研 究

MIM用バインダを用いて作製した部位内で配向方向が異なる磁性体

沖本 邦郎^{☆1}, 黒田 智孝^{☆2}, 小路 和弘^{☆3}, 浦岡 秀隆^{☆4}, 木下 浩光^{☆4}

^{☆1} 摂南大学, 〒572-8508 寝屋川市池田中町17-8.

^{☆2} 摂南大学大学院工学研究科, [(現)日本電波工業株], 〒350-1321 狭山市上広瀬1275-2].

^{☆3} 摂南大学大学院工学研究科, [(現)アイダエンジニアリング株], 〒229-1181 相模原市大山町2-10].

^{☆4} 第一セラモ株, 〒529-1403 東近江市五個荘日吉町432.

Magnetic Sintered Compact with Different Alignment of Crystallites using MIM Binder

Kunio Okimoto^{☆1}, Tomotaka Kuroda^{☆2}, Kazuhiro Kohji^{☆3}, Hidetaka Uraoka^{☆4} and Hiromitsu Kinoshita^{☆4}

^{☆1} Setsunan University, 17-8 Ikeda-nakamachi, Neyagawa 572-8508.

^{☆2} Graduate School, Setsunan University, [Present Address: Nihon Dempa Kogyo Co.Ltd., 1275-2 Kamihirore, Sayama, Saitama 350-1321].

^{☆3} Graduate School, Setsunan University, [Present Address: Aida Engineering Co.Ltd., 2-10 Ohya-cho, Sagami-hara, Kanagawa, 229-1181].

^{☆4} Daiichi Seramo Co.Ltd., 432 Gokasyoh-hiyoshimachi, Higashiohmi, Shiga 529-1403.

Received April 8, 2005

SYNOPSIS

The magnetic product with different alignment of the crystallites produced by conventional magnetic alignment pressing is restricted in shape and size. This paper presents two methods to solve this problem. Both methods used a compound of Sr-ferrite powder mixed with a MIM binder. One method was the combined sinter joining of a disk and ring. The inner disk was compacted under a magnetic field and the ring was compacted under a non-magnetic field. In this method, a different mixing ratio of the same kind of MIM binder was used for the disk and the ring. The two compacts were assembled into a unit and then sintered at 1225°C after debinding. The other method was a two-step integration forming process. The MIM binders used in this method were different than that used in the combined sinter joining. As the first step, the inner disk was compacted under a magnetic field using a compound of a high-melting-point MIM binder. As the second step, the compound was mixed with a low-melting-point MIM binder and then poured into the circumference of the inner disk compact under a non-magnetic field to complete the integration. The integrated compact was debinded and then sintered at 1225°C. The joint strength between the orientated and non-orientated parts and also the magnetic characteristics of the orientated part of the sintered Sr-ferrite were investigated for both methods. The joint strength of the sintered Sr-ferrite compact obtained by the two-step integration forming process was superior to that obtained by the sinter joining. The maximum joint strength obtained by the two-step integration forming process was 20.2 MPa.

KEY WORDS

Orientation forming, alignment, magnetic powder, MIM binder, joint strength

1 緒 言

近年, 磁性部品の高機能化・高性能化に伴い, 1つの部品内で磁性を有する部分と非磁性の部分から構成¹⁾されるものや, 1つの磁性部品内で微結晶粒の配向方向が異なるもの²⁾が必要となっている。後者のような磁性部品を一体成形しようとする, 磁界(磁場)配向プレス機や金型の構造が複雑になる。そこで, 著者らは1つの磁性部品内で磁氣的配向度が異なる複雑形状のものを作製するための手段として, Sr-フェライト粉単味で配向度が異なる単純形状のものを予備成形しておき, これを組み立てた後に焼結接合して一体化させる方

法³⁻⁵⁾について検討した。この方法の場合, Sr-フェライト粉圧粉体の機械的強度が弱いために組み立ての工程を慎重に行わないと, 組み立ての際にあるいは焼結接合後にクラックが発生することがあった。

一方, 複雑な形状の小物部品を作製するための成形プロセスとして粉末射出成形(MIM)が次第に重要性を増している。このMIMプロセスを用いてSUS316L/SUS430Lステンレス鋼⁶⁾やSUS316L/硬質材料⁷⁾などの異層材が製作されており, またバイメタル⁸⁾に関する報告もある。ここで各種のステンレス鋼と硬質材料からの異層材に関しては, 針幸ら⁹⁾がそれ

