Moscow International Symposium on Magnetism, 2008年6月21日, モスクワ(ロシア).
- ⑥ Improvement in magnetic properties of anisotropic Nd-Fe-B film magnets, 20th Workshop on Rare Earth Permanent Magnets, 2008年9月10日, クノソス(ギリシャ).
- ⑦ Anisotropic Nd-Fe-B-(Ga) Thick Film Magnets, The IUMRS International Conference in Asia 2008, 2008年12月11日, 名古屋国際会議場(愛知).
- ⑧ Dy コーティングを施した Nd-Fe-B 系厚膜磁石, 平成21年電気学会全国大会, 2009年3月19日, 北海道大学(北海道).
- ⑨ Anisotropic Nd-Fe-B thick film magnets prepared on various substrates, ICM (International Conference on Magnetism), 平成21年7月27日, カールスルーエ(ドイツ).
- ⑩ 添加物を施した Nd-Fe-B 系磁性膜の磁気特性, 電気学会マグネティクス研究会, 2009年8月6日, 宇都宮大学(栃木).

- ⑪ Ga 添加 Nd-Fe-B 系異方性厚膜磁石, 日本磁気学会第 33 回学術講演会, 2009 年 9 月 12 日, 長崎大学 (長崎)
- ⑫ Cu 添加を施した等方性 Nd-Fe-B 系厚膜磁石の磁気特性, 日本磁気学会第 33 回学術講演会, 2009 年 9 月 12 日, 長崎大学 (長崎)
- ⑬ PLD 法を用い作製した Nd-Fe-B 系等方性磁石膜の磁気特性と微細構造, 平成 22 年電気学会全国大会, 2010 年 3 月 17 日, 明治大学 (東京) .

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 1 件)

名称 : Nd-Fe-B 系磁石, 及びその製造方法
発明者 : 中野正基、福永博俊
権利者 : 長崎大学
種類 : 特許
番号 : 特願 2009-152023
出願年月日 : 2009 年 6 月 26 日
国内外の別 : 国内

○取得状況 (計 0 件)

名称 :
発明者 :
権利者 :
種類 :
番号 :
取得年月日 :
国内外の別 :

[その他]

ホームページ等

<http://www.eee.nagasaki-u.ac.jp/~magnet/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中野正基 (なかの まさき)

研究者番号 : 20274623

(2) 研究分担者

福永博俊 (ふくなが ひろとし)

研究者番号 : 10136533

(3) 連携研究者

()

研究者番号 :