論 説

UDC 669. 14. 018. 58:537. 611. 3:678. 027

異方性プラスチック磁石の製造条件と磁気特性の 関係について

安 保 武 志*, 元 根 隆 博*, 古 谷 嵩 司*

On the Relationship of Magnetic Properties and Producing Conditions of Anisotropic Plastic Bonded Magnet

Takeshi Anbo, Takahiro Motone and Takashi Furuya

Synopsis

In order to produce a high performance anisotropic plastic bonded magnet which was composed of ferrite powder and thermoplastic material, forming by injection moulding in magnetic field was studied.

The results obtained were as follows;

- (1) High magnetic properties were obtained in case that particle size of ferrite powder was $1.0\sim 1.2\mu$.
- (2) Magnetic properties were greatly increased by annealing of ferrite powder at $950\sim 1050^{\circ}\text{C}$ before blending with plastic material.
- (3) B_r and H_c increased rapidly as a function of higher magnetic field strength, and saturated for about 10 000 Oe when magnetizing time was over one second.
- (4) Increasing of content of ferrite powder in plastics improved magnetic properties, but deteriorated moulding properties. B_r 2 300~2 500G, H_c 1 900~2 300Oe, and $(BH)_{max}$ 1.2~1.4MGOe were obtained for about 89 wt.% of ferrite powder.

1. 結 言

永久磁石材料のうち鉄酸化物等を原料粉としたフェライト焼結磁石は比較的性能がよく廉価なため民需・産業用を問わず最も多く使用されている。このフェライト磁石は、一般に粉末を成形後1200℃前後の高温で焼結して得られるため変形が大きく、その状態で最終寸法を得ることは難しく、その後研摩加工など複雑な工程を加える必要があ

る。一方、磁石粉末をプラスチック材料に混合して成形されるプラスチック磁石は、上記の焼結工程は不要で、また寸法精度がよいので加工工程などを省略することができる。ところが単に磁石粉末をプラスチック材料に混合し成形しただけでは、プラスチック材料の体積分だけ磁気特性が低くなる。その磁気特性を高めるためには、混合されている磁石粉末の配列に異方性を付与することが有効である。異方性化する方法には、大きく分けると機械的に剪断応力を加えて行う方法と、磁気的に行う方法の2通りがある。前者は磁石粉末が扁平な形状であることを利用して機械的に配列

昭和55年4月15日 受付

*大同特殊鋼㈱研究開発本部中央研究所

する方法でロールによる圧延などが一般的製法である¹⁾。後者は磁石粉末の結晶磁気異方性を利用して、印加磁界の方向にその容易磁化軸を揃えるもので²⁾、この方法には磁界中圧縮成形、磁界中押出成形、磁界中射出成形^{3), 4)}などがある。

著者らは後者の磁石粉末を磁氣的に配列する方法について種々検討した。その結果特殊な熱可塑性樹脂をバインダーとして用い、磁界中射出成形法により高性能の異方性プラスチック磁石を開発することができた。本稿では、フェライト磁石粉末を用いた場合の製造条件と磁気特性の関係を明らかにする。

2. 試料および実験方法

フェライト磁石粉末は、モル比 $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{MO}$ (M: Ba または Sr) 5.5~5.9の割合で配合し、1150℃~1300℃で焼成したものを粗砕後アトライターにより湿式で微粉碎した。その後、乾燥し供試粉末とした。なお粒度は空気透過法により測定し、また比表面積を算出した。

上記フェライト磁石粉末と樹脂を適当量混合し、熱ローラーにより十分混練後、ペレット化し供試成形原料とした。まず簡単な磁界中加熱圧縮法による予備試験を行い、熱可塑性樹脂を用いた場合の成形要因の影響を明らかにした。その試験結果にもとづいて概略の条件を決め、各種の熱可塑性樹脂について、磁界中射出成形により $\phi 150 \times 6 \text{ mm}$ の円板状試料を作製し供試材とした。磁気測定はその供試材から約 $25 \times 25 \times 6 \text{ mm}$ に切断したものについて、自記磁束計により行った。

3. 実験結果および考察

3.1 磁石粉末および成形要因の影響

3.1.1 焼成温度

Fig. 1 にバリウムフェライト磁石の焼成温度とそれを微粉碎してエチレン-酢酸ビニール共重合体樹脂⁵⁾と混合し、220℃で磁界中圧縮成形した場合の磁気特性の関係を示す。モル比 n が5.5の場合には焼成温度1250℃以上でほぼ一定の磁気特性が得られるが、モル比 n が高い5.9の場合には低温側で低い磁気特性となる。しかし高温側では、 n が5.5の場合と同等の B_r 2450~2500G, H_c 2200~2300Oe, $(BH)_{\max}$ 1.4MGOe 程度の磁気特性が得られる。Fig. 2 にストロンチウムフェラ

Fig. 1. Relation between magnetic properties of plastic bonded magnets and firing temperature of barium ferrite powder with mole ratio of 5.5 and 5.9.

