研 究

MIM プロセスにおける Fe-50mass%Ni の磁気特性改善

三浦 秀士^{☆1}, 藤田 慎治^{☆2}, 藤田 政和^{☆3}, 二宮 隆二^{☆3}^{☆1} 熊本大学工学部知能生産システム工学科, 〒860-8555 熊本市黒髪 2-39-1.^{☆2} 熊本大学大学院自然科学研究科, 〒860-8555 熊本市黒髪 2-39-1.^{☆3} 三井金属鉱業(株), 〒362-0021 上尾市原市 1333-2.

Improvement of Magnetic Properties of Fe-50mass%Ni in MIM Process

Hideshi Miura^{☆1}, Shinji Fujita^{☆2}, Masakazu Fujita^{☆3} and Ryuji Ninomiya^{☆3}^{☆1} Dept. Mech. Eng. & Materials Sci., Kumamoto University, 2-39-1 Kurokami, Kumamoto 860-8555.^{☆2} Graduate School, Kumamoto University, 2-39-1 Kurokami, Kumamoto 860-8555.^{☆3} Mitsukinzo Co., Ltd., 1333-2 Haraichi, Ageo 362-0021.

Received July 25, 2000

SYNOPSIS

Metal injection molding (MIM) process is hoped to be one of processing for required to more complicated parts of magnetic components.

In this study, the effect of different types of powders (prealloyed and mixed elemental powders) on the magnetic properties of permalloy (Fe-50mass%Ni) through the MIM technique was investigated. Approximately 94% of theoretical density was obtained by using the prealloyed powder, and the retained carbon and oxygen contents were controlled to be low. On the other hand, 96% of theoretical density was obtained by using the mixed elemental powder, but the magnetic properties were inferior to that of prealloyed powder's because of high retained oxygen content. By using the carbonyl Fe powder with high carbon, the retained oxygen and carbon content could be controlled to be low, resulting in the improved magnetic properties.

KEY WORDS

metal injection molding, permalloy, prealloyed powder, mixed elemental powder, soft magnetic properties

1 緒 言

磁性材料の複雑形状部品化の要求に対する1つの加工法としてMIMプロセスの適用が考えられているが、例えばMIMプロセスによりパーマロイ(Fe-50mass%Ni)を作製する場合、原料粉末としては合金粉末か混合粉末のいずれかを用いることになる。前者では焼結過程において拡散が遅いオーステナイト域での焼結となるため高い密度が得られず、一方後者ではフェライト域で焼結が始まるため前者と比較して高い密度が期待されるが、Niの不十分な拡散に伴う不均一組織の問題が生じてくる可能性がある。

そこで本研究では、MIMプロセスによるパーマロイの作製において、合金粉末ならびに混合粉末という原料粉末の違いが磁気特性にどのような影響を及ぼすのか、組織や残存炭素、酸素などの不純物量の観点から調査し、高性能な磁気特性を得るためのプロセスについて検討した。

2 実験方法

原料粉末として、合金粉末にはガスアトマイズ粉を使用し、混合粉末にはカーボニルFe粉および水アトマイズNi粉を50:50の組成となるように調整したものを使用した。Table 1にそれぞれの粉末の組成を示す。バインダにはパラフィンワックス(69mass%), ポリプロピレン(20mass%), カルナウバワックス(10mass%)およびステアリン酸(1mass%)で構成される多成分ワックス系バインダを使用し、粉末とバインダを体積比で60:40となるように配合し、418Kで1.8ks加熱混練後、冷却粉碎し、横型スクリー式射出成形機を用いて円盤状の試験片(直径30mm, 厚さ8.3mm)を作製した。得られた成形体は、まず溶媒脱脂により主にワックス成分を除去したのち、加熱揮散と焼結を連続的に水素雰囲気中の同一炉内で行った。焼結後の試料は密度測定や、炭素および酸素分析等に供するとともに、機械加工により磁気測定用のリング状試験片(外形径23mm, 内径13mm, 厚さ6.5mm)に作製し、水素雰囲気中1373Kで7.2ksの焼鈍により加工ひずみを除去したのち、各種磁気特性の調査に供した。

Table 1 Chemical compositions of the powders used in this study.

Prealloyed powder						
Mean particle size : 14.2 μ m						
	Ni	Si	C	O	S	Fe
mass%	50.1	0.93	0.012	0.055	0.005	Bal.

