

通電加熱変形による磁性材料の 組織制御技術に関する研究

千葉工業大学大学院 工学研究科機械サイエンス専攻

教授 齋藤 哲治

(平成 25 年度一般研究開発助成 AF-2013020)

キーワード：粉末冶金法，通電加熱変形，磁気特性、組織制御

1. 緒言

電気自動車やハイブリッド自動車等のモータに希土類磁石粉末を高温で焼結した Nd-Fe-B (ネオジウム鉄ボロン) 磁石が使用されているが、この Nd-Fe-B 磁石には保磁力向上のために原料資源の制約が大きいディスプロシウム (Dy) が添加されていることが問題となっている。一般に Nd-Fe-B 磁石は Nd-Fe-B 磁石粉末を磁界中で配向プレスした圧粉体を焼結することで製造されている。¹⁾ しかし、Nd-Fe-B 磁石は、Nd-Fe-B 合金急冷薄帯粉末をホットプレスで固化成形したノルクの Nd-Fe-B 磁石にホットプレス中で加熱しながら熱間塑性変形することで結晶粒を配向 (異方化) させて製造できることも知られている。²⁾ この熱間塑性変形で作製した Nd-Fe-B 磁石は焼結法で作製した Nd-Fe-B 磁石よりも組織が微細で保磁力が大きく、耐食性も優れているが、^{3, 4)} この熱間塑性変形はそのプロセスが非常に複雑で手間がかかり、その上組織制御が難しいという問題点があり、ハードディスクや家電用モータ等には広く焼結法で作製した Nd-Fe-B 磁石が使用されている。

本研究では、より簡便な高温での塑性変形技術として通電加熱変形により Nd-Fe-B 磁石の組織制御および結晶配向が可能であるかどうかについて検討する。具体的には、短時間で効率的に、またより微細で異方化 (結晶配向) した高性能な Nd-Fe-B 磁石等が通電加熱変形により製造できる製造条件について検討する。

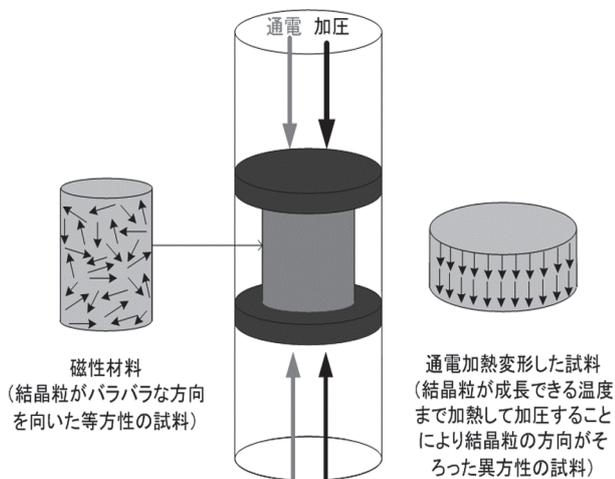


図 1 通電加熱変形による磁性材料の組織制御技術の概略図

2. 実験方法

2.1 試料作製方法

原料粉末には市販されている Nd-Fe-B 合金急冷薄帯粉末 (MQ powder) を使用した。まず、Nd-Fe-B 合金急冷薄帯粉末の固化成形を放電プラズマ焼結法で行い、磁氣的に等方性の Nd-Fe-B 磁石を作製した。なお、放電プラズマ焼結法は真空中、焼結温度 673-873 K、圧力 100 MPa で 5 分間行った。次に、得られた、磁氣的に等方性の Nd-Fe-B 磁石に通電加熱変形を施して試料を作製した。図 1 に通電加熱変形による磁性材料の組織制御技術の概略図を示す。通電加熱変形は真空中、加熱温度 873-1073 K、変形速度約 0.02 mm/s で試料の高さが約 20% になるまで変形させた。

