研 究

MnAlC 磁石の異方性化のメカニズム

田中 義和, 相川 芳和, 加藤 信行

山陽特殊製鋼(株), 〒672-8677 姫路市飾磨区中島 3007.

Anisotropy Mechanism of MnAlC Magnet

Yoshikazu Tanaka, Yoshikazu Aikawa and Nobuyuki Kato

Sanyo Special Steel Co. Ltd., 3007 Nakashima Shikama-ku, Himeji 672-8677.

Received June 22, 1999

SYNOPSIS

Effect of powder particle size, extrusion temperature and mean strain rate on anisotropy of MnAlC alloy was investigated. The anisotropy proceeding mechanism of MnAlC alloy was considered by anisotropy investigation with specimens during extrusion.

MnAlC powder was made by Ar gas atomizing process, classified fixed particle sizes and was compacted by extrusion at extrusion temperature: 853~993K and mean strain rate: 0.005~0.05/s.

Anisotropy of MnAlC formed was found to improve at lower temperature, finer particle size and lower strain rate. It was considered to be related to the homogeneity of τ phase and the crystal grain size. It was found that anisotropy of MnAlC magnet was increased as deformation right after the start of extrusion and saturated at the part on the way of extrusion.

This phenomenon can be explained by the two deformation areas, one is that dynamic recrystallization proceeds as keeping the former crystal orientation according to the strain induced grain boundary migration mechanism, the other is that dynamic recrystallization proceeds with no relation to the former crystal orientation according to the nucleation and growth mechanism.

KEY WORDS

MnAlC, extrusion, anisotropy, deformed, dynamic recrystallization

1 緒 言

MnAlC磁石は様々な形状に機械加工ができると同時に,他の磁石と比較して機械的強度が大きいといった特徴を有しており,粉末工法による温間押出加工によって製造されている.このMnAlC磁石は温間押出時に押出方向に容易磁化方向が配向することが知られており,特徴の一つとなっている.

MnAlC磁石の異方性化機構については, Kojima¹⁾らによる単結晶を用いた研究が知られている. 磁性相である τ 相に[001]方向から圧縮応力を作用させると,圧縮方向に収縮が生じ,それにもなって新しい[001]軸が形成されることがわかっていて,この現象については,変形時の移動が(111)面内においてのみ生じ,その方向は[112]方向であると考えた双晶変形モデルによって説明されている. また, Sakamoto²⁾らはMnAlC多結晶合金の変形後の集合組織を研究し,押出後には[001]繊維組織が形成され,これを[001]方向から据込加

工することにより,[110]繊維組織が得られることを明らかにした. 同時にこのような巨視的な繊維組織の形成も,微視的にはKojima¹⁾らの τ 相の双晶変形機構によって説明されている. しかし, Landuyt³⁾は,塑性加工終了後の双晶をTEMにより観察しており,観察される双晶は再結晶双晶であると説明している.

一方, MnAlC磁石の最大エネルギー積の最高値は64kJ/m³程度であり,この特性は単磁区理論の予測値と比較して低く,磁性向上のためには保磁力および異方性化度の向上が望まれている.

本研究ではMnAlC磁石の磁気特性をより向上させることを目的に,特に異方性化度に着目し押出成形条件(粉末粒径,押出温度,歪速度)との関連性について検討した. 同時に変形による異方性化度の変化を把握するために押出途中で取り出した試料に着目し,各部位における異方性化度を調査すること

により, MnAlC磁石の異方性化の進行挙動のメカニズムについて考察したので報告する。

2 試料ならびに実験条件

本実験で用いた供試材の組成を Table 1 に示す。供試材はアルゴンガスアトマイズ法により作製し, 粉末粒径の影響を検討するために所定粒度に分類後カーボンシート製のカプセルに充填し, 押出温度 (853~993K) に加熱後, コニカルダイス ($\phi 28 \rightarrow \phi 14$) を用いて押出成形を行った。押出時の平均歪速度は 0.005~0.05/s とし, 平均歪速度の影響についても検討した。

