

M 元素置換型ゲーサイトを出発原料とした還元窒化プロセスによる α'' -(Fe, M)₁₆N₂ ナノ粒子 (M= Co, Al) の作製

○ 飛世 正博, 齊藤 伸 (東北大学)

Synthesis of α'' -(Fe, M)₁₆N₂ nanoparticles obtained by hydrogen reduction and subsequent nitrogenation starting from α -(Fe, M)OOH (M= Al, Co)

Masahiro Tobise, Shin Saito (Tohoku University)

はじめに α'' -Fe₁₆N₂ は高い飽和磁化 1680 emu/cm³ と一軸結晶磁気異方性エネルギー 9.6 × 10⁶ erg/cm³ を示すことから希土類フリーギャップ磁石材料としての可能性を有している¹⁾。講演者らは水酸化鉄等を出発原料として還元窒化を行うことにより α'' -Fe₁₆N₂ 粒子を合成するプロセスにおいて, α'' -Fe₁₆N₂ 相の生成率を高めることにより, より高い結晶磁気異方性の発現を目指して原料組成やプロセス条件を変え, α'' -Fe₁₆N₂ 粒子およびその集合体の形態と磁気特性との関係について一連の研究を行っている^{2), 3)}。今回は Fe の一部を Co と Al で複合置換した α'' -(Fe, Co, Al)₁₆N₂ ナノ粒子の合成を検討した。

実験方法 出発原料には単独置換した α -(Fe_{1-x}M_x)OOH ナノ粒子 (M=Co, Al, x=0, 0.02, 0.05) および複合置換した α -(Fe_{0.95}Co_{0.02}Al_{0.03})OOH ナノ粒子を用いた。これらを 300~500 °C で 4 h 水素中還元し, 引き続き 150~180 °C で 5 h アンモニア中窒化を行った。生成相は X 線回折, 磁気特性は VSM (最大印加磁場: 15 kOe) で評価した。

実験結果 Fig. 1 に α -FeOOH, α -(Fe_{0.98}Co_{0.02})OOH, α -(Fe_{0.95}Al_{0.05})OOH, α -(Fe_{0.95}Co_{0.02}Al_{0.03})OOH を出発原料として還元窒化処理を行った後のナノ粒子集合体の磁化 M_{15k} , 保磁力 H_c を, 還元温度 T_r および窒化温度 T_n に対してプロットした。また α'' -(Fe, M)₁₆N₂ 相が生成した領域を示した。Co: 0.02 置換の場合, α'' 相が生成したのは T_r : 340 °C, T_n : 170 °C のときのみであった。このとき磁化 M_{15k} は 184 emu/g で置換なしの場合と同等であったが H_c は低下した。Co 量を増加し 0.05 とした場合, α'' 相は生成しなかった。一方 Al: 0.05 の場合は T_r : 400~500 °C, T_n : 150~170 °C の広い範囲にわたって α'' 相が生成した。このときの M_{15k} は 137~173 emu/g, H_c は 1180~1480 Oe を示した。Co 置換系は高い磁化が得られるものの生成条件は限られている。Al 置換系は生成条件の範囲が広く高い H_c が得られるが磁化が低い。そこで Co: 0.02 と Al: 0.03 の複合置換系を検討した。この系では T_r : 400~500 °C, T_n : 160~170 °C の範囲にわたって α'' 相が生成し M_{15k} は 150~175 emu/g, H_c は 1410~1850 Oe を示した。Table 1 に M_{15k} と H_c の代表的な値をまとめた。Co と Al の複合置換により α'' 相が生成する還元, 窒化条件の範囲が広くなるとともに, H_c は Co と Al それぞれの単独置換よりも高い値が得られ, 磁化は Al 単独置換よりも高くすることができた。講演では TEM 法による組織観察および回転ヒステリシス損失法による異方性磁界評価に基づき, α'' -(Fe, M)₁₆N₂ ナノ粒子集合体の構造と磁気特性との相関について報告する。

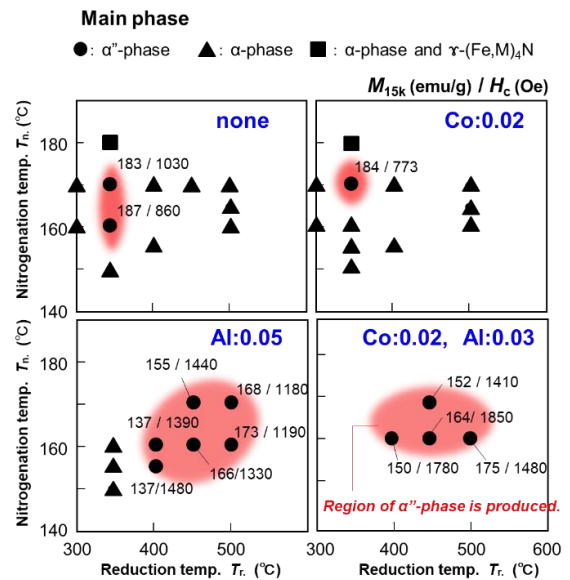


Fig. 1 Plots of M_{15k}/H_c of nanoparticles as a function of reduction temp. and nitrogenation temp. for several starting materials.

Table 1 M_{15k} and H_c of nanoparticles after reduction and nitrogenation for several starting materials.

Starting material	M_{15k} (emu/g)	H_c (Oe)
FeOOH	183	1026
(Fe _{0.95} Co _{0.02})OOH	184	773
(Fe _{0.95} Al _{0.05})OOH	137	1480
(Fe _{0.95} Co _{0.02} Al _{0.03})OOH	164	1850

参考文献 1) R. Skomski et al., *Scripta Mater.*, **112**, 3 (2016). 2) M. Tobise et al., *J. Magn. Soc. Jpn.*, **41**, 58 (2017). 3) M. Tobise et al., *AIP Adv.*, **JMI2019**, 035233 (2019).