2.2 評価方法

まず、放電プラズマ焼結法および通電加熱変形で作製した Nd-Fe-B 磁石の密度をアルキメデス法で測定した。その後、放電プラズマ焼結法および通電加熱変形で作製した Nd-Fe-B 磁石よりダイヤモンドカッターで試料を切り出して、その構造と磁気特性を調べた。得られた試料の構造は X 線回折装置 (XRD) で、得られた試料の組織は透過型電子顕微鏡 (TEM) で調べた。また得られた試料の磁気特性は振動試料型磁力計 (VSM) で調べた。

3. 結果および考察

3.1 放電プラズマ焼結法で作製した Nd-Fe-B 磁石

まず、Nd-Fe-B 合金急冷薄帯粉末より放電プラズマ焼結法で Nd-Fe-B 磁石を作製した。原料に用いた Nd-Fe-B 合金急冷薄帯粉末と放電プラズマ焼結法で作製した Nd-Fe-B 磁石の外観写真を図 2 に示す。Nd-Fe-B 合金急冷薄帯粉末は放電プラズマ焼結法により Nd-Fe-B 磁石へと固化成形できることがわかった。

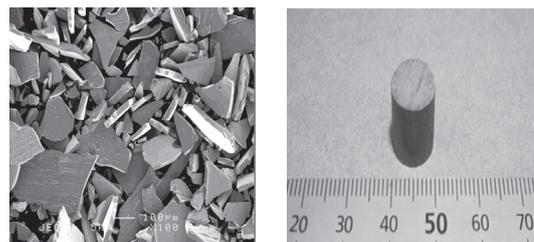


図 2 Nd-Fe-B 合金急冷薄帯粉末 (左) と放電プラズマ焼結法で作製した Nd-Fe-B 磁石 (右) の外観写真

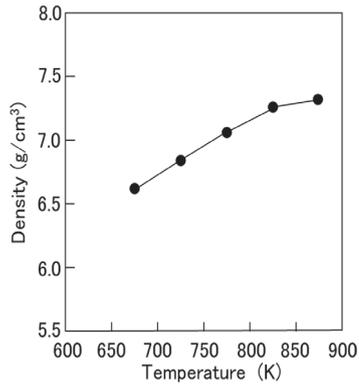


図3 放電プラズマ焼結法で作製した Nd-Fe-B 磁石の密度と焼結温度の関係

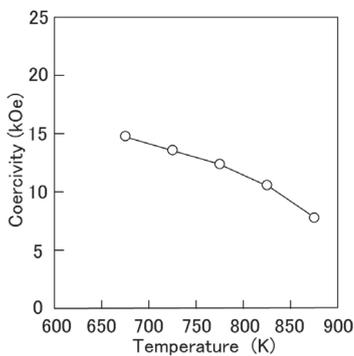


図4 放電プラズマ焼結法で作製した Nd-Fe-B 磁石の保磁力と焼結温度の関係

そこで、放電プラズマ焼結法で作製した Nd-Fe-B 磁石の密度を測定した。図 3 に放電プラズマ焼結法で作製した Nd-Fe-B 磁石の密度と焼結温度の関係を示す。放電プラズマ焼結法により 673K で焼結した Nd-Fe-B 磁石の密度は 6.7g/cm^3 (相対密度 88%) であったが、放電プラズマ焼結法で作製した Nd-Fe-B 磁石の密度は焼結温度が上がるにつれて向上することがわかった。

次に、放電プラズマ焼結法で作製した Nd-Fe-B 磁石の磁気特性を調べた。図 4 に放電プラズマ焼結法で作製した Nd-Fe-B 磁石の保磁力と焼結温度の関係を示す。原料に用いた Nd-Fe-B 合金急冷薄帯粉末の保磁力は 16 kOe と大きな保磁力が示すが、放電プラズマ焼結法で作製した Nd-Fe-B 磁石の保磁力は焼結温度が上がるにつれて低下していき、放電プラズマ焼結法により 873K で焼結した Nd-Fe-B 磁石の保磁力は 8 kOe しか示さないことがわかった。このことより、放電プラズマ焼結法で作製した Nd-Fe-B 磁石の密度は焼結温度が上がるにつれて向上するが、得られた Nd-Fe-B 磁石の保磁力は焼結温度が上がるにつれて低下していくため、本実験では Nd-Fe-B 合金急冷薄帯粉末は焼結温度 673–873 K で実験を行った。

