押出成形 Nd-Fe-B 系ボンド磁石の開発

Development of Extrusion Molded Nd-Fe-B Magnets

坂田正昭・井熊 健・渡辺陵司*・岩佐 樹*・宮寺弘美*・K. McAloon**

セイコーエプソン(株), 長野県諏訪市大和 3-3-5 (☎392)

*アイ・シー・アイ・ジャパン(株)技術研究所, 茨城県つくば市和台 47 (☎300-42)

**アイ・シー・アイ・ケミカルズアンドポリマーズ(株), ヒース, ランコーン, チェシャー, WA74QD, 英国

M. Sakata, K. Ikuma, R. Watanabe*, T. Iwasa*, H. Miyadera* and K. McAloon**

Seiko Epson Corporation, 3-5, Owa 3-chome, Suwa, Nagano 392

*ICI Japan Technical Centre, 47, Wadai, Tsukuba, Ibaraki 300-42

**ICI Chemicals & Polymers, The Heath, Runcorn, Cheshire, WA74QD, England

A new manufacturing process for extrusion molded magnets, composed of isotropic Nd-Fe-B powder and Nylon-12, has been developed. This newly developed extrusion molding process has several interesting features. First, the extruded product contains 72% by volume magnetic powder and yields a $(BH)_{\max}$ of 8.0 MGOe. Second, through the addition of an anti-oxidant, the viscosity of the magnetic powder-nylon compound during molding remains almost constant. Third, by means of a specially cooled outlet, which is separated from the heated die by a thermal insulator, an optimized temperature profile is obtained which yields uniformly smooth extrusion molded magnets. Both long thin-walled magnets and small arc-shaped ("kawala") magnets are easily molded by this new process.

Key words: permanent magnet, bonded magnet, Nd-Fe-B, extrusion molding

1. はじめに

現在希土類ボンド磁石において、磁石粉末としては、Sm-Co 系異方性粉末^{1,2)}およびメルトスピン法によるNd-Fe-B 系等方性粉末³⁾が、成形方法としては圧縮成形法^{1,2)}、射出成形法⁴⁾が主に用いられている。このうち射出成形法では、1) スプルー・ランナー部をも同時に成形するため製品化率が低くリサイクル材が発生する、2) 長尺・薄肉磁石、小型かわら状磁石の成形が困難である、という問題点を有している。押出成形法を用いるとこれらの問題点の解決が期待でき、さらに磁石粉末の体積率を高めて磁石の高特性化も期待できる。従来希土類ボンド磁石の押出成形に関する研究は、Sm-Co 系粉末とエポキシ樹脂を用いた Johnson の報告⁵⁾のみであった。

本論文では、Nd-Fe-B 系等方性粉末とポリアミド-12 (以下ナイロン-12 と称す) を用い、コンパウンドの成形

安定性の向上およびボンド磁石成形に適した押出成形法の開発について報告する。

2. 実験方法

本研究の実験手順を Fig. 1 に示す。Nd-Fe-B 系磁石粉末とナイロン-12 粉末および添加剤 (滑剤、ヒドラジン系酸化防止剤) を所望の組成に秤量、混合した後、温度 230~280℃ にて混練し磁石コンパウンドを作製した。磁石粉末はゼネラルモーターズ社製 MQP-B 粉末 (Co を添加した組成) で、平均粒径 24.0~26.0 μm (F.S.S.S. にて測定) のものを使用した。このコンパウンドをスクリュース式押出機を用いて押出成形し、成形物を所定の長さにて切断し着磁してボンド磁石とした。コンパウンドの混練トルクは(株)東洋精機製作所製ラボプラストミルにて、粘度は細管式粘度計にてそれぞれ測定した。磁気特性は 40 kOe でパルス着磁した後、最大印加磁場 25 kOe において直流自記磁束計により測定した。測定試料は、パイプ状磁石は長さ 10 mm に切断したものを用い、かわら状磁石は接着により積層し 10 mm 角の立方体に切削加工したものを用いた。また、可逆温度

Fig. 1 Production steps of extrusion molded magnets.

Fig. 2 Changes of mixing torque and viscosity with mixing time.

Fig. 3 Molecular weight distribution curves of Nylon-12 in the compounds.