Mixed elemental powder				
Mean particle size : 4.5 μ m				
mass%	Fe	C	O	N
Carbonyl Fe (L powder)	Bal.	0.03	0.48	—

Mean particle size : 5.6 μ m			
mass%	Ni	C	O
Atomized Ni	Bal.	0.003	0.37

3 実験結果および考察

まずFig.1に, 合金粉末体ならびに混合粉末体の焼結温度に対する焼結密度を示す. 焼結温度の上昇とともに焼結密度は増加しており, 予想通り, 全ての焼結温度に対して混合粉末体の方が合金粉末体に比べて高い値を示した. 両粉末体の各種焼結温度における光学顕微鏡組織をFig.2に示す. 合金粉末の1473K焼結体では連結気孔が多数観察されるが, 焼結温度の上昇とともにその数は少なくなり, 1623K焼結体ではほとんどが高密度材特有の微細な独立球状気孔であった. 一方, 混合粉末体では全ての焼結温度においてほとんどが微細な独立球状気孔であった. 両粉末体の結晶粒径は焼結温度の上昇とともに同程度で増大しているが, 1623Kの焼結体においては合金粉末体の方が大きな結晶粒を呈していた. なお, 混合粉末体ではNiならびにFeの偏析に伴う不均一組織の出現が

懸念されたが, 光学顕微鏡ではそのような組織は観察されなかった.

次に各種磁気特性に関して, 本研究ではパーマロイにおいて最も重要視される最大透磁率, 保磁力, 飽和磁束密度を測定することで評価を行うが, 一般に本鋼種のような軟質磁性材料では消磁しやすいことが望まれるため, 最大透磁率は高く, 保磁力は低いことが要求される. Fig.3に上記特性の結果を示す. 最大透磁率においては, 両粉末体ともに焼結温度の上昇に伴い増加しているが, 混合粉末体の方が著しく低いことがわかる. また保持力においても, 合金粉末体の方が良好な磁気特性を示していることがわかる. 一方, 飽和磁束密度は両粉末体ともに焼結温度による違いは見られず, ほぼ一定の値を示しており, 混合粉末体の方が良好な磁気特性を示した.

ところで, 磁気特性の中でも最大透磁率ならびに保磁力は, 材料中の結晶粒径および不純物(とくにC, O, P, Nのような侵入型元素)の影響を受けやすいことが知られている¹⁾. そこで, まず焼結後の残存炭素ならびに酸素の分析を行ったので, その結果をFig.4に示す. 炭素量は両粉末体ともにかなり低く抑えられていることがわかるが, 酸素量は合金粉末体と比較して混合粉末体の方が著しく高い値を示した. そこで, 混合粉末体における磁気特性の改善に関して, 次の2つの観点から検討を行った.

まず上述したように, 光学顕微鏡からではFeならびにNiが偏析しているような組織は観察されなかったが, それぞれの元素の拡散状態(あるいは濃度勾配)を詳しく知るためにEPMAによる元素分析を行った. その結果をFig.5に示す. 混合粉末体では焼結前(873K)では, FeならびにNiの各粉末粒子がそのまま観察され, それぞれの元素はまだ拡散していない状態にある. そして1273Kでは, まだ一部において拡散が不十分であるため不均一な組織を呈しているが, わかる.

Fig.1 Effect of sintering temperature on the sintered density of MIM Fe-50mass%Ni compacts.

Fig.2 Microstructures of MIM Fe-50mass%Ni compacts sintered at various temperatures for 3.6 ks in H_2 .

Fig.3 Effect of sintering temperature on the magnetic properties of MIM Fe-50mass%Ni compacts.

Fig.4 Effect of sintering temperature on the carbon and oxygen contents of MIM Fe-50mass%Ni compacts.

Fig.5 EPMA line analysis of MIM Fe-50mass%Ni compacts sintered at various conditions.

しかしながら、1623Kでは合金粉末体と同様な均一な濃度勾配になっており、全面が均一組織であることから、少なくとも不均質組織による磁気特性の劣化ということは考えなくてもよさそうである。

次に酸素量の低減について検討を行った。まず溶媒脱脂後の加熱による脱バインダ条件、すなわち焼結までの加熱条件を変えることで酸素量の低減を試みた。これまではFig.6に示すように873Kまでは4K/minで昇温し、60s保持後、焼結温度まで10K/minで昇温するという加熱条件を用いていたが、水素雰囲気による脱酸反応を促進させる目的で773Kと873Kで

3.6ksの保持を試みたが、Fig.6に併示しているように酸素量の低減は図ることができなかった。また、873Kまでの昇温速度も小さくして2K/minで行ってみたが、この場合でも酸素量の低減を図ることは困難であった。以上のことから、焼結までの加熱条件を変化させても酸素量の低減にはほとんど効果がないことがわかった。

そこで次に、これまでの使用Fe粉においては焼結後の炭素量を低く抑える目的で低炭素量のカーボニルFe粉を供していたが、次にTable 2に示すような炭素をおよそ0.8mass%含有する高炭素カーボニルFe粉を使用し、炭素による脱酸反応

