

まえだ とおる  
氏 名 前 田 徹  
授 与 学 位 博士(工学)  
学位授与年月日 平成 15 年 9 月 10 日  
学位授与の根拠法規 学位規則第 4 条第 1 項  
研究科, 専攻の名称 東北大学大学院工学研究科(博士課程)材料物性学専攻  
学位論文題目 希土類-鉄系磁石化合物の磁気共鳴と GHz 帯電磁波吸収  
指 導 教 官 東北大学教授 猪俣 浩一郎  
論文審査委員 主査 東北大学教授 猪俣 浩一郎 東北大学教授 深道 和明  
東北大学教授 岡田 益男

## 論文内容要旨

### 第1章 緒論

緒論では、電磁波吸収体が必要とされる社会的背景と、磁気損失型電磁波吸収体の特性向上のための指針を示した。携帯電話に代表されるように通信機器における GHz 帯電磁波の利用が急増する中、電子機器における電子回路の小型化、低作動電圧化によって電磁干渉が生じやすくなっており、その結果として機器の誤作動や通信エラーが発生することが社会問題となっている。電磁干渉対策の一つとして磁気損失型電磁波吸収体の利用は効果的ではあるが、今後考えられる機器の小型化、薄肉化および利用電磁波の高周波化に対応するには、電磁波吸収体自体にも薄型化および高周波化が必須となる。このためには電磁波吸収体用磁性材料の高性能化が重要であり、材料の飽和磁化および磁気異方性の増加が望まれる。これらに関して、希土類-鉄系化合物の不均化反応で生成するナノオーダーの鉄組織、および高飽和磁化、高異方性を有する希土類-鉄-ボロン系磁石化合物、の利用が有効と考えられる。このように、希土類-鉄系化合物が GHz 帯電磁波吸収体材料として期待できるが、これらの材料の電磁波吸収体としての応用はこれまでに報告されていない。そこで本研究では、希土類-鉄系化合物の不均化反応により生成する微細 Fe 組織、および  $RE_2Fe_{14}B$  (RE:希土類元素) 微細粉末の GHz 帯における磁気共鳴現象を調べ、電磁波吸収体材料としての応用を検討することを目的とした。

### 第2章 $Sm_2Fe_{17}$ 化合物の不均化反応により生成する微細 $\alpha$ -Fe の自然共鳴と GHz 帯電磁波吸収特性

第2章では、サブマイクロ波帯で有効なソフト磁性材料を用いた電磁波吸収体における薄型化を実現するため、希土類-鉄化合物の不均化反応により得られるナノオーダーの鉄組織の利用について検討した。

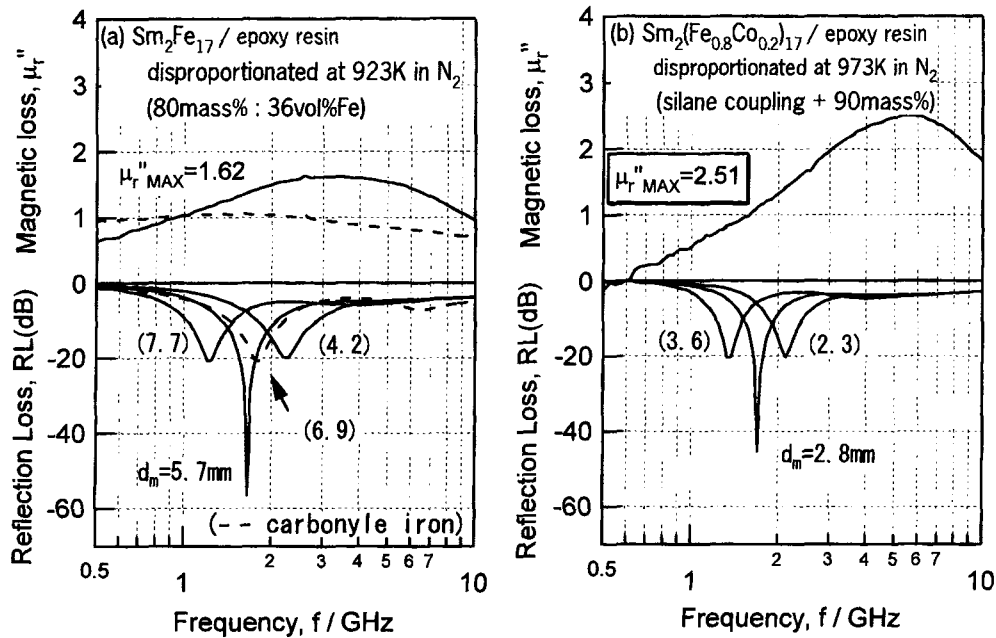


Fig.1 窒素中不均化処理した(a)Sm<sub>2</sub>Fe<sub>17</sub>および(b)Sm<sub>2</sub>(Fe<sub>0.8</sub>Co<sub>0.2</sub>)<sub>17</sub>化合物粉末を用いて作製した樹脂複合体の磁気損失 $\mu_r''$ と反射損失RLの周波数依存性