Fig. 2. Relation between magnetic properties of plastic bonded magnets and firing temperature of strontium ferrite powder with mole ratio of 5.5 and 5.9.

イト磁石粉末の場合の焼成温度と磁気特性の関係を示す。焼成温度が高くなるにしたがって磁気特性が高くなり、1250℃以上ではほぼ一定で B_r 2500~2600G, H_c 2300~2400Oe, $(BH)_{max}$ 1.4~1.5MGOeの高い値が得られる。このようにストロンチウムフェライト磁石粉末を使った場合の方がバリウムフェライト磁石粉末の場合より高い特性が得られる。それはストロンチウムフェライト磁石の方が異方性定数 K_1 , および単磁区臨界直径 d_c が大きいことに起因しているものと思われる。

3.1.2 粒 径

Fig. 3に空気透過法により測定した磁石粉末の平均粒径と磁気特性の関係を示す。Fig. 3から明らかなように、平均粒径1.0~1.2 μ の場合に高い磁気特性が得られる。平均粒径がこの範囲より小さくても、大きくても磁気特性が低くなる傾向が見られる。粒径が小さくなると磁石粉末の嵩密度が小さくなり、比表面積が大きくなる。そのため、磁石粉末と樹脂の混合物を加熱溶融した場合、粘性が高くなり、粒子の配向率が低くなるため磁気特性が低くなる。一方粒径が大きくなると、逆に粘性が下がり粒子自身動きやすくなるが、多磁区粒子が多くなるため配向率が低くなり⁶⁾同様に磁気特性が低くなる。

3.1.3 焼 鈍

Fig. 4に磁石粉末の微粉碎後の焼鈍温度と磁気特性の関係を示す。プラスチック磁石用粉末とし

Fig. 3. Relation between particle size of ferrite powder and magnetic properties of plastic bonded magnets with 90wt% ferrite powder and 10wt% ethylene-vinylacetate copolymer.

て微粉碎したままの粉末を使用した場合の磁気特性は低く, $(BH)_{max}$ 1.0MGOe以上を得ることは容易でない。しかし Fig. 4に示すように樹脂に混合する前に、800℃以上の温度で焼鈍することにより大幅に磁気特性が向上する。Fig. 5に磁石粉末の保磁力 H_c および見掛けの比表面積の焼鈍温度による変化を示している。保磁力 H_c は焼鈍温度950~1000℃で2倍以上に向上し、そのときの比表面積は未焼鈍粉に比較し約 $\frac{1}{2}$ に減少している。このように磁石粉末の混練前の焼鈍により磁気特性が向上するのは、Fig. 5に示すように保磁

Fig. 4. Effect of annealing of ferrite powder on magnetic properties of plastic bonded magnets.

Fig. 5. Change of intrinsic coercive force H_c and specific surface area of ferrite powder by annealing.

Fig. 6. Effect of magnetic field strength on magnetic properties of plastic bonded magnets with ferrite powder of 88wt% and 90wt%.

力 H_c の増大と過粉碎された超微粉の凝結により全体の嵩密度が増大し、磁石粉末と樹脂の混合物の熔融粘度が低くなり、粒子の配向度が増大するためと思われる。このように焼鈍により保磁力が増大するのは、微粉碎過程で粒子に格子欠陥に基づく格子歪が生じ、結晶磁気異方性が低下するが、これが焼鈍により回復するためと考えられている⁷⁾。

3.1.4 印加磁界の影響

Fig. 6 に磁石粉末の粒径が 0.9μ , 1.0μ および 1.3μ 、混合率が 88wt% および 90wt% のそれぞれの場合に、印加磁界の強さを変えた場合の磁気特性を示す。Fig. 6 (a) に示すように、粒径が小さい場合には粉末の混合量が少ない 88wt% の方が印加磁界に対して磁気特性 B_r , H_c の立上りが早く、10 000Oe 以下の印加磁界で飽和する。しかし粉末混合量の多い 90wt% の場合には、印加磁界に対する磁気特性 B_r , H_c の立上りが遅れ飽和するためには 15 000Oe 程度の高い磁界が必要である。 B_r , H_c の値そのものも粉末混合量の少ない方がかえって高い値を示している。一方粒径が大きい 1.3μ の場合には、これとは逆に粉末混合量の多い方が高い B_r , H_c の値を示す。この場合の磁気特性の印加磁界に対する傾向は、粉末の混合量に関係なくほぼ同じで 10 000Oe 程度の磁界

Fig. 7. Influence of magnetizing time on magnetic properties of plastic bonded magnets with ferrite powder of 88wt% and 90wt%.

