

研究種目：若手研究（スタートアップ）

研究期間：2008～2009

課題番号：20860008

研究課題名（和文） 巨大磁気モーメント窒化鉄ナノマグネットの創製

研究課題名（英文） Creation of Fe-N Nano-Magnet with Giant Magnetic Moment

研究代表者

緒方 安伸（OGATA YASUNOBU）

東北大学・大学院工学研究科・教育研究支援者

研究者番号：40509717

研究成果の概要（和文）：窒化鉄（ Fe_{16}N_2 ）を主相としたマグネットの創製を最終目的として、直接合成方式および間接合成方式により窒化鉄磁性粒子の合成技術の検討を行った。直接合成方式では、鉄カルボニルをアンモニアガス存在下で熱分解させるプロセスを検討した。その結果、平均粒径約10nmの Fe_3N 相からなるナノ粒子、および部分的ではあるが Fe_4N 相からなるナノ粒子を生成させることに成功した。間接合成方式では、酸化鉄（ Fe_2O_3 ）粒子を原料粒子として用い、水素ガスで還元を行った後、アンモニアガス中で窒化するプロセスを検討した。その結果、 Fe_{16}N_2 相が生成する条件を見出すことができた。

研究成果の概要（英文）：The fabrication process of Fe-N magnetic particles was investigated in both direct and indirect synthesis method for the purpose of realizing Fe-N compound (Fe_{16}N_2) based permanent magnets. In the direct synthesis method, Fe_3N and Fe_4N nano particles whose average particle size is about 10 nm were successfully synthesized by the decomposition of $\text{Fe}(\text{CO})_5$ in NH_3 atmosphere. In the indirect method, the condition in which Fe_{16}N_2 phase can be formed was found out in the process that Fe_2O_3 powder is reduced in H_2 , and successively exposed in NH_3 .

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,330,000	399,000	1,729,000
2009年度	1,200,000	360,000	1,560,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,530,000	759,000	3,289,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電子・電気材料工学

キーワード：磁性ナノ粒子、窒化鉄、永久磁石

1. 研究開始当初の背景

限られた資源環境を駆使し、低環境負荷および二酸化炭素排出の大幅抑制を可能とす

る極低消費電力型電子デバイスや電気機器が切望されている。このような高機能電子デバイス・電気機器においてナノサイズの磁石

(ナノマグネット)で構成されるバルク材料が必要不可欠となっている。例えば、永久磁石型の超小型高出力モータでは結晶粒径が数十～数百 nm で、粒子間の磁氣的相互作用を断ち切った微細ナノ組織に制御し、かつ数 cm 程度の大きさを有するバルク状のナノマグネット集合体が必要不可欠となる。また将来に渡るモータの更なる小型化および高出力化を実現するために、高飽和磁化を有するナノマグネット材料の開発が最大の鍵となる。

2. 研究の目的

本研究では、巨大飽和磁化の可能性を秘めた窒化鉄に着目した。特に、 Fe_{16}N_2 相は、準安定相であるものの 10^7erg/cm^3 の大きな結晶磁気異方性を示し、かつ 2.4T の飽和磁化を有する。このような窒化鉄を永久磁石として用いた場合、その永久磁石特性の理論値は、120MGOe を越え、現状の Nd 系希土類合金磁石の場合と比べ数倍の向上が期待される。本研究では、ナノマグネットを用いたデバイス・電気機器特性の革新的向上を目指した超高性能新規永久磁石材料の実現を念頭に、窒化鉄ナノマグネットの合成技術の確立を目的とした。

3. 研究の方法

(1) 概要

液相あるいは気相より窒化鉄粒子を直接的に合成する直接合成方式、および原材料となる前駆粒子を作製後、固相-気相反応によって粒子を窒化する間接合成方式の 2 方式により検討を行った。

(2) 直接合成方式

前駆体である鉄カルボニルをアンモニアガス存在下で熱分解させるプロセスを検討した。さらに Fe および N を含む有機金属錯体を前駆体とし、これを熱分解することによる直接合成方法も試みた。

(3) 間接合成方式

種々の粒径および粒子形態を有する酸化鉄 (Fe_2O_3 、および Fe_3O_4) 粒子を原料粒子として用い、水素ガスで還元を行った後、引き続きアンモニアガスに曝し反応温度と反応時間を系統的に変化させ窒化過程を検討した。

(4) 評価

以上の直接合成ならびに間接合成で得られた窒化鉄ナノ粒子に対し、TEM・XRD 等の各種構造評価、ならびに VSM・SQUID・メスバウア分光等による磁気特性評価を行った。

4. 研究成果

(1) 直接合成方式

鉄カルボニル $\text{Fe}(\text{CO})_5$ をアンモニアガ

ス NH_3 存在下で熱分解させるプロセスにおいて、分解温度・時間およびアンモニアガス供給方法などのプロセスパラメータを系統的に変化させ、電子顕微鏡を用いた構造評価ならびに磁気特性評価を詳細に検討した。具体的な検討条件の範囲は、分解温度については $140\sim 200^\circ\text{C}$ 、分解時間については 1～6 時間である。また供給方法については、アンモニアガスを溶媒中でバブリングする方法や、気化させた鉄カルボニルとアンモニアの混合ガスを溶媒中に注入する方式等を検討した。

