

プラズマ溶射プロセスによる磁性薄膜材料の開発

報告者 大学院総合理工学研究科 東大阪モノづくり専攻 教授 沖 幸男
共同研究者 総合理工学研究科 メカニクス系工学専攻 M1 遠藤寛之
日立金属株式会社 上原 稔

1. 背景

近年、電子機器の小型集積化が進み、内蔵される HDD 等に利用される希土類磁石にも実用的かつ小型な薄膜磁石の開発が望まれている。現在の小型電子機器類で主に使用される希土類磁石は焼結で作られているが、薄膜にするのが難しい上、必要なサイズに加工後に貼り付けるという手間がある。しかし、減圧プラズマ溶射プロセスを用いて、必要な場所に直接溶射加工を行えば貼り付ける生産過程が省け、また、磁石のさらなる薄型化・小型化が可能である。

2. 研究目的

RF プラズマ溶射を用いて基材に対して垂直配向した厚膜を作製することを目的とする。ネオジム系合金は非常に酸化しやすい。また、優れた硬磁気特性を有する正方晶 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ は凝固容易方向と磁化容易方向が同じ (C 軸) であり、これらの粒子を微細化、高い結晶配向性させることで、最も高い磁気エネルギー積を得ることができる。

本実験使用した RF プラズマ溶射装置は制御雰囲気下で成膜が行われることと、粉末全体を完全溶融できることを特徴とする溶射装置である。結晶配向させるために基材温度を制御して溶射を行なった。実験は、原料粉末を完全溶融できる条件の検索、皮膜が配向する条件の検索、皮膜全てが配向凝固した皮膜の作製の順序で行なった。

3. 研究組織

近畿大学工学部機械工学科材料物性研究室と、日立金属株式会社との共同研究であり、日立金属が原料粉末の開発、製造を担当、近畿大学が皮膜作製条件の最適化、皮膜作製、組織解析を担当した。

4. 研究方法

4-1. 試供材料

本研究では、平均粒径 $24\ \mu\text{m}$ のネオジム系合金を膜原料粉末として使用した。皮膜形成は、水冷試料台上の Ti 基材 ($50\times 20\times 3\text{ mm}$) に対して行なった。

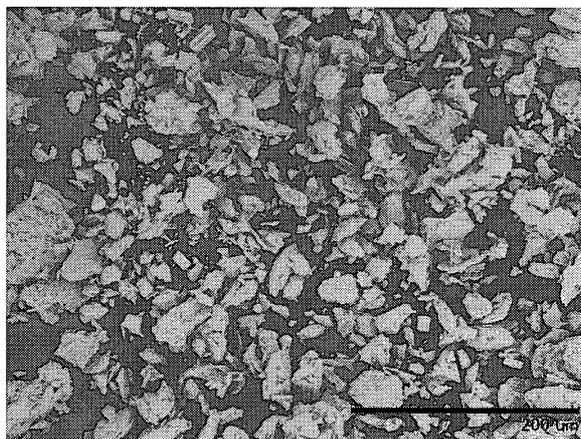


図 1. 原料粉末の形態

4-2. 実験方法、および結果

4-2-1. 原料粉末を完全溶融できるプラズマ発生条件の検索

本実験で用いた RF プラズマ溶射装置の概略図を図 2. に示した。RF プラズマ溶射の特徴として、原料粉末を完全溶融することが可能であることと、溶射粒子の速度が遅いことがあげられる。