図 5 に放電プラズマ焼結法で作製した Nd-Fe-B 磁石のヒステリシス曲線を示す。この試料は放電プラズマ焼結法により 723K で焼結した Nd-Fe-B 磁石のヒステリシス曲線で

ある。放電プラズマ焼結法で作製した Nd-Fe-B 磁石より圧力方向と平行な方向と垂直な方向の試料を切り出して、その磁気特性の違いを調べたところ、放電プラズマ焼結法で作製した Nd-Fe-B 磁石は平行な方向と垂直な方向ではほぼ同じヒステリシス曲線が得られた。このことより、放電プラズマ焼結法で作製した Nd-Fe-B 磁石は磁氣的に等方性な磁石であることがわかった。

図 6 に原料に用いた Nd-Fe-B 合金急冷薄帯粉末と放電プラズマ焼結法で作製した Nd-Fe-B 磁石の X 線回折図を示す。原料に用いた Nd-Fe-B 合金急冷薄帯粉末は Nd-Fe-B 磁石のハード磁性相である $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相からなることが確認できた。また、Nd-Fe-B 合金急冷薄帯粉末より放電プラズマ焼結法で作製した Nd-Fe-B 磁石も Nd-Fe-B 合金急冷薄帯粉末と同様に $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相からなることがわかった。このことより、Nd-Fe-B 合金急冷薄帯粉末はその主相であるハード磁性相の $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相が分解することなく固化成形されていることが確認できた。

なお、放電プラズマ焼結法で作製した Nd-Fe-B 磁石の X 線回折は $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相の結晶学的な配向を調べるため図に示すように放電プラズマ焼結法で作製した Nd-Fe-B 磁石の表面で測定したが、Nd-Fe-B 合金急冷薄帯粉末とほぼ同様な X 線回折図が得られた。このことより、放電プラズマ

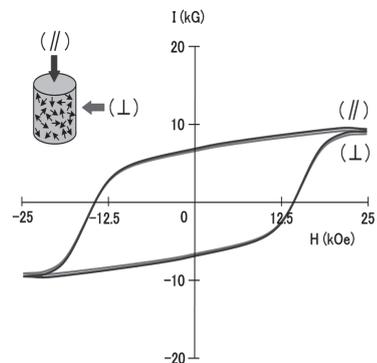


図5 放電プラズマ焼結法で作製した Nd-Fe-B 磁石のヒステリシス曲線

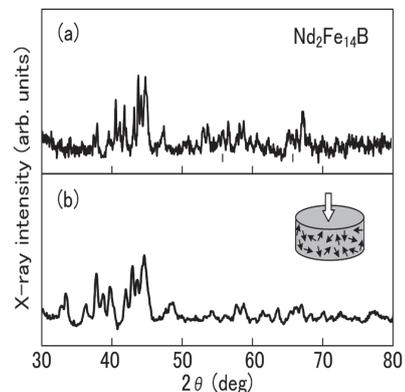


図6 Nd-Fe-B 合金急冷薄帯粉末 (a) と放電プラズマ焼結法で作製した Nd-Fe-B 磁石 (b) の X 線回折図

焼結法で作製したNd-Fe-B磁石中のNd₂Fe₁₄B相には結晶学的な配向がないことがわかった。以上の結果より、Nd-Fe-B合金急冷薄帯粉末より放電プラズマ焼結法で作製したNd-Fe-B磁石はハード磁性相のNd₂Fe₁₄B相がランダムな方向を向いている磁氣的に等方性の磁石であることが確認できた。

3.2 通電加熱変形で作製したNd-Fe-B磁石

放電プラズマ焼結法で作製したNd-Fe-B磁石は磁氣的に等方性の磁石であるが、それはNd-Fe-B磁石中のハード磁性相であるNd₂Fe₁₄B相に配向がないためであることもわかった。そこで、この磁氣的に等方性のNd-Fe-B磁石に通電加熱変形を施してハード磁性相であるNd₂Fe₁₄B相が配向できるかどうかについて検討した。