らの材料の焼結収縮挙動を詳細に観察し、その結果に基づいてステンレス鋼と硬質材料の適切な組み合わせ方について報告している。

著者は、異方性磁石における磁氣的配向を促進させるための手段としてMIM用バインダを用いる方法を提案し⁹⁾、配向度を向上させるための成形条件^{10,11)}に関して検討を行ってきた。本研究は、1つの磁性部品内で微結晶粒の配向方向が異なるものを作製するに際して、上記のSr-フェライト粉末の場合における機械的強度やクラック発生の問題点を解消するために、MIMバインダで混練したコンパウンドを用いる2種類の方法について検討したものである。その1つは磁界配向した成形体と無配向の成形体を焼結接合するもので、他の方法は先に磁界配向成形した部位の周りにそれよりも融点の低いコンパウンドを無配向で流入させて一体化してから脱バインダ・焼結する方法(2工程一体成形化法と呼称)である。ここでは、これらのプロセスの特徴や接合強度について報告する。

2 実験方法

焼結接合法と2工程一体成形化法で用いた磁性粉は、焼結磁石用の平均粒径 $0.75\text{ }\mu\text{m}$ の異方性Sr-フェライト粉で、これに $0.89\text{ mass}\%\text{CaCO}_3$ と $0.40\text{ mass}\%\text{SiO}_2$ が焼結助剤として添加されている。一般的なMIMプロセスの場合におけるコンパウンドの流動性は、 $Q=0.05\text{ cm}^3\cdot\text{s}^{-1}$ が標準的なものとされている。ここで、 Q の測定条件はJIS K7210に準じて圧力は $p=0.98\text{ MPa}$ 、ダイの穴直径は $d=1.0\text{ mm}$ 、ダイの長さは $L=1.0\text{ mm}$ である。流動性 Q がこれよりも劣る場合には金型への充填性が悪くウェルドマーク発生などの原因となり、逆に流動性が良過ぎてもバインダへの粉末の均一分散の度合いが低下してバインダ層が優先的に流動すると言われている。そこで、本実験で行った2つのプロセスにおいては $Q=0.05\text{ cm}^3\cdot\text{s}^{-1}$ の流動性が得られることを基本として磁性粉とバインダの混合割合および設定温度を定めた。

焼結接合の実験においては、まずSr-フェライト粉とMIMバインダのコンパウンドを使用してFig.1のように磁界配向した円柱状インナー(金型直径 11.00 mm)と無配向のリング状アウトター(金型の内側直径 11.09 mm)を予備成形する。配向磁界は円柱状成形体の高さ方向から $0\sim 1000\text{ kA}\cdot\text{m}^{-1}$ を作用させる。インナーとアウトターの成形条件の詳細はFig.2 (a), (b)のよ

Fig.1 Schematic illustration of sinter joining process.

うである。インナーとアウトターを組み合わせた後、大気中でFig.3のような温度-時間線図で脱バインダおよび焼結($1225\text{ }^\circ\text{C}\times 1\text{ h}$)を行うことで一体化させ、所定の配向磁性部品を作製する。ここで、接合を促進させるためにはインナーに比べてアウトターの焼結収縮率を大きくするとよい。そこで、バインダの混合割合はインナーに $13.79\text{ mass}\%$ のコンパウンド、アウトターにはこれよりもバインダ量が多い $15.25\text{ mass}\%$ のコンパウンドを使用した。それぞれのコンパウンドの成分は、複合アクリル系ポリマーを主体にアタクティックポリオレフィン、パラフィンワックス、可塑剤を添加したものである。なお、本実験用金型は接合部のインナーとアウトター内側の部分に勾配をつけていない。そのため磁性粉末の場合には、インナー・アウトター間のクリアランスを本実験よりも小さく

Fig.2 Schematic illustration of forming and aligning patterns of sinter joining.

Fig.3 Temperature-time diagram in debinding and sintering process.

