

高エネルギー密度下で成膜した Nd-Fe-B 系磁石膜 の諸特性とターゲット組成の関係

内田 和孝*, 近藤 秀俊, 山下 昂洋, 柳井 武志, 中野 正基, 福永 博俊 (長崎大学)

1. はじめに

等方性磁石膜の磁気特性向上に対し、保磁力に比べ、残留磁気分極や $(BH)_{\max}$ を優先した際には、ソフト相とハード相を混在させたナノコンポジット磁石膜が一つの有望な材料となり、将来的に Nd-Fe-B 系ナノコンポジット磁石膜の小型デバイスへの応用^{[1][2]}が期待される。そのような状況下、PLD 法による成膜プロセスにおいて、フォーカルレンズに規定された焦点距離を実験において「レンズとターゲット表面の距離」として成膜した際は、レーザのスポット径より見積もったエネルギー密度が 10 J/cm^2 以上の成膜条件となり、例えば $\text{Nd}_{2.6}\text{Fe}_{14}\text{B}$ といった化学量論組成に対し Nd-rich なターゲットを使用した際にも、ターゲット正面に設置した基板には成膜後ならびに熱処理後において化学量論組成に対し Nd-poor なナノコンポジット組成となり、更には熱処理条件を制御する事で $\alpha\text{-Fe}$ ならびに $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 粒子の各粒径を 10nm 程度に抑制した等方性 Nd-Fe-B/ $\alpha\text{-Fe}$ ナノコンポジット磁石膜が得られることを報告した。現状でこの試料の $(BH)_{\max}$ は、ばらつきはあるものの $80\sim 120 \text{ kJ/m}^3$ 程度の範囲を示しているものの、超急冷法による Nd-Fe-B と $\alpha\text{-Fe}$ より構成される等方性ナノコンポジット材料の最大の $(BH)_{\max}$ である $150\sim 180 \text{ kJ/m}^3$ ^[3]に比べ、劣っており更なる向上が期待される。

本研究では、永久磁石材料の設計指針となる「合金組成と微細構造」を鑑み、上記の高エネルギー密度を利用する手法において化学量論組成に対し幅広く Nd 含有量を変化させた合金ターゲットを用い作製した磁石膜の組成、磁気特性ならびに結晶構造等を評価・観察し、磁気特性の向上とターゲット組成の関係について検討した。

2. 実験方法

真空度 $2\sim 6\times 10^{-5} \text{ Pa}$ のチャンバー内で約 6.5 rpm で回転させた 8 種類の $\text{Nd}_x\text{Fe}_{14}\text{B}$ ($x=1.8, 2.0, 2.2, 2.4, 2.6, 2.8, 3.2, 3.5$) 合金ターゲットに、波長 355nm の Nd:YAG レーザを照射し、Nd-Fe-B 系磁石膜を作製した。具体的にはターゲットと Ta 基板間の距離を $10\text{-}12 \text{ mm}$ とし、エネルギー密度を 10 J/cm^2 程度、成膜時間は $30\text{-}60 \text{ min}$ の条件を用いた。成膜後のほとんどの試料は $\alpha\text{-Fe}$ 結晶相とアモルファス相が混在した組織を有するため、結晶粒の微細化に有効であるパルス熱処理(以下 Pulse annealing: PA 法と呼ぶ)を用い、アモルファス相を結晶化させた。具体的な条件として $2\sim 6\times 10^{-4} \text{ Pa}$ の高真空中に試料を設置し、定格出力 8 kW の赤外線出力により $1.8\sim 2.0 \text{ s}$ 程度の著しく短い時間により熱処理を施した。その後最大印加磁界 2.5 T の下、VSM で磁気特性を測定した。組成分析には SEM-EDX を用いて Nd と Fe の含有量を測定した。

3. 実験結果ならびに考察

X 線回折による成膜直後の試料の結晶構造を観察したところ、いずれのターゲットを用いた際にも、すなわち $\text{Nd}_{3.5}\text{Fe}_{14}\text{B}$ といった Nd 含有量を著しく増加させたターゲットを用いた際にも、 $\alpha\text{-Fe}$ 相のピークが確認され本実験の Nd 含有量の範囲では成膜直後に、 $\alpha\text{-Fe}$ 相が析出する既報と同様な成膜過程であることが確認された。図 1 には試料の Nd 含有量と $(BH)_{\max}$ の関係を示した。 $\text{Nd}_x\text{Fe}_{14}\text{B}$ ($X=2.8$ 以上)のターゲットを用いて作製した試料においては、それ以下の Nd 含有量のターゲットより作製した磁石膜に比べ、ドロップレットの増加がみられ表面の平滑性が損なわれると共に、残留磁気分極ならびに $(BH)_{\max}$ の低下がみられた。加えて、 $\text{Nd}_x\text{Fe}_{14}\text{B}$ ($X=2.2$ 以下)の Nd-poor なターゲットを用いた際には試料の保磁力が 300 kA/m を下回り、それに伴い $(BH)_{\max}$ の値も低い値を示した。上記の 2 つの範囲の Nd 含有量をもつターゲットを用いた際、ハード相とソフト相のいずれかの割合が大きくなり、 $(BH)_{\max}$ の低下が生じたものと考えられる。高エネルギー密度成膜法において $\text{Nd}_x\text{Fe}_{14}\text{B}$ ($X=2.4, 2.6$) ターゲットを用いた際、すなわち試料の Nd 含有量が $10\sim 12 \text{ at.}\%$ 程度の範囲において最も優れた磁気特性を得られることが明らかとなった。加えて、 $\text{Nd}_{2.4}\text{Fe}_{14}\text{B}$ ターゲットを用い作製した試料では成膜直後に析出した $\alpha\text{-Fe}$ が極短時間の熱処理過程で結晶粒の成長を抑制され、微細な $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 結晶粒と $\alpha\text{-Fe}$ 結晶粒の分散型のナノコンポジット磁石膜となり、優れた磁気特性が得られたものと考えられる。

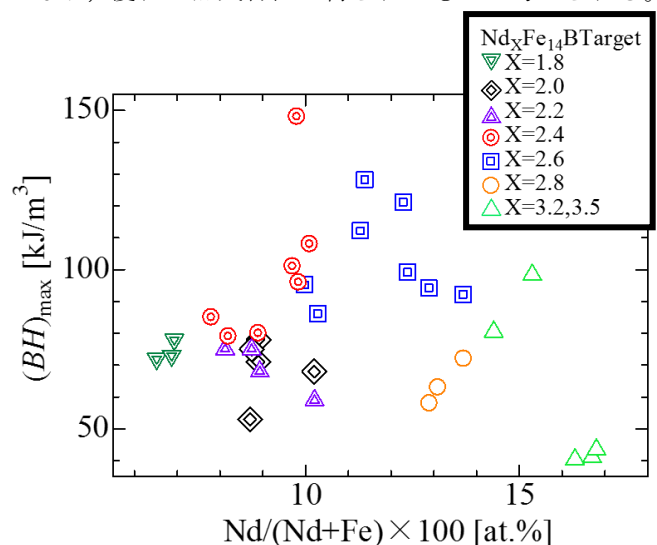


図 1 $(BH)_{\max}$ の Nd 含有量依存性

参考文献

- Y. Zhang *et al.*, *Acta Materialia*, 60, 3783-3788 (2012).
- C. Zhi *et al.*, *International. J. Automation Technplogy*, 7, 196-204(2013)
- A. Inoue. *et.al.* *Mater. Trans., JIM*, vol.36, no. 7, pp. 962-971(1995).