その結果、図 1 および図 2 に示すように、平均粒径約 10nm の Fe_3N 相からなるナノ粒子を生成させることに成功した。なお図 2 では、 Fe_3N の回折リングの他にマグネタイト Fe_3O_4 に対応する回折リングも観察されるが、これは Fe_3N 粒子表面に形成された酸化層によるものと考えられる。

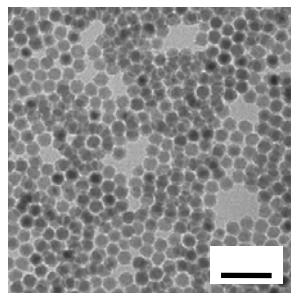


図 1. Fe_3N 粒子の TEM 観察結果

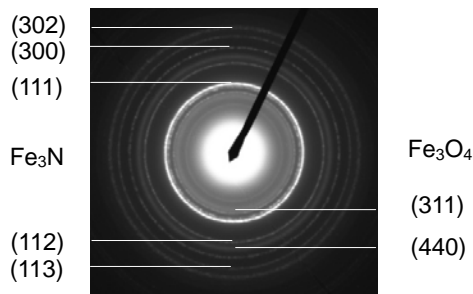


図 2. Fe_3N 粒子の電子線回折結果

さらに、アンモニアガス分圧を低下させることにより、図3および図4に示すように Fe_4N 相が生成しているナノ粒子を得ることができた。ただし、図4に示すように、 Fe_4N に対応する回折リングの他に、 Fe の回折リングも同時に得られており、 Fe_4N の単相状態にはなっていない。 Fe_4N 単相からなるナノ粒子を得るためには、更なる検討が必要である。

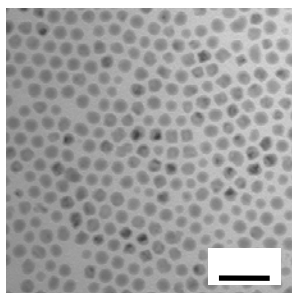


図3. Fe_4N 粒子のTEM観察結果

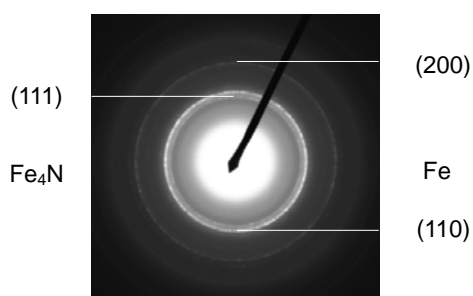


図4. Fe_4N 粒子の電子線回折結果

以上記した鉄カルボニル $\text{Fe}(\text{CO})_5$ をアンモニアガス NH_3 存在下で熱分解させるプロセスの他に、 Fe および N を含む有機金属錯体を前駆体とし、これを熱分解することにより直接 Fe-N 粒子を合成する方法も試みている。現在は、生成した超微粒子の評価手法の検討を継続的に行っている。

(2) 間接合成方式

種々の粒径および粒子形態を有する酸化鉄 (Fe_2O_3) 粒子を原料粒子として用い、水素ガスで還元を行った後、引き続

きアンモニアガスに曝し窒化させた。窒化時の反応温度、反応時間、およびアンモニア濃度等を系統的に変化させ窒化過程を検討した。その結果、 $120\sim 180^\circ\text{C}$ の温度範囲において長時間窒化することにより、 Fe_{16}N_2 相が生成することを確認した。得られた粒子の電子線回折パターンを図5に示す (Fe_{16}N_2 相には規則相と不規則相の2種類があるが、図5では不規則相であるとして回折リングの指数付けを行っている)。

なお、 Fe_{16}N_2 相は非平衡相であるため、許容される生成条件範囲が狭く、 Fe や Fe_4N 相、さらには Fe_3N 相が同時に生成する傾向が認められる。このため、現在は Fe_{16}N_2 相の生成率の向上に注力している。また、併せて飽和磁化、磁気異方性等の磁気特性評価を行っている。

(3) いずれの方式においても、単相化方法の確立が課題となっており、今後はこの解決に重点的に取り組んでいく予定であり、最終目標である高飽和磁化を有するナノマグネット材料の開発に結び付けていきたい。

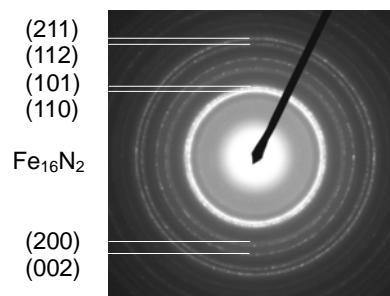


図5. Fe_{16}N_2 粒子の電子線回折結果

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)

特に無し

6. 研究組織

(1) 研究代表者

緒方 安伸 (OGATA YASUNOBU)
東北大学・大学院工学研究科
・教育研究支援者

研究者番号：40509717

(2) 研究分担者

無し

(3) 連携研究者

無し