すると粉末の種類によっては圧粉体強度とスプリングバックの点から組み立てが困難となり、クリアランスはこの程度が限度である。接合強度は接合部のせん断試験によって $\tau = P / \pi DL$ より求めた。ここで、 P はせん断試験における最大荷重、 D は接合部直径、 L は接合部の高さである。

一方、2工程一体成形化法のプロセスはFig.4の概念図に示す通りである。まず高融点MIMバインダで混練した磁性粉コンパウンドを用いて、焼結接合と同じく円柱状の成形体を高さ方向から配向成形する。次に、配向成形した予備成形体の周りに低融点MIMバインダで混練した磁性粉コンパウンドを無配向で注入して一体化する。詳細な成形条件をFig.5に示す。その後、Fig.3で示した脱バインダ・焼結条件で所定の磁性部品を作製する。成形プロセスの第一工程である配向部の予備成形において高融点コンパウンドを用いるのは、後の一体成形化工程で予備成形体が溶融するのを防ぐためであり、

Fig.4 Schematic illustration of two-step integration process.

(a) Forming of aligned inner by high melting point compound

(b) Integration by low melting point compound

Fig.5 Schematic illustration of forming and aligning patterns of two-step integration process.

また配向部を先に作る方が配向装置を簡単化できるためである。なお、本実験ではFig.4のように配向部をインナー側として無配向部をアウター側に配置したが、これとは逆に配向部がアウター側で無配向部がインナー側であっても一向に差し支えない。この実験でSr-フェライト粉と混練するMIMバインダの混合配合は高融点コンパウンド、低融点コンパウンド共にフェライト粉に対して15.25 mass%である。高融点MIMバインダの組成はポリプロピレン・複合アクリル系ポリマーを主体に、パラフィンワックス・可塑剤を添加したものである。後の工程で流し込む低融点MIMバインダの組成はアクリルポリマーを主体に変性ポリエチレンワックス・活性剤・可塑剤を加えたものである。接合強度をせん断試験で求めたことは焼結接合法と同じである。

3 実験結果および考察

Fig.6は焼結接合法と2工程一体成形化法で得られた接合強度を、インナー部に作用させた配向磁界の強さとの関係で示したものである。図中において焼結接合のデータをS. joining, 2工程一体成形化をTwo-stepで略称して示す。図から明らかに接合強度は2工程一体成形化法の方が焼結接合法よりも大きく、接合強度の最大は20.2 MPaであった。焼結接合におけるインナー焼結体の形状・寸法を詳細に観察すると、形状・寸法が微妙に変化しており、接合部全面でインナーとアウターが真実接触している状態でなかった。一方、2工程一体成形化法では一体化した後に脱バインダ・焼結されるので、接合部における真実接触面積が多いと考えられ、このことが2工程一体成形化法の接合強度が焼結接合法のそれよりも大きくなった主因であると判断される。また、2工程一体成形化においては配向磁界による接合強度の変化が少ないが、焼結接合においては配向磁界を約400 kA·m⁻¹まで作用させると接合強度が大きくなる傾向にある。これは、焼結接合では脱バインダ後の焼結工程で一体化されるためであると考えられるが、この点についてインナー配向部の焼結収縮率の点から考察する。

Fig.6 Relationship between joint strength and applied magnetic field.

焼結接合における接合強度の形成がアウター部の焼結収縮率がインナー部のそれよりも大きいことによる、すなわち焼結ばめに基づく場合には、接合強度はアウターの焼結収縮率 ε_{θ_0} ($=\ln Dg/Ds$)とインナー焼結収縮率 ε_{θ_1} との差 $\Delta\varepsilon_{\theta}[(\varepsilon_{\theta_0}-\varepsilon_{\theta_1})]$ に依存する。ここで、 Dg はコンパウンド圧粉体の直径、 Ds は焼結体直径である。磁界配向用の異方性Sr-フェライト粉を焼結すると、配向方向の焼結収縮率がそれ以外の方向の収縮率よりも大きく、その変化の度合いは配向磁界の強さに依存する¹¹⁾。そこで、アウター用の15.25 mass%コンパウンドをインナー成形用の $\phi 11.0$ mm金型で円柱状に磁界配向成形して直径収縮率 ε_{θ_0} を求め、これを便宜上、アウター直径収縮率とみなす($\varepsilon_{\theta_0}=0.201$)。そしてFig.7において●印で示したインナー用の13.79 mass%のコンパウンドの収縮率 ε_{θ_1} との差 $\Delta\varepsilon_{\theta}$ を求め、 $\Delta\varepsilon_{\theta}$ と焼結接合強度の関係をFig.8に示す。なお、Fig.7には焼結接合における高さ方向の焼結収縮率 ε_z (○印)も参考のために示す。Fig.8で示した焼結接合における結果から明らかのように、 $\Delta\varepsilon_{\theta}$ が増加すると接合強度は増大し $\Delta\varepsilon_{\theta}$ がある程度以上になると強度はほぼ一定となる。この傾向は前に行ったMIMバインダを用いないSr-フェライト粉単味の場合³⁾とほぼ同じである。また接合強度もS-フェライト粉単味の場合³⁾とほぼ同じレベルであった。著者らはステンレス鋼/Fe-47Ni