特性は東英工業(株)製温度特性測定装置により測定した。

3. 実験結果

3.1 コンパウンドの成形安定性

磁石粉末とナイロン-12に滑剤とヒドラジン系酸化防止剤を7.1 vol% (1.8 wt%) 添加しコンパウンドを作製した。このコンパウンドと磁石粉末とナイロン-12のみで作製したコンパウンドについて、混練時間による混練トルクおよびコンパウンド粘度の変化をFig. 2に示す。磁石粉末の体積率は67.5 vol% (93.8 wt%)、混練温度は250℃であり、粘度測定条件は温度210℃、せん断速度25 sec⁻¹である。添加剤を加えていないコンパウンドではトルク、粘度共に急激に上昇しており安定性のないことがわかる。このコンパウンドを用いて押出成形したところ、増粘現象による押出機のスクリー負荷の増大が

生じ連続した成形は不可能であった。添加剤を加えたものではトルク、粘度の上昇が抑えられており、これを押出成形するとスクリー負荷も安定し連続成形が可能であった。この増粘現象の原因を調べるため、コンパウンド中のナイロン-12の分子量分布の違いについて調べた。

Fig. 3に10分間混練したコンパウンド中のナイロン-12の分子量分布について示す。磁石粉末とナイロン-12のみのコンパウンドでは、添加剤を加えたものに比べ高分子量(10⁵~10⁶)の分子が増加している。プラスチックの熔融粘度は分子量が大きいくほど高くなることから、今回の粘度上昇は、酸化によりラジカルが発生し架橋反応が起こり、分子量が増大したためと考えられる。その連鎖成長反応は金属が存在することでさらに促進される⁶⁾。本研究に使用したヒドラジン系酸化防止剤では、この酸化機構を抑制する効果があり分子量の増大が抑えられたと考えられる。

3.2 金型内冷却固化成形法

本研究の磁石コンパウンドの成形は、従来の押出成形法では以下の理由により非常に困難である。

① 従来の押出成形法では、熔融状態の押出物を引張りサイジングダイを通過させて成形するため、熔融状態での引張強度の値(メルトストレングス)の大きな材料でないと成形ができない。本磁石コンパウンドではメルトストレングスが測定不可能ほど小さく、押出物を熔融状態で引き取ると簡単に破断してしまう。

② 従来法では、成形品の全周をサイジングダイに均一に接触させて寸法を規制することがむずかしいため、通常希土類ボンド磁石に要求される寸法精度(寸法公差 $\leq \pm 0.05$ mm)を確保することが困難である。

本研究では、上記問題点を解決できる成形法として、

Fig. 4 Longitudinal section of the extrusion die.

Fig. 5 Changes of the appearance of the extruded magnet with the temperature profile of the die.

Fig. 6 Changes of the viscosity with the volume fraction of the magnetic powder.

金型内にてコンパウンドを冷却固化しながら押出成形する方法（金型内冷却固化成形法）を開発し、これによりボンド磁石を成形した。Fig. 4 に成形に使用した金型の概略図を示す。コンパウンドの流動性を確保するため金型後部をヒーターにより加熱する一方、金型先端部は冷媒を循環させた冷却部材にて冷却することによりコンパウンドを固化させる。金型内に大きな温度勾配を実現させるため、断熱材を挿入した金型構造とした。

Fig. 5 に、金型の温度プロファイルによる成形品の外観の変化について示す。成形品は外半径 R 5.6 mm, 内半径 r 4.5 mm, 中心角 115° のかわら状磁石である。金型先端部温度が 200°C とコンパウンド中のナイロン-12の融点 (176°C) より高い状態で押し出すと、成形品の端面は鋸歯状にひび割れた状態となり所定の形状に押出成形できなかった。これは型内における成形物の中央部

と端面部でのコンパウンドの速度差によるせん断作用が原因で生じたものと考えられる。金型先端部温度を 160°C まで低下させると、成形品は金型内で冷却固化されながら成形され、端面部まで均一な磁石が得られた。さらに、 150°C まで温度を低下させると押出物は流動せず成形不可能となった。以上のように、金型に適切な温度プロファイルを設け金型内冷却固化成形を行うことにより、寸法精度の高い均一な押出成形磁石が得られた。

