

低 Pr 領域での Pr-Fe-B ナノコンポジット磁石の組織と 磁気特性における添加元素 Ti と Nb の効果IV

Effects of Ti and Nb Addition on Structure and Magnetic Properties of Pr-Fe-B
Nanocomposite Magnets in a Pr-poor Composition Range, Part IV

佐藤 博
Hiroshi SATO

低 Pr 領域での Pr-Fe-B ナノコンポジット磁石の組織と 磁気特性における添加元素 Ti と Nb の効果IV

Effects of Ti and Nb Addition on Structure and Magnetic Properties of Pr-Fe-B Nanocomposite Magnets in a Pr-poor Composition Range, Part IV

佐藤 博
Hiroshi SATO

1. はじめに

$\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ の発見とそれに続く磁石材料のめざましい特性の向上により、 $\text{Nd}_{15}\text{Fe}_{77}\text{B}_8$ 組成を中心とした永久磁石の発展は頂点を上りつめたことになっている。しかしこの $\text{Nd}_{15}\text{Fe}_{77}\text{B}_8$ 系永久磁石を超える可能性があるナノコンポジット磁石の概念が提案されている¹⁾⁻²¹⁾。このコンポジット化は限界を超えるひとつの方法であり、 $\alpha\text{-Fe}$ 相または Fe_3B とのコンポジット化により磁石の飽和磁化を高め、 $\alpha\text{-Fe}$ 相内での磁化回転を制御するために、ナノ結晶組織としてハード磁性相である $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ との間に強い磁気結合を持たせるようにして磁石を設計する必要がある。しかし現実には、高磁化強磁性相とハード磁性相との組み合わせにはいくつかの場合が考えられ研究が行われているが、磁気特性があまりよくない。その原因は、急冷凝固プロセスおよびアモルファスの結晶化過程でのナノ結晶組織制御が十分に行われていない点にある。鉄鋼材料において温度-時間-変態(TTT)線図が有用であると同様に、ナノコンポジット磁石の組織制御とプロセス設計を効果的に行う上で、きわめて有用である。そこでナノコンポジット磁石の急冷凝固と結晶化プロセスの合理的指針を得るためにおよび $\text{Nd}_4\text{Fe}_{77.5}\text{B}_{18.5}$ および $\text{Nd}_6\text{Fe}_{79}\text{B}_{15}$ 組成において、アモルファス相、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 、 $\alpha\text{-Fe}$ 相、 Fe_3B 相等のTTT線図を作成し、磁気特性との関係を検討した。さらにCuを1at.%および0.2at.%添加してTTT線図を作成し、磁気特性との関係を検討した。その結果、 $\text{Nd}_4\text{Fe}_{77.5}\text{B}_{18.5}$ 組成において、1at.%Cuを添加することで、 Fe_3B および $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ の析出温度が下がることがわかった²²⁾。しかし保磁力は小さくなった。0.2at.% Cuを添加することで、Cuを1at.%添加と同様に Fe_3B および $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ の析出温度が下がり、さらに0.2at.%添加により保磁力1000 Oeの範囲が広がることがわかった²³⁾。しかし $\text{Nd}_4\text{Fe}_{77.5}\text{B}_{18.5}$ より $\text{Nd}_4\text{Fe}_{77.3}\text{Cu}_{0.2}\text{B}_{18.5}$ の保磁力は小さくなった。また $\text{Nd}_6\text{Fe}_{79}\text{B}_{15}$ 組成において、Cuを1at.%添加することで、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{23}\text{B}_3$ 相、 Fe_3B および $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ の析出温度が下がり、保磁力1000 Oeの範囲が広がることがわかった²⁴⁾。また、Cuを0.2at.%添加することで、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{23}\text{B}_3$ 相、 Fe_3B および $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ の析出温度が下がり、保磁力2000、1500Oeの領域が現れ、1000、500 Oeの範囲がさらに広がることがわかった²⁵⁾。 $\text{Nd}_4\text{Fe}_{77.5}\text{B}_{18.5}$ 組成において、Coを5at.%添加することで、 Fe_3B 相および $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相の析出温度が下がり、500 Oeの範囲が広がることがわかった²⁶⁾。 $\text{Nd}_4\text{Fe}_{77.5}\text{B}_{18.5}$ において、Crを5at.%添加することで、 Fe_3B 相および $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相の析出温度が上がり、新たに3000 Oeの領域が存在するようになり、2000、1500 Oeの領域は大きく拡がることわかった²⁷⁾。 $\text{Nd}_4\text{Fe}_{67.5}\text{Co}_5\text{Cr}_5\text{B}_{18.5}$ 組成において、CrとCoをそれぞれ5at.%添加することで、 Fe_3B 相および $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相の析出温度が下がり、新たに3000 Oeの領域が存在するようになり、2500、2000 Oeの領域は大きく拡がることわかった²⁸⁾。 $\text{Nd}_6\text{Fe}_{79}\text{B}_{15}$ 組成において、Tiを3、4、5at.%添加することで、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{23}\text{B}_3$ 相、 Fe_3B 相および $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相の析出温度が上がり、4at.%添加すると新たに4000 Oeの領域が存在するようになり、5at.%添加すると新たに5000 Oeの領域が存在するようになり、6at.%添加、7at.%添加すると新たに7000 Oeの領域が存在するようになることわかった²⁹⁾⁻⁴⁰⁾。