押出変形進行に伴う磁気特性および異方性化度の変化を検討するため, 押出途中で変形を中止し, 押出変形帯のビレット (押出中断材) を取り出し, 各部位から試験片を採取した。得られた試験片について, その異方性化度を評価した。異方性化度は押出軸に直角な面について X 線回折 (Cuk α 線) を行い, 磁化容易方向である τ 相の [001] 方向に平行な面 (200) に対する垂直な面 (002) の回折強度比 ($I_{\tau(002)}/I_{\tau(200)}$) で評価した。

また, 押出終了後の試料については SEM および TEM 観察を行うと同時に, EDX により τ 相の成分分析を行った。また変形挙動について考察するために, 高温引張試験に供し応力-歪曲線を評価した。

なお, Fig.1 に実験の概要および Fig.2 に押出中断材の概念図を示す。

3 実験結果

3.1 押出材の異方性化度に及ぼす粉末粒子径の影響

Table 1 Composition of MnAlC alloy.

Mn	Al	C	Ni
68.8	bal.	0.44	0.80

Gas atomized MnAlC-alloy powder

Classifying

• Powder particle size : -38, 35~45, 75~100 μ m

Warm extrusion

(1) Effect of extrusion conditions

- Extrusion temperature : 853~993K
 - Strain rate : 0.005~0.05/s
 - Powder particle size : -38, 35~45, 75~100 μ m
- Measurement of anisotropy : X-ray diffraction
Plastic deformation behavior : tensile test
Microstructure : SEM, and TEM
Composition analysis of microarea : EDS analysis

Fig.1 Outline of extrusion experiment.

Fig.3 に押出温度 923K における押出材の異方性化度に及ぼす粉末粒径の影響を示す。

供試粉末はガスアトマイズ後の粉末を -38 μ m, 35~45 μ m, 75~100 μ m に分級したものをを用いた。ガスアトマイズ粉末の粒径が微細な場合は, 異方性化が高められることがわかった。ガスアトマイズ後のミクロ組織は Fig.4 に示すとおりであり, 粉末粒径が小さいほど結晶粒径が小さくなっていることがわかる。これは, 粉末粒径の小さいものほどアトマイズ時の凝固速度が大きくなることに起因していると考えられる。また, 異方性化度の向上には結晶粒の微細化が大きく影響するものと考えられる。

3.2 押出材の異方性化度におよぼす押出温度の影響について

45~75 μ m の粉末について押出材の異方性化度に及ぼす押出温度の影響を Fig.5 に示す。本実験条件範囲内では, 押出温度の低い場合ほど異方性化度は大きくなることがわかった。また, Fig.6 に押出後の磁性相 (τ 相) の結晶粒径と押出温度の関係を示す。押出後の τ 相の結晶粒径は押出温度が低くなるほど小さくなる傾向が認められ, 低温押出時に異方性化度が高められるのは, 3.1 で述べた粉末の微細化と同様の機構によるものと考えられる。

3.3 押出変形に伴う異方性化度の変化

973K 押出時の押出開始部から終了部までの押出変形の進行に伴う異方性化度の変化を Fig.7 に示す。いずれの歪速度においても異方性化度は変形に伴って単調に増加するものの変形途中で飽和に達し, その後塑性変形は進行しても異方性化は進行しないことがわかった。同時に平均歪速度が小さくなると異方性化度の到達レベルが向上することがわかった。

Fig.2 Schematic diagram of MnAlC deformed.

Fig.3 Effect of powder particle size on anisotropy of MnAlC alloy.

変形による異方性化の進行が Kojima¹⁾らの双晶変形機構により進行するとした場合、歪量に対して異方性化度は単調増加し、このような飽和現象は起こらないと考えられる。これは、 τ 相の異方性化のメカニズムについては Kojima¹⁾らの説で説明できるが、押出時の異方性化の進行挙動という点では別の機構が働いていると想定される。

Fig.4 Microstructures of MnAlC powder.

Fig.5 Effect of extrusion temperature on anisotropy of MnAlC alloy.