3.3 押出成形磁石の諸特性

次に上述の成形法を用いて磁石粉末を高体積率化したコンパウンドを成形したので、その結果について述べる。

Fig. 6 にコンパウンドの磁石粉末体積率と粘度との関係について示す。添加剤の量は磁石粉末体積率に関わらず 7.1 vol% (1.8 wt%) とした。粘度の測定は、比較的低温度・低押出速度（温度 210°C 、せん断速度 25 sec^{-1} ）で成形する押出成形と高温度・高射出速度（温度 250°C 、せん断速度 1200 sec^{-1} ）で成形する射出成形とにそれぞれ対応させた二つの条件で行った。まず、射出成形向け条件では、粘度約 10 kpoise 以下のコンパウンド流動性が成形上必要であることから、磁石粉末体積率は 67.5 vol% (93.8 wt%) が成形限界であることが判明した。次に、押出成形向け条件では、コンパウンドが高粘度でも流動可能なため磁石粉末体積率を高めることができ、図で示すように 72.0 vol% (95.0 wt%) まで成形可能となった。

Fig. 7 に磁石粉末体積 72.0 vol% (95.0 wt%) のコンパウンド (Fig. 6 の○印) を押出成形して得られた磁石の減磁曲線を示す。磁気特性は $B_r=6.4$ [kG], $H_c=8.9$ [kOe], $H_{c2}=4.9$ [kOe], $(BH)_{\max}=8.0$ [MGOe], 密度 $=5.7$

Fig. 7 Demagnetization curve for the extrusion molded magnet.

Fig. 8 Result of the heat cycling test.

[g/cm³]であった。また、Fig. 8に可逆温度特性の試験結果について示す。温度範囲30~150℃、磁石の寸法比L/D=1.0の条件での可逆温度係数は-0.10 [%/℃]であった。このように本成形法では磁石粉末を高体積率化したコンパウンドの成形が可能であり、一般的な磁気特性が(BH)_{max}=4~6 [MGOe]の射出成形品よりも高い磁気特性を有する磁石が得られた。特に小型かわら形状では、成形品内での密度ばらつきの少ない磁石が成形でき、磁気特性は圧縮成形品にも匹敵する。

Fig. 9に本成形法によって成形した磁石の外観について示す。これら長尺・薄肉のパイプ状磁石、小型かわら状磁石は従来の成形方法では成形困難な形状であるが、新しく開発した金型内冷却固化成形法を用いることにより容易に成形することが可能となった。

4. まとめ

Nd-Fe-B系等方性磁石粉末とナイロン-12を用い、押

Fig. 9 Nd-Fe-B extrusion molded magnets.

出成形におけるコンパウンドの安定性の向上および希土類ボンド磁石に適した成形法の開発を行い、次の結果を得た。

1) 酸化防止剤はコンパウンドの成形安定性の向上に効果があり、連続押出成形が可能となった。

2) 希土類ボンド磁石の押出成形法として金型内冷却固化成形法を開発した。

上記コンパウンドと金型内冷却固化成形法を用いることにより、

3) 磁石粉末を高体積率化したコンパウンドの押出成形が可能となり、磁石粉末体積率 72 vol% で最大エネルギー積 8.0 MGOe の等方性 Nd-Fe-B 系ボンド磁石が得られた。

4) 長尺・薄肉形状、小型かわら形状の磁石を容易に成形することが可能となった。

文 献

- 1) T. Shimoda, K. Kasai and K. Teraishi: Proc. 4th Int. Workshop on RE-Co Perm. Magnets, The Society of Non-traditional Tech., Tokyo (1979), p. 335.
- 2) T. Shimoda, I. Okonogi and K. Teraishi: Proc. 5th Int. Workshop on RE-Co Perm. Magnets, Univ. of Dayton, Dayton (1981), p. 595.
- 3) J. J. Croat, J. F. Herbst, R. W. Lee and F. E. Pinkerton: *J. Appl. Phys.*, **55**, 2078 (1984).
- 4) T. Shimoda, E. Natori and C. Tomita: Proc. 8th Int. Workshop on RE Magnets, Univ. of Dayton, Dayton (1985), p. 297.
- 5) R. E. Johnson: Proc. 5th Int. Workshop on RE-Co Perm. Magnets, Univ. of Dayton, Dayton (1981), p. 595.
- 6) 阿部嘉長, 須藤 真: 「プラスチック配合剤」, 大成社, 東京 (1984), p. 145.

1991年11月12日受理, 1992年1月30日採録