Sm<sub>2</sub>Fe<sub>17</sub>化合物を923 Kで窒素中不均化処理することにより、数10 nmの $\alpha$ -Fe相を有する不均化組織が得られた。このサイズは、Feにおけるスキンドープを考慮した場合、渦電流による透磁率低下の抑制に対し十分に効果的なものである。続いて大気中酸化処理した粉末の樹脂複合体(充填率80 mass%)において複素比透磁率の周波数依存性を測定した結果、Fig.1(a)に示すような磁気共鳴による磁気損失( $\mu_r''$ )ピークが観察された。最大の磁気損失( $\mu_r''_{MAX}$ )は3.10 GHzにおいて1.62となり、結果として、1.20~2.30 GHzの周波数帯域で反射損失 $RL < -20$  dB(電磁波エネルギーの99%を吸収することに相当)の十分な電磁波吸収特性が得られた。このとき、電磁波吸収体厚さ(整合厚さ: $d_m$ )は7.7~4.2 mmであり、鉄の含有量が等価な従来のカルボニル鉄粉末の樹脂複合体と比較して30%程度低い値となった。これは、Fe相中に誘起される渦電流による透磁率低下を防ぎ、その結果、電磁波吸収体厚さが薄くなったことを示している。また、Feの一部をCoで置換し、更にシランカップリング処理して粉末の充填率を90 mass%まで高めて複合体の飽和磁化を向上することにより、Fig.1(b)に示すように、 $\mu_r''_{MAX}=2.51$ を示し、1.26~2.10 GHzで $RL < -20$  dBとなる電磁波吸収特性が得られた。このときの電磁波吸収体厚さは、 $d_m=3.6\sim 2.3$  mmとCo無置換、充填率80 mass%の試料と比べて、約50%薄くなった。

### 第3章 Sm置換Y<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B化合物の自然共鳴とGHz帯電磁波吸収特性

第3章では、サブミリ波およびミリ波帯で電磁波吸収帯用材料として有効と考えられるハード磁性材料において薄型化を図ることを目的に、高飽和磁化、高異方性を示す希土類-鉄-ボロン系磁石化合物の電磁波吸収体

への応用を検討した。まず、高周波帯域における磁気損失材料の評価法の確立を行った。さらに、電磁波吸収体として機能する周波数の制御法として、希土類元素置換による結晶磁気異方性変化の利用を検討した。

40 GHz 以上の周波数帯域で、スカラーネットワークアナライザを用いた導波管法によって磁気損失材料を評価する方法を新たに考案し、その妥当性を確認した。 $Y_2Fe_{14}B$  化合物をボールミル粉砕して得られる粉末の樹脂複合体 (80 mass%) において、粉末の異方

性磁界から計算される自然共鳴周波数 ( $f_r=54.5$  GHz) 付近の 48 GHz で磁気損失の増大が確認され、 $\mu_r''_{MAX}=0.28$  なる値が得られた。更に、40.0~60.0 GHz の周波数帯域において  $d_m=0.40\sim 0.30$  mm としたときに、 $RL < -20$  dB となる電磁波吸収が得られた。また、Y の一部を Sm で置換することにより、共鳴周波数および電磁波吸収を示す周波数が変化した。 $(Y_{0.85}Sm_{0.15})_2Fe_{14}B$  組成の試料において最小の  $f_r=18$  GHz、 $f_m=15$  GHz を示し、また、置換量を変化することで 15~60 GHz の周波数帯域で電磁波吸収体として機能することが示された。このときの  $f_m$  と  $d_m$  の関係を Fig.2 に示す。これらの試料の  $d_m$  は、従来の M 型フェライトを用いた電磁波吸収体と同周波数帯域で比べた場合、30%程度小さな値となった。