まず、放電プラズマ焼結法で作製したNd-Fe-B磁石が通電加熱変形できるかどうかについて検討した。図7に放電プラズマ焼結法で作製したNd-Fe-B磁石と通電加熱変形で作製したNd-Fe-B磁石の外観写真を示す。放電プラズマ焼結法で作製したNd-Fe-B磁石の通電加熱変形は放電プラズマ焼結温度673-873 Kよりも少し高い873-1073 Kで検討したところ、873Kでは十分に通電加熱変形できなかったが、923K以上の温度で通電加熱変形できることがわかった。

図8に通電加熱変形で作製したNd-Fe-B磁石の保磁力と変形温度の関係を示す。なお、放電プラズマ焼結法により673Kで焼結したNd-Fe-B磁石（相対密度88%）の試料は通電加熱変形中に割れを生じて十分に通電加熱変形できなかったが、723K以上で焼結したNd-Fe-B磁石（相対密度90%以上）の試料は923K以上の温度で通電加熱変形できることがわかった。通電加熱変形で作製したNd-Fe-B磁石の保磁力は放電プラズマ焼結法により作製したNd-Fe-B磁石の保磁力が高いほど保磁力が高いことが、また放電プラズマ焼結法により作製したNd-Fe-B磁石の保磁力によらず変形温度が上がるにつれて低下することがわかった。このことより、放電プラズマ焼結法により作製したNd-Fe-B磁石の保磁力が高ければ高いほど、また通電加熱変形時の変形温度が低ければ低いほど通電加熱変形で作製したNd-Fe-B磁石の保磁力が高くなることがわかった。

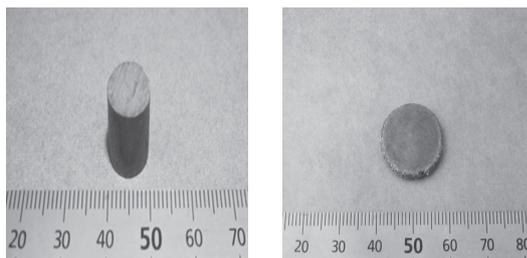


図7 放電プラズマ焼結法で作製したNd-Fe-B磁石(左)と通電加熱変形で作製したNd-Fe-B磁石(右)の外観写真

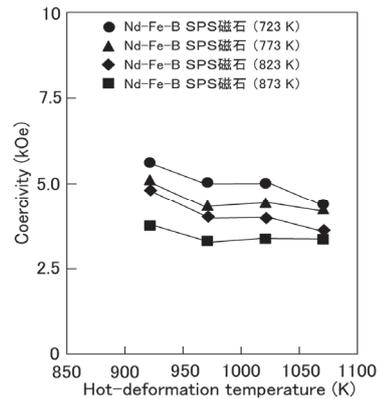


図8 通電加熱変形で作製したNd-Fe-B磁石の保磁力と変形温度の関係

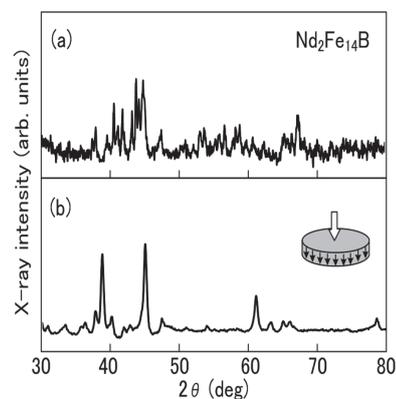


図9 Nd-Fe-B合金急冷薄帯粉末(a)と通電加熱変形で作製したNd-Fe-B磁石(b)のX線回折図

図9にNd-Fe-B合金急冷薄帯粉末と通電加熱変形で作製したNd-Fe-B磁石のX線回折図を示す。Nd-Fe-B合金急冷薄帯粉末と通電加熱変形で作製したNd-Fe-B磁石のX線回折図は大きく異なるが、通電加熱変形で作製したNd-Fe-B磁石もNd-Fe-B合金急冷薄帯粉末と同様にハード磁性相であるNd₂Fe₁₄B相からなることがわかった。しかし、通電加熱変形で作製したNd-Fe-B磁石は結晶学的な配向を調べるため図に示すように表面で測定したところ、(004)面(008)面などある特定の回折ピークが強く観察されることがわかった。このことより、通電加熱変形で作製したNd-Fe-B磁石中のNd₂Fe₁₄B相がc軸方向には結晶学的に配向していることがわかった。