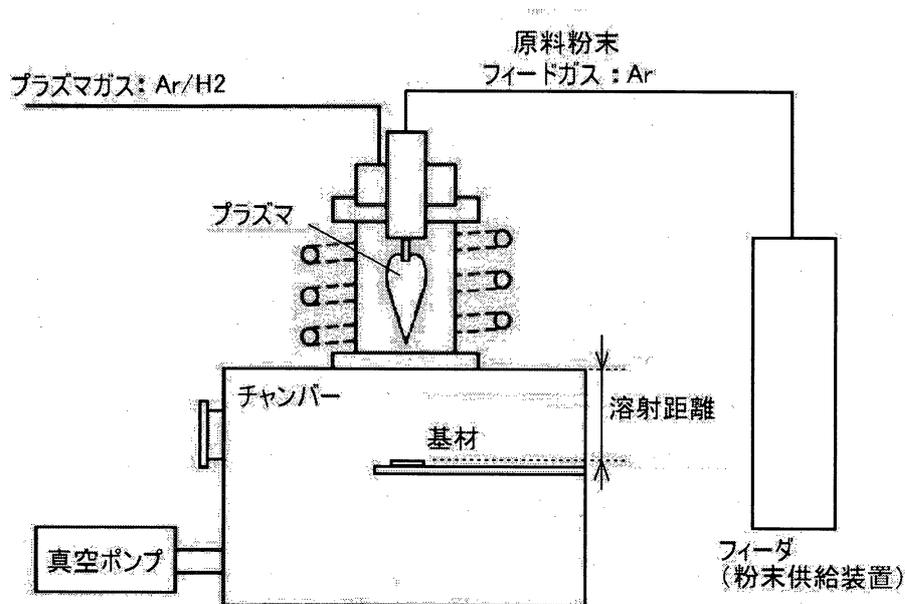


図 2. RF プラズマ溶射装置概略図

高い結晶配向性をもった皮膜を作製するためには、原料全てが溶融した状態で基材に衝突する必要がある。そこで、原料を最も溶融できるプラズマ条件を検索するために、いろいろな条件でプラズマを発生、被加熱体（黒鉛）を加熱、その温度を測定し、プラズマの発生条件によるプラズマ温度すなわち原料粉末の溶融能力を調べた。その結果、7.5 kV では入力電圧の増加と共に黒鉛温度は上昇するが、それ以降は入力電圧を増加させても原料粉末溶融能力（黒鉛温度）は向上せずむしろ低下する。これは、H₂ ガスの過剰添加によりプラズマが冷却されたためと思われる。このことより、入力電圧 7.5 kV において最も原料粉末を溶融できることがわかった。

4-2-1. 皮膜が配向する条件の検索

高い結晶配向性をもった皮膜を作製するためには、完全溶融した溶滴が適当な温度の基材に衝突し、一方向凝固を起こす必要がある。そこで、最も配向した組織が形成される基材温度を検索した。(図 3.)

なお、皮膜作成時の溶射条件は、投入電力 33 kW、プラズマガス流量 Ar : 52l/min、H₂ : 1.0l/min 未満、溶射中圧力 57 kPa、粉末供給量は 0.5~1.5 g/min である。

配向指数 I は、XRD により計測した (006) 面、(105) 面の回折強度より

$$I = \frac{I_{(006)}}{I_{(105)}} \times 100$$

として求めた。

また、Nd₂Fe₁₄B の無配向の状態での配向指数は 15、スパッタにより作製された、焼結 Nd-Fe-B 磁石に比肩する磁気特性をもつ薄膜の配向指数は 65 である。

基材温度 1050 K において最も配向し、1000~1100 K で高い配向が得られることがわかった。これより、溶射中の基材温度が 1000~1100 K であれば、全体が配向した皮膜が得られると考えた。

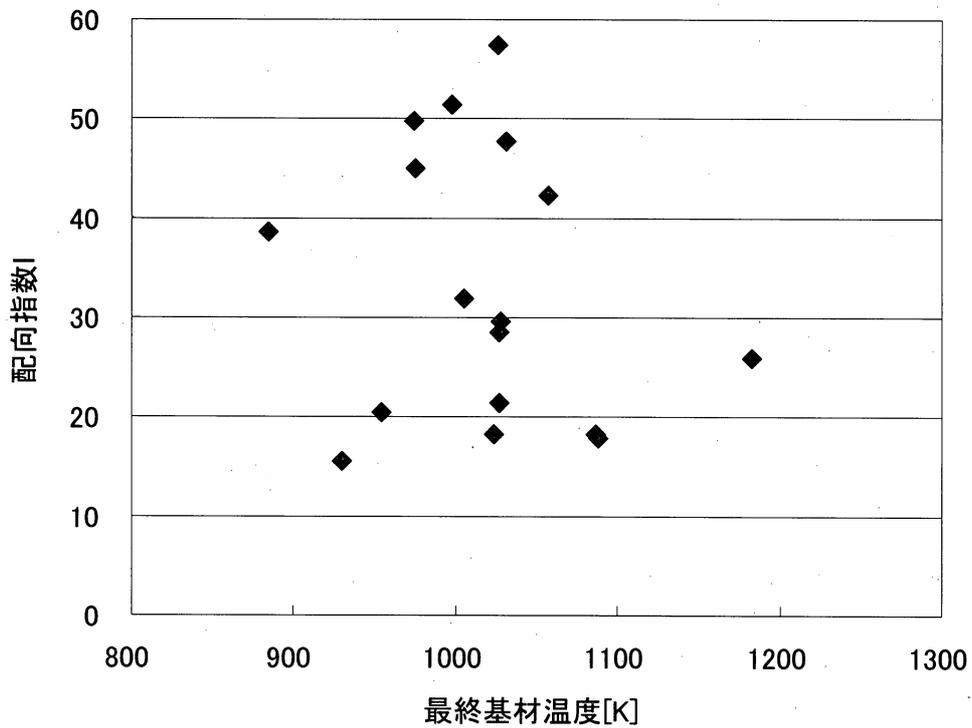


図 3. 配向指数に及ぼす最終基材温度の影響

4-2-1. 皮膜全てが配向凝固した皮膜の作製

皮膜全体を配向したものにするためには、溶射中の基材温度を 1000~1100 K の間に保持する必要がある。前節の配向に及ぼす基材温度を調べた実験では、溶射中に基材の温度が変化していた。ここでは、基材の冷却速度と溶射距離（プラズマトーチから基材までの距離）を調整、基材をプラズマで予熱した後に、粉末を供給、溶射を行うことで、溶射中の基材の温度が 1000~1100 K の間で、かつ、一定である皮膜を作製した。図 4. に前項と本項の溶射時の基材温度履歴を示す。本項の溶射は温度一定で行なわれたことがわかる。