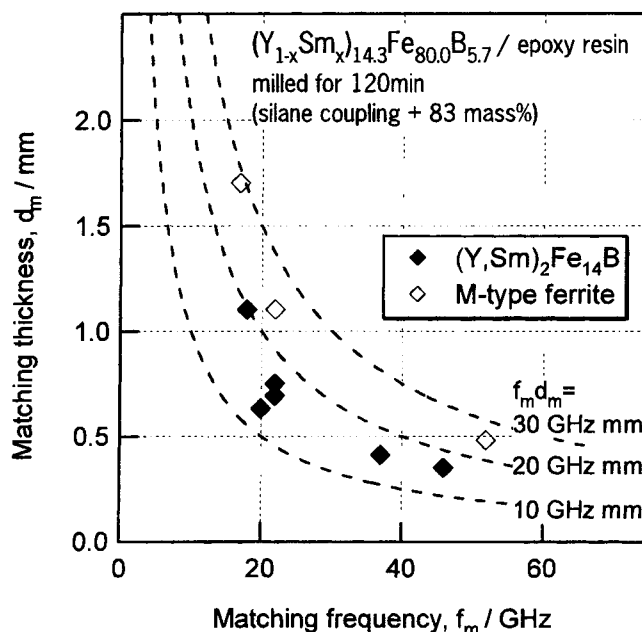


Fig.2  $(Y_{1-x}Sm_x)_{14.3}Fe_{80.0}B_{5.7}$  微粉末を用いて作製した樹脂複合体における整合周波数  $f_m$  と整合厚  $d_m$  の関係

#### 第4章 $Y_2Fe_{14}B/Fe_3B$ 系磁性材料におけるナノコンジット化と GHz 帯電磁波吸収特性

第4章では、第3章で示した  $Y_2Fe_{14}B$  化合物を用いた電磁波吸収体において、ソフト磁性相との相間交換相互作用を利用することにより、機能周波数の制御を行うことを目的とした。

$Y_2Fe_{14}B$  相と  $Fe_3B$  相の体積比が 80:20 となる組成 ( $Y_{9.4}Fe_{79.5}B_{11.1}$ ) において、メルトスパンによりアモルファス薄帯を得た後、1023 K で結晶化処理した試料はリコイル率 0.30 となり、ソフト/ハード相間の交換相互作用の存在を示唆する磁化挙動を示した。また、薄帯をボールミル粉砕した粉末の樹脂複合体の  $f_r$  は、 $Y_2Fe_{14}B$  単相試料より 5 GHz 低い値を示した。また Cu 添加により、結晶粒径は 50~150 nm から 20~50 nm と微細化し、リコイル

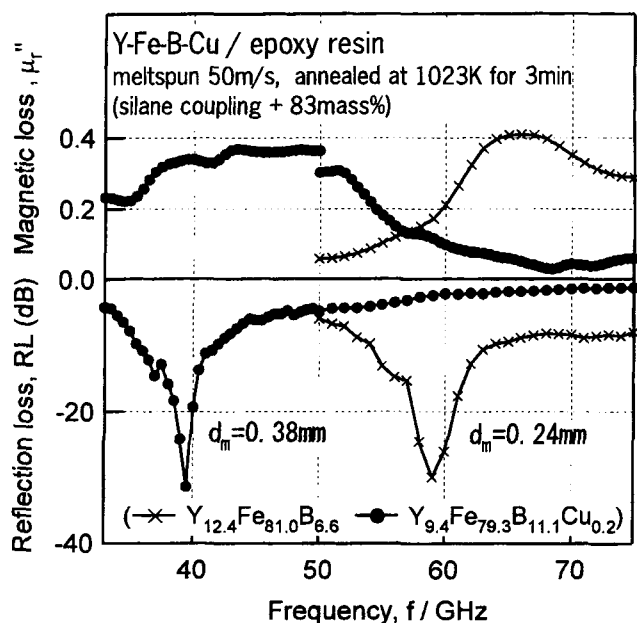


Fig.3 1003K、3分間のアニール処理を施した $Y_{9.4}Fe_{79.3}B_{11.1}Cu_{0.2}$  および $Y_{12.4}Fe_{81.0}B_{6.6}$ 急冷薄帯の粉末を用いて作製した樹脂複合体の磁気損失 $\mu_r''$ と反射損失RLの周波数依存性

$f_m=39.5$  GHz なる電磁波吸収を示した。この  $f_m$  は  $Y_2Fe_{14}B$  単相試料に比べて 19 GHz 低い。交換相互作用を働かせることにより、機能周波数の制御が可能であることが示唆された。得られた  $d_m$  は、第3章で示した Sm 置換  $Y_2Fe_{14}B$  試料とほぼ同等な厚さであるが、組成から考えて低希土類組成となっており、有利な点があると考えられる。