本研究では、ナノコンポジット磁石の急冷凝固と結晶化プロセスの合理的指針を得るために、 $\text{Pr}_4\text{Fe}_{77.5}\text{B}_{18.5}$ においてNbを0.5at.%、Tiを11 at.%まで添加し、アモルファス相、 $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相、 $\alpha\text{-Fe}$ 相、 Fe_3B 相等と磁気特性との関係を検討し、TiとNbの効果をまとめた。

2. 実験方法

Pr、Fe、Nb、Ti、Bを所定の成分になるように秤量し、アーク炉で不活性気体雰囲気中にて溶解し、母合金を作製した。合金組成は、 $\text{Pr}_4\text{Fe}_{77.5}\text{B}_{18.5}$ 、 $\text{Pr}_4\text{Fe}_{77}\text{Nb}_{0.5}\text{B}_{18.5}$ 、 $\text{Pr}_4\text{Fe}_{72}\text{Ti}_5\text{Nb}_{0.5}\text{B}_{18.5}$ 、 $\text{Pr}_4\text{Fe}_{70}\text{Ti}_7\text{Nb}_{0.5}\text{B}_{18.5}$ 、 $\text{Pr}_4\text{Fe}_{68}\text{Ti}_9\text{Nb}_{0.5}\text{B}_{18.5}$ 、 $\text{Pr}_4\text{Fe}_{66}\text{Ti}_{11}\text{Nb}_{0.5}\text{B}_{18.5}$ であった。 $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相と Fe_3B 相の化合物組成を結んだ線上で、初晶面がFe相と液相になるように $\text{Pr}_4\text{Fe}_{77.5}\text{B}_{18.5}$ 組成を選んだ。得られた母合金から1~2gを切り出し、石英ノズル中で溶融させ、高速で回転する単ロール表面上に射出することよりアモルファス薄帯を作製した。このとき、石英ノズル先端からロール表面までの間隔は0.5mm、ノズル射出直径は $\phi 0.5\text{mm}$ 、射出圧20kPaである。ロール周速度は33~47m/sで行った。示差熱分析装置(DTA)とX線回折装置により、アモルファスから析出する相の結晶化過程を調べた。この結果をもとに薄帯試料を電気炉にて種々の熱処理(温度、時間)を施し、X線回折装置により結晶化する種々の相を同定した。特にアモルファス相から $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相、 $\alpha\text{-Fe}$ 相、 Fe_3B 相の析出する温度域を検討した。熱処理は、試料が酸化しやすいので、不活性ガス雰囲気中で行った。さらに、試料振動型磁力計(VSM)により磁気特性を測定した。

3. 実験結果および検討

3-1 結晶化過程

加熱によるアモルファスからの結晶化過程を、DTA測定とX線回折測定により検討した。昇温速度は $20^\circ\text{C}/\text{min}$ であった。図1にDTA曲線を示す。(a)は $\text{Pr}_4\text{Fe}_{77}\text{Nb}_{0.5}\text{B}_{18.5}$ 、(b)は $\text{Pr}_4\text{Fe}_{72}\text{Ti}_5\text{Nb}_{0.5}\text{B}_{18.5}$ 、(c)は $\text{Pr}_4\text{Fe}_{70}\text{Ti}_7\text{Nb}_{0.5}\text{B}_{18.5}$ 、(d)は $\text{Pr}_4\text{Fe}_{68}\text{Ti}_9\text{Nb}_{0.5}\text{B}_{18.5}$ を示す。(a)、(b)、(c)の曲線には最終安定相までに2段階の反応を示す発熱ピークが、(d)の曲線には最終安定相までに1段階の反応を示す発熱ピークが現れている。DTA測定の結果に基づいて種々の温度まで加熱し、そこから急冷しX線回折測定より相を同定した。

(a)、(b)、(c)では第1の発熱ピークの始まる573、616 $^\circ\text{C}$ 、617 $^\circ\text{C}$ までに $\alpha\text{-Fe}$ が析出した。これは発熱ピーク開始温度以下で結晶化していることになる。第1の発熱ピークピーク開始温度以上で、 Fe_3B 相が結晶化した。第2の発熱ピーク開始温度595、643 $^\circ\text{C}$ 、634 $^\circ\text{C}$ 以上で $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相が結晶化した。

(d)では、第1の発熱ピークの始まる617 $^\circ\text{C}$ までに $\alpha\text{-Fe}$ 相が結晶化した。これは(a)、(b)、(c)と同様に発熱ピーク開始温度以下で結晶化していることになる。第1の発熱ピーク開始温度以上で、 Fe_3B 、 $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相が結晶化した。