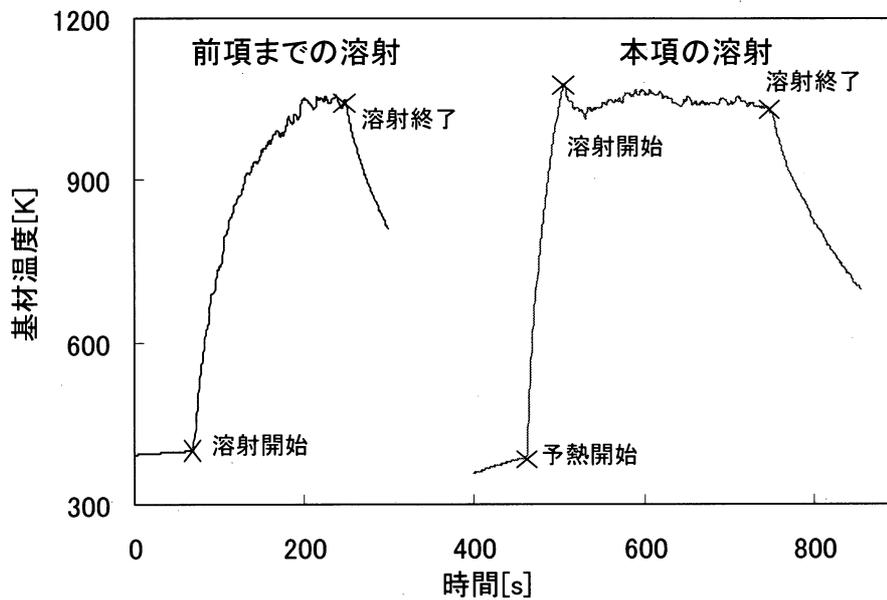


図 4. 溶射方式の違いによる基材温度履歴の差

次に、基材温度一定条件で作製した皮膜の XRD 結果を図 5. に示す。

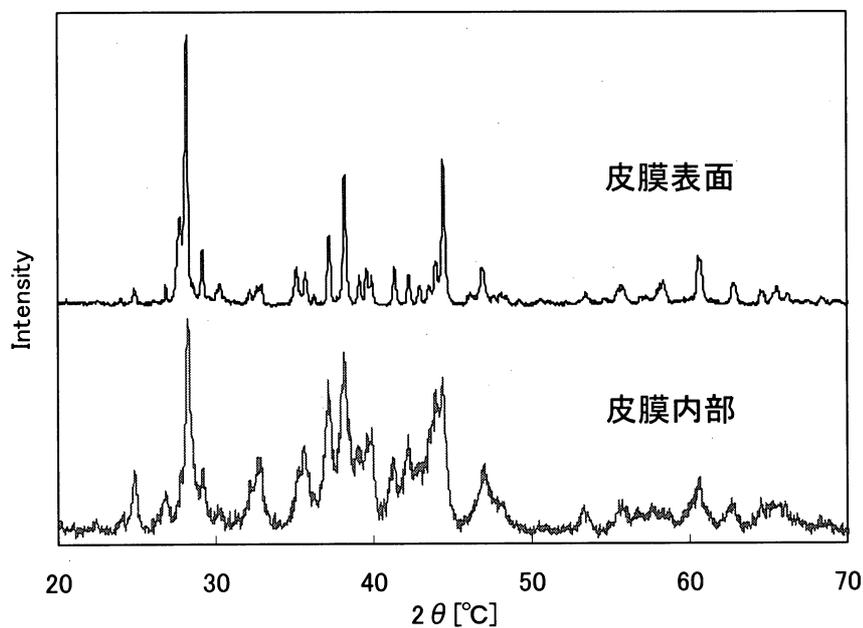


図 5. 皮膜表面と内部の組織の違い

XRD 図形より皮膜表面においては、結晶性配向が高いが、皮膜内部は、表面に比べブロードで結晶性が悪いことがわかる。これより、皮膜作製時の基材温度を一定にするだけで

は、表面と内部を同じ組織にならないことがわかった。しかし、なぜこのような大きな違いが生じるのかは現時点では明らかではない。

5. まとめ

以上検討してきた結果から、次のことが明らかになった；

- 1) 7.5 kV では入力電圧の増加と共に原料粉末溶融能力（黒鉛温度）は上昇するが、それ以降は入力電圧を増加させても原料粉末溶融能力（黒鉛温度）は増加せず減少することがわかった。これは、 H_2 ガスの過剰添加によりプラズマが冷却されたためと思われる。
- 2) 基材温度 1050 K において最も配向性が高く、1000～1100 K の温度範囲で高い配向が得られることがわかった。これは、基材温度が低すぎると熔融粒子がアモルファス化しやすくなり、高すぎると熔融粒子中の温度勾配が小さく、一方向凝固が起こりにくくなるためと思われる。
- 3) 皮膜作製時の基材温度を一定にするだけでは、表面と内部が同じ組織にならないことが明らかになった。

6. 今後の展開

皮膜作製時の基材温度を一定にするだけでは、表面と内部を同じ組織にならない原因を解明し、皮膜の全領域にわたって配向凝固した皮膜を作製する。