Fig.7 Effect of applied magnetic field on sintering shrinkage in the sintered compact.

Fig.8 Effect of difference in sintering shrinkage on joint strength.

パーマロイの複合磁性体の焼結接合¹²⁾において、ステンレス鋼の種類や粒度・粒度分布によって接合強度の形成機構が熱膨張による拡散効果や焼結収縮率 $\Delta\varepsilon_{\theta}$ (焼結ばめ)による拡散効果に変化することを明らかにした。本研究の焼結接合における接合強度の形成機構は、Fig.6とFig.8の結果より焼結ばめが支配的であると判断される。

一方、Fig.7の図中において■印で示した2工程一体成形法における ε_{θ} はインナーだけを脱バインダ・焼結した時の収縮率である。 ε_{θ} は配向磁界の強さが大きくなると減少し、焼結接合法と同じような挙動を示している。しかし、Fig.6の接合強度には配向磁界の影響が焼結接合よりも少ない。これは、2工程一体成形法では配向した予備成形インナー部と後から注入するアウター部が一体化されてから脱バインダ・焼結が行なわれるためであると考えられる。

Fig.9はインナー部の磁気的配向度 Br/J_s に及ぼす配向磁界の強さの影響を焼結接合法と2工程一体成形法について示したものである。配向度 Br/J_s の最大値は0.89で改善の余地があるが、配向磁界の強さを細かく変化させた焼結接合においては磁界の強さが $400 \text{ kA} \cdot \text{m}^{-1}$ 程度までは Br/J_s が増大するが、磁界の強さがそれ以上では Br/J_s の増大が緩やかになっている。この傾向はFig.6で示した焼結接合の強度と対応している。Table 1は Br/J_s 以外のインナー焼結体の磁気特性を配向磁界の強さが $1000 \text{ kA} \cdot \text{m}^{-1}$ の場合について示したものである。磁気特性は焼結接合法と2工程一体成形法で差なく、また焼結体密度は $4.85 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ (密度比0.95)で同じであった。

Sr-フェライト粉単味の焼結接合においては圧粉体強度が弱いためにインナーとアウターの組み立てを慎重に行う必要があったが、本実験のMIMバインダによるコンパウンドを用いた焼結接合法ではこの組み立て操作が格段に容易であった。またSr-フェライト粉単味の焼結接合ではアウターを4~6分割した半径方向にクラック³⁾が発生することがあったが、MIMバインダで混練したコンパウンドを用いることによってこれを大幅に防ぐことができた。一方、2工程一体成形法の場合には、低融点バインダで成形したアウター部と金型との離型性にやや課題があり、成形体を金型から取り出す際に

Fig.9 Relationship between degree of orientation Br/J_s and applied magnetic field.

Table 1 Magnetic characteristics of inner compact fabricated by sinter joining and two-step integration processes (applied magnetic field: $1000 \text{ kA} \cdot \text{m}^{-1}$).(Sintering condition : $1225^{\circ}\text{C} \times 1\text{h}$)

Process	Br [T]	Hc j [$\text{kA} \cdot \text{m}^{-1}$]	(BH) max [$\text{kA} \cdot \text{m}^{-1}$]	ρ [$\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$]
Sinter joining	0.405	233.5	21.3	4.85
Two-step integration	0.365	277.4	24.4	4.85

Fig.10 Fractured surfaces observed after joint strength test.