を促進させることで酸素量の低減を試みた．その結果をFig.7に示すが，酸素量は0.14% から0.01% 以下にかなり低く抑えることができ，かつ炭素量も低炭素カーボニルFe粉を用いたときと変わらない低い値を示した．これら試料の磁気測定結果をFig.8に示す．なお，焼結条件は合金粉末体で最も良好な磁気特性が得られた 1623 K×3.6 ksで行った．高炭素カーボニルFe粉を用いることで最大透磁率は増加し，保磁力も半分

激減していることから，混合粉末体の酸素量を低減させることで磁気特性が改善しているのがわかる．しかしながら，合金粉末体と比較すると保磁力においては良好な値が得られたが，最大透磁率においては依然として低い値であるため，この混合粉末体の最大透磁率が低い原因をさらに追求した．
両粉末体で異なる点として，結晶粒径において混合粉末体の方が合金粉末体と比較して 30μm 程度小さいことが挙げられるが，この程度の差で最大透磁率が大きく異なるとは考え

Fig.6 Effect of heating condition on the oxygen content of MIM Fe-50mass%Ni compacts.

Table 2 Chemical composition of carbonyl Fe powder with high carbon.

Mean particle size : 4.2 μ m				
mass%	Fe	C	O	N
Carbonyl Fe (H powder)	Bal.	0.78	0.34	0.76

Fig.7 Effect of powder type on the impurity contents of MIM Fe-50mass%Ni compacts.

Powder	Prealloyed powder	Mixed elemental powder	
		H powder	L powder
Microstructure			
Maximum permeability	26600	12600	7100
Coercive force (Oe)	0.26	0.22	0.42
Saturation magnetic flux density (kG)	13.6	15.5	15.4

Fig.8 Microstructures and magnetic properties of MIM Fe-50mass%Ni compacts using various powders.

Powder	Prealloyed powder		Mixed elemental powder	
Microstructure
Maximum permeability	Rapid cooling 27000	Furnace cooling 26600	Rapid cooling 19500	Furnace cooling 12600
Coercive force (Oe)	0.23	0.26	0.20	0.22
Saturation magnetic flux density (kG)	13.7	13.6	15.6	15.5

Fig.9 Effect of rapid cooling after annealing on the microstructures and magnetic properties of MIM Fe-50mass%Ni compacts.

にくい。そこで、Fe-Ni二元系合金において、冷却速度によってはFeNi₃の規則格子が形成され、これにより透磁率が低下するという報告²⁾もあることから、X線回折による調査を行った。その結果、両粉末体においてFeNi₃の生成が確認されたが、その定量化は困難であったため、焼なまし後の冷却速度を速くすることでFeNi₃生成の抑制を試み、磁気特性に及ぼす影響を調査した。Fig.9にその結果を示すが、合金粉末体においてはさほど冷却速度の違いによる磁気特性への影響は見られないが、混合粉末体においては磁気特性がかなり改善しており急冷による効果が現れているようであった。つまり、焼なまし後の冷却速度が遅い場合、混合粉末体の方がより多くのFeNi₃が生成し、そのため最大透磁率が低くなったことを示唆するもので、その理由については今のところ不明で今後の検討課題でもあるが、冷却も含めた熱処理条件の最適化によっては混合粉末体においても合金粉末体に匹敵する良好な磁気特性が得られる可能性もありそうである。

4 結 言

MIMプロセスによるパーマロイの作製において、原料粉末の違いが磁気特性に及ぼす影響を組織ならびに不純物量の観点から調査し、高性能な磁気特性を得るためのプロセスにつ

いて検討した結果、以下の結論を得た。

- (1) 合金粉末体においては、およそ94%のMIM材としては低い相対密度を示したが、残存炭素量ならびに酸素量は容易に低く抑えることが可能であった。
- (2) 混合粉末体においては、合金粉末体と比較して高い密度(96%)が得られ、FeならびにNiが偏析した組織も観察されなかったが、酸素量が著しく高く各種磁気特性も良好ではなかった。ただ、初期炭素量が高いカーボニルFe粉を使用することで脱炭反応を促進し、混合粉末体でも焼結後の炭素ならびに酸素量を低く抑えることができたが、磁気特性の改善という点ではさほどの効果は見られなかった。
- (3) 混合粉末体においては、多量のFeNi₃金属間化合物の生成が問題であるようで、焼なまし後急冷を施すことでかなりの磁気特性の向上が見られたため、熱処理条件の最適化が重要であることがわかった。

文 献

- 1) C.Lall: SOFT MAGNETISM Fundamentals for powder metallurgy and Metal injection molding, Monographs in P/M Series No.2, MPIF, Princeton, New Jersey, (1992).
- 2) 小沼稔: 磁性材料, 工学図書株式会社, (1996).