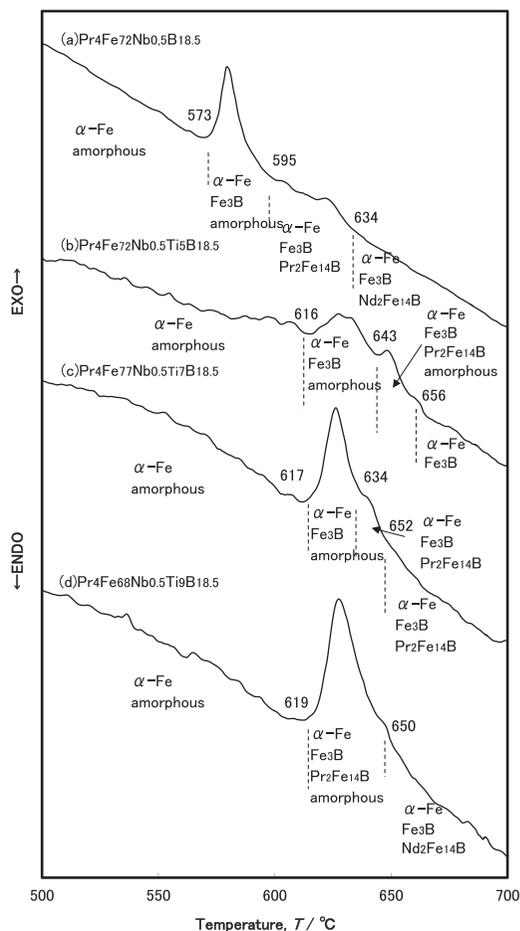


図1 DTA曲線

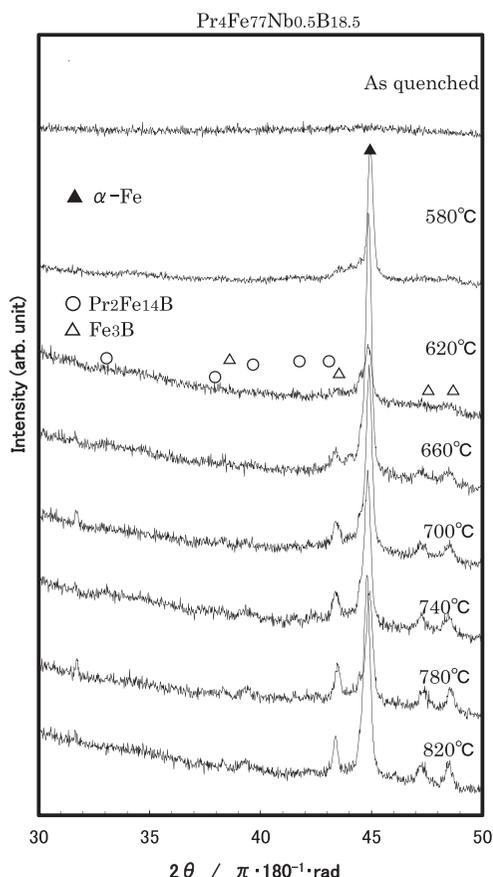


図2 1分間等時加熱した $\text{Pr}_4\text{Fe}_{77}\text{Nb}_{0.5}\text{B}_{18.5}$ 組成のX線回折パターン

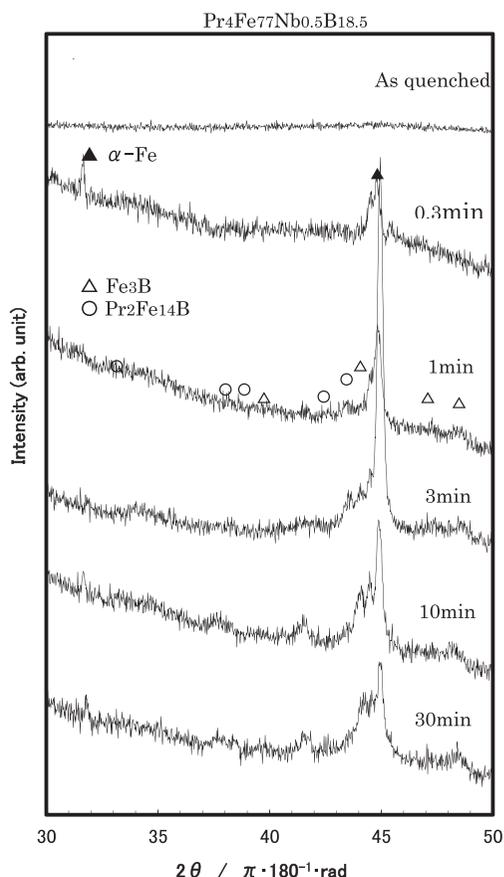


図3 620°C等温加熱した $\text{Pr}_4\text{Fe}_{77}\text{Nb}_{0.5}\text{B}_{18.5}$ 組成のX線回折パターン

3-2 熱処理による析出相

図2に $\text{Pr}_4\text{Fe}_{77}\text{Nb}_{0.5}\text{B}_{18.5}$ の等時加熱保持温度とX線回折パターンを示す。保持時間は1分間とした。580°C加熱した試料の回折パターンには、 $\alpha\text{-Fe}$ 相のピークが大きく現れた。620°Cから820°Cまで加熱した試料の回折パターンには、 $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相、 Fe_3B 相および $\alpha\text{-Fe}$ 相の3相のパターンが共存した。図3に $\text{Pr}_4\text{Fe}_{77}\text{Nb}_{0.5}\text{B}_{18.5}$ の620°C等温加熱保持時間とX線回折パターンを示す。0.3秒間保持した試料の回折パターンには、 $\alpha\text{-Fe}$ 相のピークが大きく現れた。さらに1分から30分間保持した試料の回折パターンには、 $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相、 Fe_3B 相および $\alpha\text{-Fe}$ 相の3相のパターンが共存した。