時たま成形体の形状が変化し、それが原因で焼結後のアウター部にクラックが発生することがあった。また、脱バインダと焼結時間を Fig.3 で示したよりも短時間、例えば 50h 程度以下で行うと、クラックが発生することがあり、クラック発生を防止するためには脱バインダ・焼結条件の適切な選定が重要であることを改めて確認した。

2 工程一体成形化法による焼結体の接合強度試験後の破壊面は Fig.10 (a) に示すようにインナーの一部を巻き込んで破壊する形態が多かった。それに対して、焼結接合では (b) のようにアウターの一部にクラックが発生してインナーとアウターが引き剥がされるように破断し、インナー部は平滑な形態が多く見られた。このような破壊挙動の相違は、本研究の Sr-フェライト材料の場合には一体化してから焼結する方が有利であることを示唆している。

4 ま と め

1 つの磁性部品内で配向方向が異なるものを作製するために、MIM バインダで混練した Sr-フェライト磁性粉コンパウンドを用いる 2 種類の方法について検討した。その 1 つは配向部インナーと無配向部アウターを焼結接合する方法で、もう 1 つは配向成形した予備成形体の周りに無配向の低融点コンパウンドを流入させて一体化させる 2 工程一体成形化法である。実験の結果、前者の焼結接合における接合強度は Sr-フェライト粉単味の焼結接合とほぼ同じであったが、インナーとアウターの組み立てが磁性粉単味の場合よりも格段に容易で、接合体のクラック発生を大幅に低減させることができた。一方、2 工程一体成形化法は焼結接合よりも接合強度が優れており、最大で 20.2 MPa の強度が得られた。したがって接合強度の点からは 2 工程一体成形化法がよいと判断された。

謝 辞

最後に、卒業研究として実験に協力してくれた摂南大学工学部機械工学科 松浦智博君、中野祐二君、松下敦司君、西田淳君、宮脇理君、石渡浩二君、安田政弘君、和泉祐君、増田智則君、松井祐樹君、久次米真史君、土田剛君、松下峰浩君(当時)、磁気測定を行っていただきました(株)NEOMAX 研究開発センタ 細川誠一氏に感謝します。

文 献

- 1) For example, S.Sugiyama, S.Takenouchi and M.Noguchi: "Development of Composite Magnetic Material Forming Technology", J. Japan Soc. Tech. Plasticity, 45(2004)1002-1007.
- 2) For example, T.Yasuho and T.Motone: "Seigyomōtā no Kaijiyō Purasuchikku Jishaku", Japan examined patent application publication H5-37330, 1993.6.2.
- 3) K.Okimoto, K.Izumi, T.Satoh, S.Toyota and S.Hosokawa: "Sinter Joining Properties of Ferrite Magnets", J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, 45(1998)763-768.
- 4) K.Okimoto, K.Izumi, S.Toyota and S.Hosokawa: "Anisotropy of Sintering Shrinkage of Sr-Ferrite Compacted under Magnetic Field and Its Application to Sinter Joining", J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, 46(1999)67-71.
- 5) K.Okimoto, K.Izumi, S.Toyota and S.Hosokawa: "Combined Sinter Joining of Sr-Ferrite Compacted under Magnetic Field", J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, 47(2000)151-154.
- 6) T.Harikou, Y.Itoh, K.Satoh and H.Miura: "Joining of SUS316L and SUS430L by Insert Injection Molding", J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, 49(2002)841-845.

- 7) T.Harikou, Y.Itoh, K.Satoh and H.Miura: "Joining of Stainless Steel (SUS316L) and Hard Materials by Insert Injection Molding", J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, 51(2004)31-36.
- 8) "Metal Injection Moulding of Bi-metal Parts", Metal Powder Report, 47(2002)48.
- 9) K.Okimoto, M.Yamaguchi, T.Satoh, M.Watanabe, N.Horiishi and H.Kinoshita: "Magnetic Field Forming of Ferromagnetic Ferrite Powders by Use of MIM Binder", J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, 39(1992)970-976.
- 10) K.Okimoto, K.Izumi, K.Iwamoto, T.Kuroda, S.Hosokawa and T.Sachio: "A New Orientation Forming Process of Magnetic Powders Mixed with a MIM Binder", J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, 49(2002)738-743.
- 11) K.Okimoto and T.Kuroda: "Estimation of Optimum Condition for Orientation Forming of Magnetic Powders", J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, 50(2003)233-237.
- 12) K.Okimoto, K.Iwamoto and Y.Kato: "Effect of Granulated Powder on Joint Strength of Permalloy-Stainless Steel Composites by Sinter Joining", J. Soc. Mater. Sci. Japan, 53(2004)938-943.