3.4 τ 相の成分偏析に及ぼす歪速度の影響

973K押出後の試料の各歪速度における磁性相部分の成分分析結果を Fig.8 に示す。各試料について磁性相部分を数点EDXにより分析し、それぞれの Mn, Ni 濃度をプロットした。Fig.7の結果において異方性化度が小さかった歪速度 0.05/s の場合には、測定部位による濃度差が大きく、成分偏析が明瞭に残っているのに対して、異方性化度が大きかった 0.005/s の場合は成分偏析が少なくなっていることがわかった。押出による熱処理効果の観点から考えると歪速度が小さい場合はより長時間の熱処理を受けることになると考えられ、拡散効果によりアトマイズ時に生じた成分偏析が解消されていると考えられる。

3.5 MnAlC 合金の応力-歪曲線の解析

Fig.9 に MnAlC 合金押出材の軸方向引張試験による真応力-真歪曲線を示す。低温・高歪速度の場合には、変形初期に応力が極大値をとりその後低下する単一ピークの加工軟化型の曲線となっているが、高温・低歪速度では多重ピーク型に変化することがわかった。また、いずれの条件においても高歪領域では変形領域はほぼ一定となり、定常状態の変形を生じている。定常状態の変形領域に於いては変形に伴う加工硬化過程とそれを相殺する動的復旧過程とが平衡しているものと考えられる。また、動的復旧過程には動的回復と動的再結晶が考えられるが、MnAlC 合金の場合のこれらの変形挙動

Fig.6 Relationship between extrusion temperature and crystal size of τ phase.

Fig.7 Variation of anisotropy as extrusion deformation proceeds.

は、動的再結晶による動的復旧過程を示す材料の場合に認められる典型的な応力-歪曲線図と考えられる。また、そのピーク歪はいずれも 0.01~0.05 程度であった。この値は押出比に換算すると、1.01~1.05 と小さく、加工開始直後に動的再結晶が開始するものと考えられる。

3.6 ミクロ組織

Fig.10に953K押出後試料の押出軸方向に平行な面(L面)と、押出軸に直角な面の組織写真を示す。 τ 相の結晶粒はいずれの面においても等軸粒であり、押出変形後の τ 相結晶は押出方向に延伸していないことがわかった。

Fig.11に973K押出中断材のTEM観察の結果を示す。観察は押出開始直後の試料と、異方性化がある程度進行した試料

の2箇所について行った。押出変形初期に見られる双晶は、境界がレンズ状に湾曲しており変形双晶であると考えられる。一方、押出変形がある程度進行した後は再結晶によると思われる直線的な境界を持つ双晶が観察された。

これらの結果から、 τ 相結晶は押出開始初期にはKojima¹⁾らの提唱する双晶変形機構によって異方化するものの押出変形の進行とともに結晶粒径のほぼ同じ大きさの再結晶粒を形成しつつ異方性化を発達させるものと考えられる。

4 異方性化の進行メカニズムについての考察

応力-歪曲線の解析ならびにミクロ組織の観察結果から、MnAlC合金に押出変形を施した場合、加工開始直後に動的再結晶が開始し、異方性化の進行がこの動的再結晶の形成に大きく関与する可能性があることを示した。この動的再結晶の生成機構には大別すると次の2つが認められている⁴⁾。

(I) 歪誘起粒界移動機構

もとの粒界の一部が歪誘起粒界移動によって張り出し、歪のない領域が形成される。この機構で形成された再結晶粒はもとの結晶粒と同じ方位を持ち、そのためにもとの結晶粒との境界は不明瞭である。

Fig.8 Comparison of component distribution after extrusion.

Fig.9 True stress-true strain curve of MnAlC alloy.

Fig.10 Microstructures of MnAlC alloy extruded.

Fig.11 Twin observed at the starting point and middle point of deforming zone.