図4に $\text{Pr}_4\text{Fe}_{70}\text{Ti}_7\text{Nb}_{0.5}\text{B}_{18.5}$ の等時加熱保持温度とX線回折パターンを示す。保持時間は1分間とした。620°C加熱した試料の回折パターンは、 $\alpha\text{-Fe}$ 相と Fe_3B 相のピークが現れた。660°Cから780°Cまで加熱した試料の回折パターンには、 $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相、 Fe_3B 相および $\alpha\text{-Fe}$ 相の3相のパターンが共存した。図5に $\text{Pr}_4\text{Fe}_{70}\text{Ti}_7\text{Nb}_{0.5}\text{B}_{18.5}$ の620°C等温加熱保持時間とX線回折パターンを示す。1秒間保持した試料の回折パターンには、 $\alpha\text{-Fe}$ 相のピークが現れた。1分から100分間保持した試料の回折パターンには、 $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相、 Fe_3B 相および $\alpha\text{-Fe}$ 相の3相のパターンが共存した。

3-3 磁気特性

$\text{Pr}_4\text{Fe}_{77}\text{Nb}_{0.5}\text{B}_{18.5}$ 、 $\text{Pr}_4\text{Fe}_{70}\text{Ti}_7\text{Nb}_{0.5}\text{B}_{18.5}$ のVSM測定で得られた代表的な磁気履歴曲線を図6の(a)、(b)、

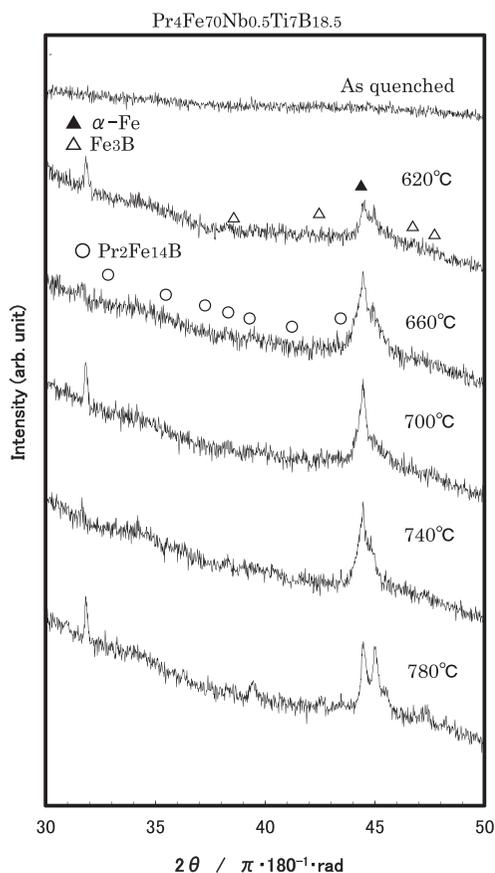


図4 1分間等時加熱した $\text{Pr}_4\text{Fe}_{70}\text{Nb}_{0.5}\text{Ti}_7\text{B}_{18.5}$ 組成のX線回折パターン

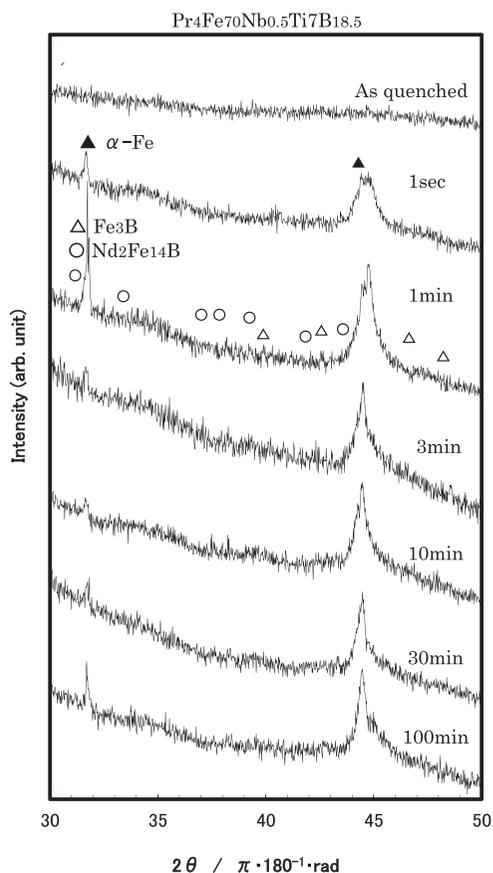


図5 620°C等温加熱した $\text{Pr}_4\text{Fe}_{70}\text{Nb}_{0.5}\text{Ti}_7\text{B}_{18.5}$ 組成のX線回折パターン