## 第5章 総括

希土類-鉄系化合物の不均化反応により生成する微細 Fe 組織、および  $RE_2Fe_{14}B$  微細粉末の GHz 帯における磁気共鳴現象を調べ、電磁波吸収体材料としての応用を検討し以下の知見を得た。

- $Sm_2Fe_{17}$  化合物を不均化処理および酸化処理することにより得られるサブマイクロオーダーの  $\alpha$ -Fe/Sm 酸化物2相組織を有する粉末の樹脂複合体は 1~3GHzの帯域で電磁波吸収体として機能する。
- $Y_2Fe_{14}B$  化合物の樹脂複合体はその自然共鳴周波数付近に磁気損失ピークを有し電磁波吸収体として機能する。このとき  $Y_2Fe_{14}B$  化合物に対し Sm で Y の一部を置換するか、ソフト相である  $Fe_3B$  相とナノコンポジット化することにより樹脂複合体の共鳴周波数を低周波側にシフトさせることができる。

以上の知見より希土類-鉄系磁石化合物は GHz 帯電磁波吸収体として応用可能である。

率が 0.49 と増加し、共鳴周波数の低下も 23 GHz と大きくなった。リコイル率と共鳴周波数シフトの間には直線的な関係が認められ、一方でリコイル率から推定される結晶粒径と組織観察で得られた結晶粒径が良く一致することから、結晶粒径と共鳴周波数シフトには相関関係が存在することが結論付けられた。これらのナノコンポジット粉末の樹脂複合体における電磁波吸収特性を Fig.3 に示す。

共鳴周波数の低下に対応して、電磁波吸収周波数も低下しており、Cu 添加を行った試料において、 $d_m=0.38$  mm、

# 論文審査結果の要旨

電子機器のデジタル化とその急速な進展により、携帯電話やパソコンなど電子機器から発生される電磁波が他の電子機器の誤動作を引き起こすなど、電磁波干渉 (EMI) が問題となっている。これは医療機器や航空機など人類の生命にかかわるような機器では特に深刻な問題である。電子機器はその小型化のため、より高周波化される傾向にあり、高周波機器に対する EMC が今後重要な課題となる。また、電磁波吸収体としてはより薄型化が志向されている。本研究では、GHz 帯域の高周波機器の EMI に対処するため、従来、永久磁石材料として使用されてきた希土類-鉄系化合物を電磁波吸収体として利用することを目的に、その可能性並びに材料の最適化に関して検討した。本論文は全編 5 章より構成されている。

第 1 章は序論であり、GHz 帯における電磁環境および電磁波吸収体の必要性、電磁波吸収体の原理と現状、および本論文の目的について述べている。

第 2 章では、希土類-鉄系化合物、特に  $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$  化合物を大気、水素および窒素気流中で熱処理して不均化反応を起こさせ、それによって得られる微細 Fe 組織が GHz 帯の電磁波吸収体として利用できることを示している。

第 3 章は Sm 置換  $\text{Y}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  化合物の磁気共鳴現象と電磁波吸収特性について述べている。まず、 $\text{Y}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  化合物の磁気損失の周波数特性および電磁波吸収特性について検討したのち、Sm 置換による結晶磁気異方性および共鳴周波数の変化について調べている。その結果、15~60GHz の範囲で電磁波吸収体として機能し、吸収体厚さは従来報告のある M 型フェライトに比べ、約 30% 薄くできることを見出している。

第 4 章は、Y-Fe-B 系合金におけるナノコンポジット化とその磁気共鳴現象および電磁波吸収特性についてまとめている。液体急冷法で作製した Y-Fe-B 系アモルファス合金の結晶化処理により、 $\text{Y}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\text{Fe}_3\text{B}$  ナノコンポジットを作製し、両者間の交換結合と組成割合が磁気損失の周波数および電磁波吸収特性に及ぼす効果について検討している。その結果、20%  $\text{Fe}_3\text{B}$  組成において  $\text{Y}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  化合物より最大 17GHz の共鳴周波数シフトが可能になり、15GHz の機能周波数低下が可能であること、また、共鳴周波数シフト量は、ソフト/ハード相の体積比および結晶粒径に依存することを見出している。

第 5 章は本論文の総括である。

以上の研究から、希土類-鉄系化合物を用いて、不均化反応により生じる微細 Fe 組織の利用や、組成制御あるいはソフト/ハード相の交換結合を利用して磁気異方性を制御することで、GHz 帯域の新しい電磁波吸収体を提供することが可能であり、将来、電子機器の小型化に寄与することが期待される。また、本研究は従来、永久磁石材料としてのみ利用されてきた材料の新たな応用への道を拓くものであり、材料物性学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。