で飽和する。したがって印加磁界としては10 000～15 000Oe 程度が望ましい。

Fig. 7 に磁界の印加時間と磁気特性の関係を示す。この場合の印加磁界の強さは15 000Oe である。Fig. 7 より明らかなように印加磁界が十分強い場合には、1 sec 程度の短い時間で飽和し、磁石粉末の配列が非常に短い時間で行われることがわかる。

以上の予備試験結果にもとづき各種の熱可塑性樹脂につき磁界中射出成形法による諸条件について検討した。次にそれらの代表的なものについて磁気特性を主体に示す。

3.2 磁界中射出成形

3.2.1 射出温度

Fig. 8 にエチレン共重合体樹脂を用いた場合の磁界中射出温度と磁気特性の関係を示す。射出温度が高くなるにしたがって磁気特性が向上する。成形温度としては樹脂の分解さえ心配なければできるだけ高い方が好ましい。Fig. 9 に射出温度を変えた場合の成形性のめやすとなる射出成形機のスクリー回転数と射出速度の関係を示す。Fig. 9 より明らかなように、射出温度が高くなるにしたがってスクリー回転数および射出速度もほぼ直線的に増大する。すなわち成形性が向上しておりこれにより、磁気特性が向上したものと考えられる。逆に温度が低い場合には、粘度が高くなり流動性が悪くなり、成形不能になる。

3.2.2 粉末混合量

Fig. 8. Relation between magnetic properties of plastic bonded magnets and injection moulding temperature.

Fig. 10 に磁石粉末とプラスチック材料の混合量を変えた場合の磁気特性の変化を示す。今回の実験の範囲では、磁石粉末の混合量が高くなるにしたがって磁気特性は増大している。しかしフェライト粉末の混合量が増大するにしたがって成形性は低下する。Fig. 11 にその様子を示す。このように粉末含有量が多過ぎると粘度が高くなり、流動性が悪くなり、成形不能になる。したがって磁石粉末の混合量は、成形性の面から上限が決定される。

3.2.3 印加磁界

印加磁界の影響については磁界中加熱圧縮法の

Fig. 9. Change of revolutions of screw and injection speed versus injection moulding temperature.

Fig. 10. Relation between magnetic properties of plastic bonded magnets and content of ferrite powder.

場合の結果をFig. 6～7に示したが、改めて射出成形における条件で見直しを行った。その結果得られた磁気特性と印加磁界の関係をFig. 12に示す。図から明らかなように、この射出成形法の場合もやはり10 000Oe程度の印加磁界が必要であることがわかる。

3.2.4 磁気特性

これまでの試験結果のうち代表例として、エチレン共重合体樹脂およびポリアミド系樹脂を用い

Fig. 11. Change of revolutions of screw and injection speed versus content of ferrite powder.

Fig. 12. Relation between magnetic properties and magnetizing field strength in injection moulding.

た場合の磁気特性について以下に示す。

Table 1 にそれぞれエチレン共重合体樹脂を用いたもの(M-1)およびポリアミド系樹脂を用いたもの(M-2)の磁気特性を示す。またそれらの減磁曲線をFig. 13にまとめて示す。磁気特性は等方性のフェライト磁石より高く、 B_r 2 300～2 500G、 iH_c 1 900～2 300Oe、 $(BH)_{max}$ 1.2～1.4MGOeである。特に保磁力 iH_c が等方性フェライト磁石より高いので、作動点が低パーミアンスの場合に有利である。なお磁束の温度変化は通常のフェライト磁石の場合と同様である。

Table 1. Magnetic properties of plastic bonded magnets.

	M-1	M-2
Remanence B_r (G)	2 300-2 500	2 300-2 500
Coercivity iH_c (Oe)	2 000-2 300	1 900-2 200
Intrinsic coercivity H_c	3 000-3 500	2 600-2 900
Maximum of energy product $(BH)_{max}$ (MGOe)	1.2-1.4	1.2-1.4
Temperature coefficient of induction (%/°C)	-0.18	-0.18

Fig. 13. Demagnetizing curve of plastic bonded magnets.