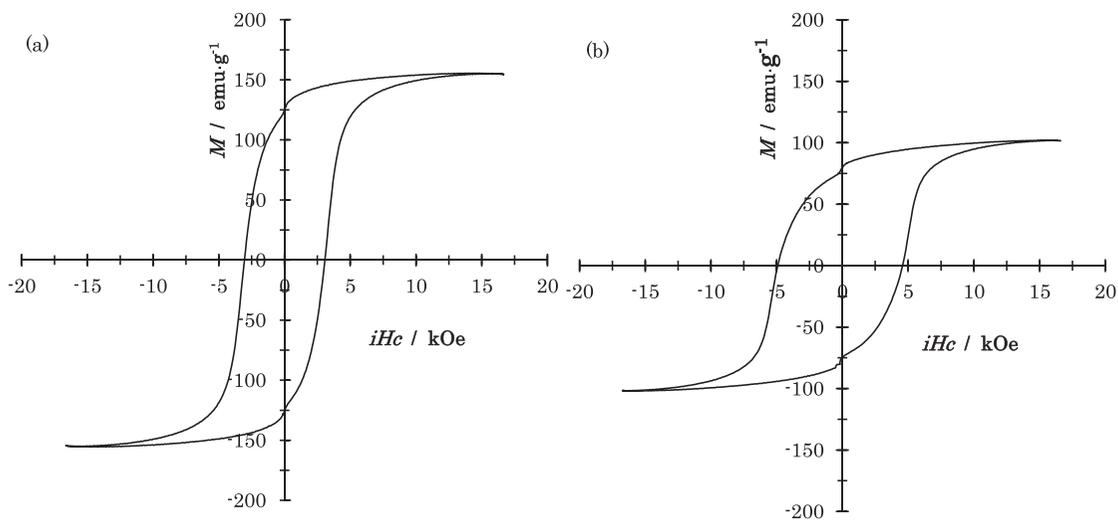


図6 磁気履歴曲線 (a) $\text{Pr}_4\text{Fe}_{70}\text{Nb}_{0.5}\text{Ti}_7\text{B}_{18.5}$; 660°C, 10min, (b) $\text{Pr}_4\text{Fe}_{70}\text{Nb}_{0.5}\text{Ti}_7\text{B}_{18.5}$; 700°C, 1min