(II) 核生成・成長機構

もとの結晶粒と異なった方位を持つ歪のない新しい粒が核生成成長によって形成される。この機構で形成された再結晶粒はもとの粒界近傍に優先的に形成される傾向が強く、それらはもとの粒と結晶方位が異なり、大傾斜粒界により囲まれている。

一般に歪の小さい範囲では(I)の歪誘起粒界移動機構が支配的であるが、歪が大きくなると(II)の核生成・成長機構が支配的になることが認められている。

MnAlC合金の場合、押出時に歪量の小さい範囲では、歪の増加にともない異方性化は単調に増加することが認められた。このことは変形時に生じる再結晶がもとの粒の結晶方位を継承している事を意味しており、歪誘起粒界移動機構が支配的になっていると考えられる。また、ある程度変形が進行すると異方性化度が飽和する現象については、歪誘起粒界移動機構による異方性化の進行が核生成・成長機構による等方性によって打ち消されると考えれば説明できる。

また、異方性化度の到達レベルを向上させるための塑性加工条件として、粉末の細粒化、歪速度の低下、低温押出が有効であることがわかった。歪速度の低下については τ 相の均質性が改善されているためであると考えられ、 τ 相が不均質な

場合には核生成・成長機構による動的再結晶の形成を支配的にする作用をもつと考えれば説明できる。低温押出および粉末細粒化により異方性化が大きく発達することは、形成される τ 相の結晶粒径が微細になることに起因しており、粒界面積の増大が歪誘起粒界移動機構による動的再結晶を助長すると考えれば説明できる。

これらの考察から、MnAlC合金の押出時の異方性化挙動については、ピーク応力までの初期変形は双晶変形であるが、その後の変形において双晶変形の際に形成された異方性化を継承する形で歪誘起粒界移動機構による動的再結晶が進行し異方性化を発達させ、ある程度変形が進むと、核生成・成長機構が支配的になり異方性化が飽和すると考えることができる。

5 ま と め

MnAlC合金の異方性化度と押出成形条件との関連性について検討した。同時に変形による異方性化度の変化を把握し、MnAlC磁石の異方性化の進行挙動のメカニズムについて考察した結果、本実験条件範囲内で以下のことが明らかになった。

- (1) 押出後の異方性化度は、低温押出、粉末細粒化、低歪速度押出において向上することがわかった。これは、 τ 相の均質性および結晶粒の微細化に関与しているものと考えられた。
- (2) 変形による異方性化度の変化について検討した結果、押出開始直後は変形とともに異方性化が進行するものの変形途中で飽和に達することがわかった。
- (3) 押出後試料のTEM観察、SEM観察、ならびに応力-歪曲線の結果からMnAlC合金の押出時には、変形開始直後から動的再結晶が形成し、そのことが異方性化の進行に大きく関与していることが推測された。
- (4) MnAlC磁石の異方性化の挙動は、歪誘起粒界移動機構によってもとの結晶方位が保たれたまま再結晶が進行する領域と、核生成・成長機構によって元の結晶方位とは無関係に再結晶が進行する領域とに分類することにより説明できることがわかった。

文 献

- 1) S.Kojima, T.Ohtani, N.Kato, K.Kojima, Y.Sakamoto, I.Konno, M.Tsukahara and T.Kubo: "Crystal Transformation and Orientation of Mn-Al-C Hard Magnetic Alloy", AIP Conf. Proc., 24(1975)768-769.
- 2) Y.Sakamoto, A.Ibata and S.Kojima: "Magnetic Properties and Crystallographic Texture Formation Process in Mn-Al-C Permanent Magnet Materials", MRS Int'l. Mtg. on Adv. Mats., 11(1989)139-153.
- 3) J.V.Landuyt, G.v.Tendeloo, J.J.v.d.Broek, H.Donkersloot and H.Zijlstra: "Defect Structure and Magnetic Properties of MnAl Permanent Magnet Material", IEEE Transactions on Magnetics, MAG-14(1978)679-681.
- 4) 牧正史, 田村今男: "動的再結晶の組織的特徴および静的再結晶との比較", 鉄と鋼, 70(1984)2073-2080.