Fig. 14 に着磁する場合の印加磁界と B_r , bH_c の関係を示す。Fig. 14 より飽和磁界としては、8 000~10 000Oe 程度が必要である。

Fig. 15 に -60°C から 80°C まで温度変化した場合の B_r , bH_c , iH_c および $(BH)_{\max}$ の各特性ごとの温度変化の様子を示す。 B_r および iH_c は温度に対してほぼ直線的に変化し、 B_r の温度係数は

Fig. 14. Magnetizing curves of plastic bonded magnets (M-1).

Fig. 15. Change of B_r , iH_c , bH_c and $(BH)_{\max}$ of plastic bonded magnets (M-1) versus temperature.

$-0.184\%/^{\circ}\text{C}$ で、 iH_c の温度係数は $0.133\%/^{\circ}\text{C}$ である。 B_r の温度変化はフェライト磁石の場合と同等である。

Fig. 16 にエチレン共重合体樹脂を用いたM-1を 100°C で加熱保持した場合の磁気特性の変化を示す。図から明らかなように 100°C で1 000hr 以上加熱しても磁気特性の劣化はない。

Fig. 17 にポリアミド系樹脂を用いたM-2を150

Fig. 16. Change of magnetic properties of plastic bonded magnets (M-1) versus keeping time at 100°C in the air.

Fig. 17. Change of magnetic properties of plastic bonded magnets (M-2) versus keeping time at 150°C in the air.

Photo. 1. View of plastic bonded magnets for various application.

℃で加熱保持した場合の磁気特性の変化を示す。この場合には150℃で1000hr以上長時間加熱しても磁気特性の劣化が認められない。

以上のような射出成形でつくられるプラスチック磁石は、複雑な形状の製品ができるなどの特徴を有している。Photo. 1に各種異方性プラスチック磁石の外観を示す。

本報では直接触れなかったが、プラスチック磁石は従来のフェライト焼結磁石に比較し、衝撃強度が強くまたドリル旋削などの切削加工が容易であるなどの特徴とあいまって、適用範囲は拡大されるものと考えられる。

4. 結 言

フェライト磁石粉末をプラスチック材料に混合し、磁界中射出成形により、異方性プラスチック磁石を製造する際の製造条件と磁気特性の関係を明らかにするため種々検討し、次に示すような結果を得た。

- (1) 磁石粉末としては、平均粒径 $1.0\sim 1.2\mu$ が最適である。
- (2) 樹脂に混練前磁石粉末を焼鈍することにより、磁気特性が大幅に向上する。焼鈍温度としては $900\sim 1050^{\circ}\text{C}$ が適当である。

- (3) 成形時の印加磁界の強さとしては、 $10\,000\sim 15\,000\text{Oe}$ 程度が望ましい。
- (4) 成形温度の上昇により、磁気特性・成形性が向上するが、使用樹脂の分解などにより制限されるため、樹脂の種類により適当な温度を設定することが有効である。
- (5) 磁石粉末の混合量が多くなると磁気特性は向上する傾向にあるが、成形性はほぼ直線的に低下するので、成形品の形状その他の条件により適正混合量を決める必要がある。
- (6) エチレン共重合体樹脂およびポリアミド系樹脂を用いた場合の試作品の磁気特性は、 $B_r\,2\,300\sim 2\,500\text{G}$, $H_c\,1\,900\sim 2\,300\text{Oe}$, $(BH)_{max}\,1.2\sim 1.4\text{MGOe}$ であり、前者は 100°C 、後者は 150°C の各温度に長時間加熱しても磁気特性の劣化は認められない。

最後に本研究の遂行にあたり大同特殊鋼㈱研究開発本部長 澤繁樹博士ならびに前当社参与 西義徹博士には、研究当初より熱心なご指導をいただいた。また、射出成形技術については、三井ポリケミカル㈱大谷潔、轡義和両氏よりご指導をいただいた。また実用化にあたり、大同特殊鋼㈱常務取締役 藤原達雄博士、中央研究所副所長 加藤哲男博士をはじめ、当社中央研究所の多くの方々のご協力を得ましたので関係各位に心から謝意を表します。

(文 献)

- 1) 特公昭 37-3321 (1962)
- 2) 特公昭 39-28287 (1964)
- 3) G.Samow: Radio Mentor, 12 (1970), 870
- 4) G.Samow: Elektro-Anzeiger, 26 (1973), 453
- 5) 特 許 No. 961226 (1979)
- 6) 西・安保: 日特技報, 8 (1972), 16
- 7) H.G. Richter: DEW-Technische Berichte, 8 (1968), 4, 192