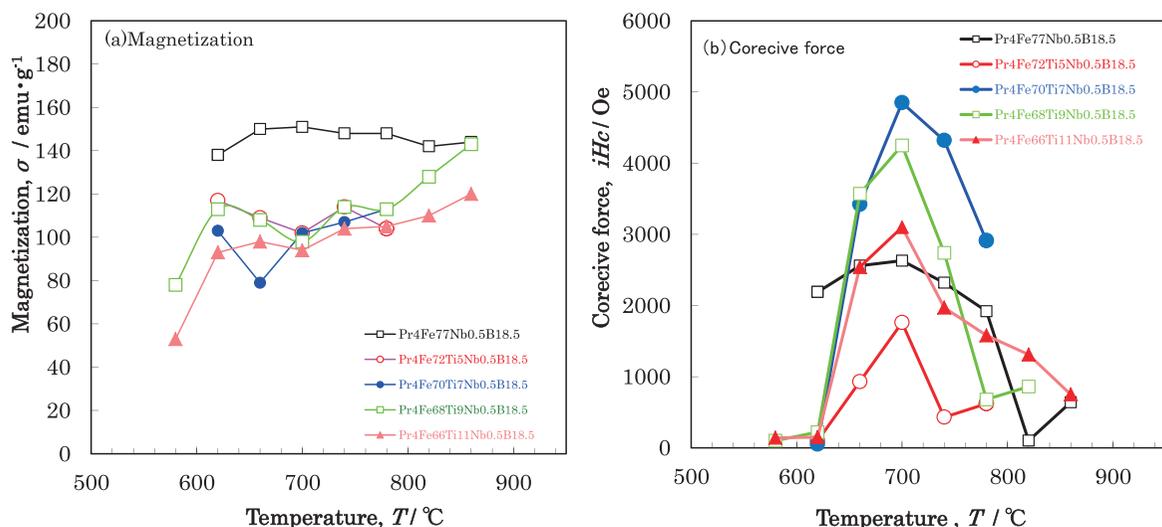


図7 熱処理温度と磁気特性 保持時間：1 min (a) 磁化 (b) 保磁力

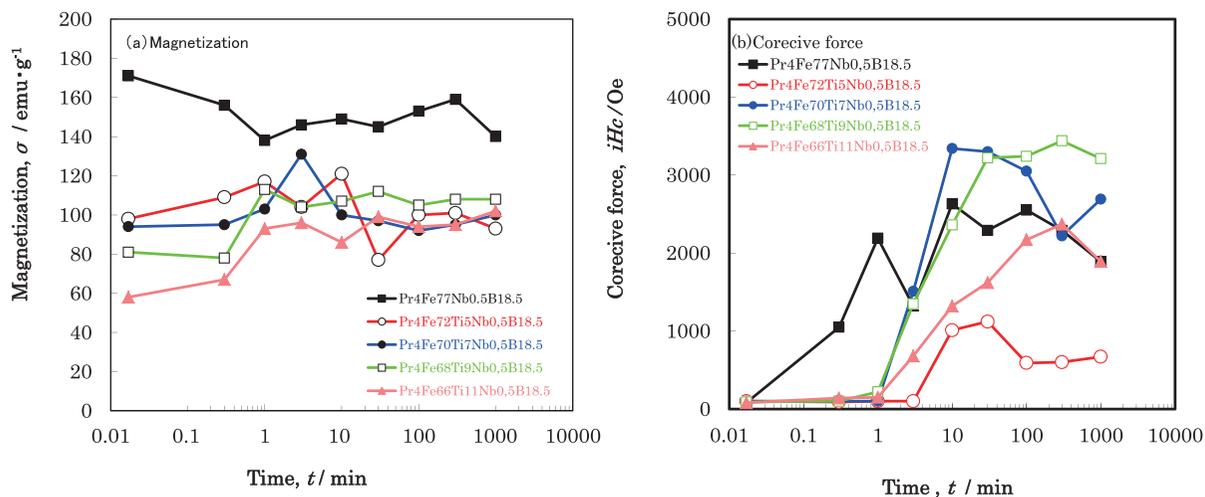


図8 熱処理時間と磁気特性 保持温度：620°C (a) 磁化 (b) 保磁力

に示す。(a)は660°Cで10分間熱処理をした試料である。磁化および保磁力は155emu/g、3050 Oeであった。やや保磁力は小さかった。(b)は700°Cで1分間熱処理をした試料である。磁化および保磁力は102 emu/g、4850 Oeであった。Pr₄Fe₇₇Nb_{0.5}B_{18.5}の磁化よりPr₄Fe₇₀Ti₇Nb_{0.5}B_{18.5}の磁化は小さくなっている。保磁力はPr₄Fe₇₇Nb_{0.5}B_{18.5}よりPr₄Fe₇₀Ti₇Nb_{0.5}B_{18.5}の方が大きくなっている。

図7にNbを0.5 at%添加した各試料の等時加熱保持温度と磁気特性を示す。保持時間は1分間とした。保持温度が高くなると、Pr₄Fe₇₇Nb_{0.5}B_{18.5}はほぼ一定で、Pr₄Fe₇₂Ti₅Nb_{0.5}B_{18.5}、Pr₄Fe₇₀Ti₇Nb_{0.5}B_{18.5}、Pr₄Fe₆₈Ti₉Nb_{0.5}B_{18.5}、Pr₄Fe₆₆Ti₁₁Nb_{0.5}B_{18.5}は増加した。保磁力はPr₄Fe₇₇Nb_{0.5}B_{18.5}、Pr₄Fe₇₂Ti₅Nb_{0.5}B_{18.5}、Pr₄Fe₇₀Ti₇Nb_{0.5}B_{18.5}、Pr₄Fe₆₈Ti₉Nb_{0.5}B_{18.5}、Pr₄Fe₆₆Ti₁₁Nb_{0.5}B_{18.5}は700°Cまで増加し、さらに高温では減少した。Pr₄Fe₇₀Ti₇Nb_{0.5}B_{18.5}、660°Cで最高4850 Oeになった。図8にNbを0.5at%添加した各試料の620°C等温加熱保持時間と磁気特性を示す。保持温度は620°Cとした。Pr₄Fe₇₇Nb_{0.5}B_{18.5}、Pr₄Fe₇₂Ti₅Nb_{0.5}B_{18.5}、Pr₄Fe₇₀Ti₇Nb_{0.5}B_{18.5}は、