以上の結果より、本研究目的である通電加熱変形で作製したNd-Fe-B磁石の組織制御および結晶配向が可能であることがわかった。また、通電加熱変形では原料に用いる放電プラズマ焼結法により作製したNd-Fe-B磁石の密度は90%以上必要であり、通電加熱変形温度は比較的高温(本実験では923K以上)である必要があることがわかった。

最後に、通電加熱変形で作製したNd-Fe-B磁石の磁気特性を図10に示す。放電プラズマ焼結法で作製したNd-Fe-B磁石は平行な方向と垂直な方向ではほぼ同じヒステリシ

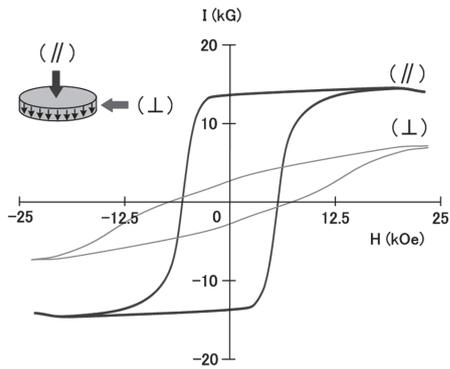


図 10 通電加熱変形で作製した Nd-Fe-B 磁石のヒステリシス曲線

ス曲線が得られたが、通電加熱変形で作製した Nd-Fe-B 磁石では平行な方向と垂直な方向でヒステリシス曲線が大きく異なり、磁氣的に異方性であることが確認できた。この通電加熱変形で作製した Nd-Fe-B 磁石は図のように $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相が配向した方向 ($\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相が c 軸方向) に平行に測定した時に大きな磁化を示す異方性の磁石であることがわかった。

4. 結言

本研究では、放電プラズマ焼結法により Nd-Fe-B 磁石のハード磁性相である $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相がランダムな方向を向いた磁氣的に等方性の Nd-Fe-B 磁石を作製した。次に、この磁氣的に等方性の Nd-Fe-B 磁石に通電加熱変形を施して

ハード磁性相である $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相が c 軸方向に配向した磁氣的に異方性の Nd-Fe-B 磁石を作製した。以上の結果より、通電加熱変形で Nd-Fe-B 磁石の組織制御および結晶配向が可能であることがわかった。現在は、得られた Nd-Fe-B 磁石の磁気特性の更なる向上のために通電加熱変形条件について検討している。

5. 発表論文

- 1) T. Saito and Y. Sajima, J. Jpn. Soc. Powder and Powder Metallurgy, (2016) in press.
- 2) T. Saito, Y. Sajima, and D. N. Hamane, Journal of Alloys Compd., (2016) in press.

謝 辞

本研究は公益財団法人天田財団平成 25 年度一般研究開発助成 (AF-2013020) の助成を受けたものです。ここに謝意を表します。

参考文献

- 1) M. Sagawa, S. Fujimura, N. Togawa, H. Yamamoto, Y. Matsuura: J. Appl. Phys., 2083-2087 (1984) 55.
- 2) R. W. Lee, E. G. Brewer, and N. A. Schaffel: IEEE Trans. Mag., 1958-1963 (1985) MAG-21.
- 3) B. M. Ma, D. Lee, B. Smith, G. Gaiffi, B. Owens, H. Bie, G. W. Warren: IEEE Trans. Magn., 2477-2479 (2001) 37.
- 4) T. Saito: J. Mater. Sci. Lett., 209-211 (2001) 20.