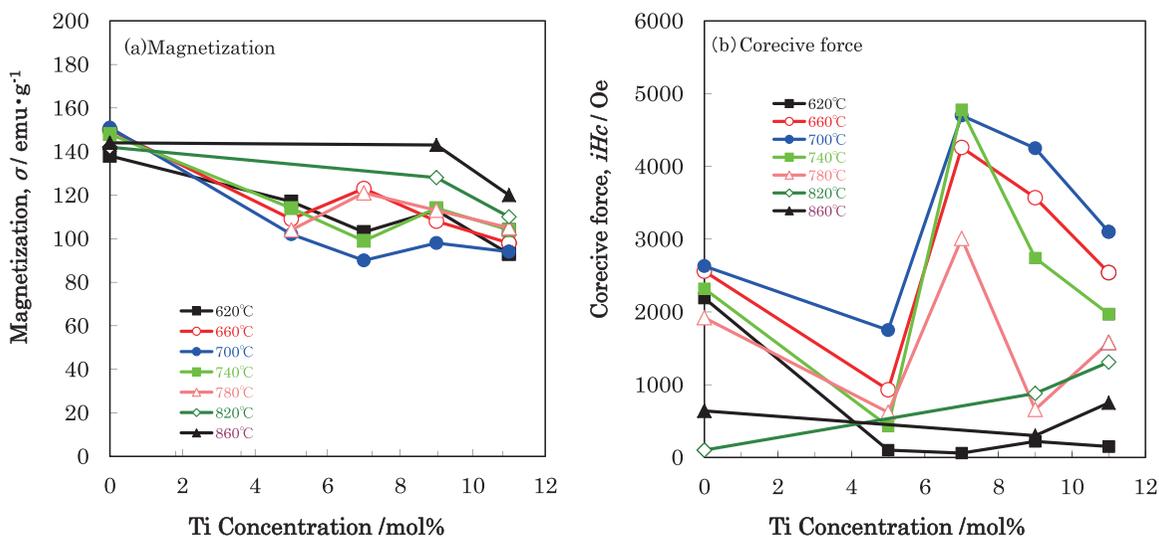


図9 熱処理温度とTi量における磁気特性 保持時間：1 min (a) 磁化 (b) 保磁力

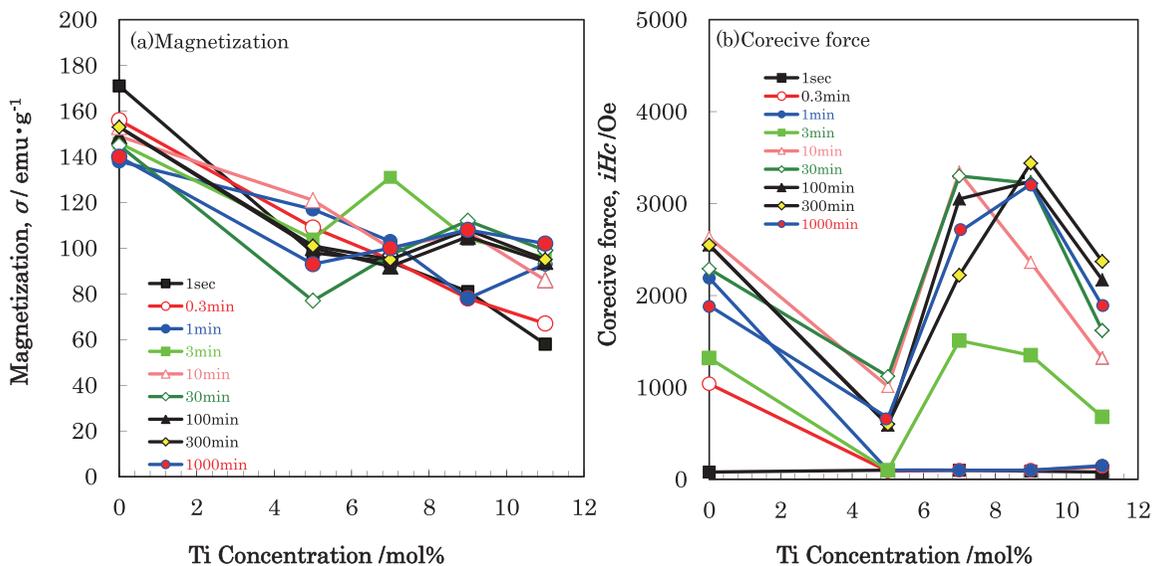


図10 熱処理時間とTi量における磁気特性 保持温度：620°C (a) 磁化 (b) 保磁力

時間によらず磁化はほぼ一定であった。 $\text{Pr}_4\text{Fe}_{68}\text{Ti}_9\text{Nb}_{0.5}\text{B}_{18.5}$ 、 $\text{Pr}_4\text{Fe}_{66}\text{Ti}_{11}\text{Nb}_{0.5}\text{B}_{18.5}$ の磁化は時間が長くなると増加した。 $\text{Pr}_4\text{Fe}_{77}\text{Nb}_{0.5}\text{B}_{18}$ は、0.3分から保磁力が増加した。 $\text{Pr}_4\text{Fe}_{70}\text{Ti}_7\text{Nb}_{0.5}\text{B}_{18.5}$ 、 $\text{Pr}_4\text{Fe}_{68}\text{Ti}_9\text{Nb}_{0.5}\text{B}_{18.5}$ 、 $\text{Pr}_4\text{Fe}_{66}\text{Ti}_{11}\text{Nb}_{0.5}\text{B}_{18.5}$ は3分から保磁力が大きくなる。 $\text{Pr}_4\text{Fe}_{72}\text{Ti}_5\text{Nb}_{0.5}\text{B}_{18.5}$ は10分から保磁力が大きくなる。

図9にNbを0.5at%添加した試料の等時加熱保持温度とTi量における磁気特性を示す。保持時間は1分間とした。620°C、700°C、740°Cの磁化はTiが7%まで増加するにつれて減少し、9%で増加し、11%になると減少した。660°C、780°Cの磁化はTiが5%増加すると減少し、7%で増加し、さらに増加すると減少した。820°C、860°Cの磁化はTiが増加するにつれて減少した。保磁力は620°C、660°C、700°C、740°C、780°Cでは、Tiが増加するにつれて、5%まで減少し、7%になると急激に増加し、さらに増加す

ると減少した。保磁力は7%で最高4700 Oeになった。620℃、860℃ではTiが増加するにつれて、保磁力は減少した。図10にNbを0,5at%添加した各試料の620℃等温加熱保持時間とTi量における磁気特性を示す。磁化は、1秒、0.3分、1分ではTiが増加すると減少した。3分、30分ではTiが5%増加すると減少し、7%で増加し、さらに増加すると減少した。10分、100分、300分、1000分の磁化は、Tiが増加すると減少し、9%では増加し、さらに増加すると減少した。1秒の保磁力はTiが増加するにつれて減少した。それ以外ではTiが5%増加すると減少し、7%で増加し、さらに増加すると減少した。保磁力は7%、620℃、10分で最高4330 Oeになった。

4. おわりに

本研究では、ナノコンポジット磁石の急冷凝固と結晶化プロセスの合理的指針を得るために、Pr₄Fe_{77,5}B_{18,5}においてNbを0,5at.%、Tiを11at.%まで添加し、アモルファス相、Pr₂Fe₁₄B相、 α -Fe相、Fe₃B相等と磁気特性との関係を検討した。Tiを添加すると磁化は小さくなるが、保磁力は増加しPr₄Fe₇₀Ti₇Nb_{0,5}B_{18,5}、700℃、1分間で最高4850 Oeが得られた。

文 献

- 1) R. Coehoorn, D.B. De Mooij and C.De. Waard: J. Magn. Magn. Mater., 80 (1989) pp.101-104.
- 2) E.F. Kneller and R. Hawig: IEEE Trans. Magn., 27 (1991)pp.3588-3600.
- 3) H. Fukunaga, N. Kitajima and Y. Kanai. Mater. Trans. JIM, 37 (1996) pp.864-867.
- 4) S.Hirosawa: Materials Science and Technology, 69(1999)pp.692-698.
- 5) D.H. Ping, K. Hono, H. Kanekiyo and S. Hirosawa. Acta Mater., 47 (1999) pp.4641-4651.
- 6) R. Skomski and J.M.D. Coey. Phys. Rev. B, 48 (1993) pp.15812-15816.
- 7) T. Schrefl, J. Fidler and H. Kronmuller. J.Appl.Phys., 76 (1994)pp.7053-7064.
- 8) T. Schrefl, J. Fidler and H. Kronmuller. Phys. Rev. B, 49 (1994) pp.6100-6110.
- 9) S.Hirosawa, H. Kanekiyo and M.Uehara: J. Appl.Phys., 73 (1993) pp.6488-6490.
- 10) A.Inoue, A.Takeuchi, A.Makino and T.Masumoto, IEEE Trans. Mag., 31(1995) pp.3626-3628.
- 11) T.Yoneyama, T.yamamoto and Hidaka: J. Appl.Phys. Latt., 67 (1995) pp.3197-3199.
- 12) J.P.Liu,C.P.Luo, Y.Liu and D.J.Sellmyer: J. Appl.Phys. Latt., 72 (1998) pp.483-485.
- 13) D.H. Ping, Y.Q.Wu and K. Hono: J. Magn. Magn. Mater., 239(2002) pp.437-440.
- 14) R.Hermann and I.Bacher: J. Magn. Magn. Mater., 213(2000) pp.82-86.
- 15) S.Hirosawa, H. Kanekiyo Y.Shigemoto,K.Mrakami,T.Miyoshi and Y.Shioya: J. Magn. Magn. Mater., 239(2002) pp.424-429.
- 16) H. Kanekiyo and S.Hirosawa: J. Appl.Phys., 83(1998) pp.6265-6267.
- 17) H. Kanekiyo, M.Uehara and S.Hirosawa: IEEE Trans. Mag., 29(1993) pp.2863-2865.
- 18) S.Hirosawa:Japan Institute of Metals, 41(2002)397-401.
- 19) M.Yamasaki, H.mizuguti, M.Hamano, T.Kobayashi, K.Uno, H.Yamamoto and A.Inoue: J. Magn. Soc. Jpn., 24(2000) pp.419-422.
- 20) H.Ono, T.Tayu, N.Waki, T.Sugiyama, M.Shimada, M.Kanou, HiYamamoto and K.Takasugi: J. Magn. Soc. Jpn., 26(2002) pp.350-353.
- 21) S.Hirosawa, H. Kanekiyo and T.Miyoshi: J. Magn. Magn. Mater., 281(2004) pp.58-67.
- 22) H.Sato: Bulletin of the Faculty of Education & Human Science University of Yamanashi, Vol.6 No.1(2004) pp.1-8.
- 23) H.Sato: Bulletin of the Faculty of Education & Human Science University of Yamanashi, Vol.6 No.2(2005) pp.22-30.
- 24) H.Sato: Bulletin of the Faculty of Education & Human Science University of Yamanashi, Vol.7 No.1(2005) pp.26-33.
- 25) H.Sato: Bulletin of the Faculty of Education & Human Science University of Yamanashi, Vol.7 No.2(2006) pp.22-29.
- 26) H.Sato: Bulletin of the Faculty of Education & Human Science University of Yamanashi, Vol.8 (2006) pp. 50-58 .
- 27) H.Sato: Bulletin of the Faculty of Education & Human Science University of Yamanashi, Vol.8 (2007) pp. 59-67.
- 28) H.Sato: Bulletin of the Faculty of Education & Human Science University of Yamanashi, Vol.9 (2008) pp. 63-70.

- 29) H.Sato: Bulletin of the Faculty of Education & Human Science University of Yamanashi, Vol.10(2009) pp. 77-84.
- 30) H.Sato: Bulletin of the Faculty of Education & Human Science University of Yamanashi, Vol.10(2010) pp. 76-83.
- 31) H.Sato: Bulletin of the Faculty of Education & Human Science University of Yamanashi, Vol.11(2011) pp.68-79.
- 32) H.Sato: Bulletin of the Faculty of Education & Human Science University of Yamanashi, Vol.11(2012) pp. 52-59.
- 33) H.Sato: Bulletin of the Faculty of Education & Human Science University of Yamanashi, Vol.11(2012) pp. 60-66.
- 34) H.Sato: Bulletin of the Faculty of Education & Human Science University of Yamanashi, Vol.11(2013) pp.51-58.
- 35) H.Sato and S.Iikubo: Bulletin of the Faculty of Education & Human Science University of Yamanashi, Vol.11(2013) pp. 59-66.
- 36) H.Sato and T.Nagai: Bulletin of the Faculty of Education & Human Science University of Yamanashi, Vol.11(2014) pp. 301-308.
- 37) H.Sato and K.Ogi: Bulletin of the Faculty of Education & Human Science University of Yamanashi, Vol.11(2014) pp. 309-316.
- 38) H.Sato: Bulletin of the Faculty of Education & Human Science University of Yamanashi, Vol.16(2015) pp.195-202.
- 39) H.Sato: Bulletin of the Faculty of Education & Human Science University of Yamanashi, Vol.16(2015) pp. 203-210.
- 40) H.Sato: Bulletin of the Faculty of Education & Human Science University of Yamanashi, Vol.25(2017) pp.201-208.