湿式成形による高性能 Nd-Fe-B 系 焼結磁石の開発

内田 公穂¹⁾ 高橋 昌弘²⁾
谷口 文丈²⁾ 三家本 司³⁾

1. はじめに

Nd-Fe-B 系焼結磁石は永久磁石の中で最も高い性能を有する高性能磁石として、すでに多くの応用に用いられている。しかしながら、高性能化と低コスト化の市場からの要求はその生産量の増大とともに、ますます大きくなりつつある。特に高性能化要求の大きい分野は CD 用光ピックアップ、VCM(ボイスコイルモータ)、回転機である。各メーカともこれら市場要求に対応するため、Nd-Fe-B 磁石の磁気特性を向上する努力を継続している⁽¹⁾⁻⁽⁴⁾。

Nd-Fe-B 系焼結磁石の磁気特性向上の手段は(1)主相の飽和磁化の向上、(2)主相の体積率の増加、(3)配向度の向上、(4)密度向上、(5)結晶粒径の制御等がある。一般に希土類磁石の場合は希土類元素が活性であるため、希土類酸化物が非磁性介在物として存在する。主相の体積率の増加のためには本非磁性介在物の低減が必要不可欠である。希土類磁石は粉末冶金法によって製造されるが、従来の技術においては原料微粉や成形体の酸化の制御に限界があり、量産での焼結体酸素量の下限値は 0.4~0.5 mass%であった。

以上の背景から、筆者らは低酸素化のプロセス技術を検討し、その結果、特殊な油を溶媒として使用する湿式プロセス(HILOP: Hitachi Low Oxygen Process)により、含有酸素量の低減された高性能 Nd-Fe-B 系焼結磁石の量産技術を確立した⁽⁵⁾⁽⁶⁾。

2. 低酸素化の方法

良く知られているように、Nd-Fe-B 系焼結磁石は①強磁性相である $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 主相、②非磁性相である $\text{Nd}_{1+x}\text{Fe}_4\text{B}_4$ (B リッチ相)、③非磁性相である $\text{Nd}_{85}\text{Fe}_{15}$ 相(Nd リッチ相)、④ Nd 酸化物相(Nd_2O_3)等の相からなる。①、②、③の3相の存在は Nd-Fe-B 系3元状態図から理解される。さらに④はプロセス中に磁粉が酸化し、焼結過程で生成する。したがって、強磁性相の体積率向上のためには非磁性層である B リッチ相、Nd リッチ相、Nd 酸化物の低減が必要となる。総希土類量としては主相、B リッチ相および酸化物を形成するために消費される量その他、保磁力発現に必要な Nd リッチ相を維持する量が必要である。Nd リッチ相は Nd-Fe-B 系焼結磁石の焼結過程で液相を形成し、緻密化に寄与する。また、焼結体では強磁性相を取り囲む非磁性相として存在し、磁壁の移動を遮断して保磁力の発現に寄与する。したがって、低酸素化によって非磁性介在物である Nd 酸化物を低減することは相対的に主相の体積率を上昇させ、磁石組成を低希土類量とすることができ、高性能化が可能となる。

従来の低酸素化の方法としては、有機溶媒中の湿式粉碎や無酸素雰囲気中の成形等が検討されているが、量産レベルにおいて十分な酸化防止に至っていない。乾式法である従来プロセスと湿式プロセス(HILOP)の比較を図1に示す。乾式法ではジェットミルの粉碎室に微量の酸素を導入し、粉碎媒体である N_2 ガスあるいは Ar ガス中の酸素濃度を、0.1%程度に制御して微粉碎を行う。これは後工程である空気中でのハンドリング時の急激な酸化を防止するためである。このため、得られる微粉の酸素量は 0.6 mass%に達し、焼結体の含有酸素量は 0.5 mass%に達する。一方、HILOP ではジェットミルの粉碎室には酸素の導入を行わない。ジェットミルの微粉回収口に溶媒である特殊な油を設置し、粉碎後の微粉

* 日立金属株式会社
磁性材料研究所: 1)主任研究員 2)研究員
生産システム研究所: 3)研究員
Development of High-Performance Nd-Fe-B Sintered Magnets by the Wet Process, HILOP; Kimio Uchida, Masahiro Takahashi, Fumitake Taniguchi, Tsukasa Mikamoto (Hitachi Metals, Ltd.)
1998年10月29日受理

図1 乾式プロセスと湿式プロセス(HILOP)の比較.

を大気に触れることなく直接油中に回収し、スラリーとする。微粉の表面は油によって被覆され、大気と遮断されるため酸化が防止される。スラリー状の原料を金型に充填し、配向磁界を印加し、成形する。湿式磁界中成形であるため、配向度の高い成形体を得られる。成形体が含有していた油を除去(脱溶媒)した後、焼結される。脱溶媒は373~673 Kの温度範囲で真空中加熱によって行いが、焼結体炭素量は0.1 mass%以下で、溶媒の残存による炭素量の増加は認められない。微粉の酸素量が少ないため、HILOP材の焼結性は良く、乾式法に比べ焼結温度は低下するが、7.60~7.70 g/cm³の焼結体密度が得られる。

3. 焼結体組織

HILOP材では乾式材で顕著な酸素量の粉碎粒度依存性がない。したがって、磁場配向に悪影響が出ない範囲で、その粒径を小さくすることが可能である。図2に従来材とHILOP材の焼結体組織の比較を示す。微粉の粒径と低温焼結により、HILOP材の結晶粒径は乾式法である従来材と比較して、微細で均一である。このような微細組織は磁気特性、特に保磁力*iHc*の安定化に有利である。耐食性もNdリッチ相の微細分散により向上する。表1に従来材とHILOP材の密度と3点曲げ強度を比較して示す。3点曲げ強度は従来材の260~280 MPaに対し320 MPaが得られ、約10%の向上が見られる。

4. 磁気特性

図3にHILOP材の磁気特性のDy量依存性を示す。基本的な組成は重量%でNd_{28.8-x}Pr_{0.5}Dy_xFe_{ba1}Co_{2.0}Nb_{0.7}Ga_{0.1}Cu_{0.1}

図2 従来材とHILOP材の焼結体組織の比較.

表1 従来材とHILOP材の密度と3点曲げ強度の比較.

材 質	密 度 (g/cm ³)	3 点曲げ強度 (MPa)
HILOP 材	7.70	320
従 来 材	7.62	260~280

図3 HILOP材の磁気特性のDy量依存性.

B_{1.0}(x=1.5, 4.5, 5.5, 7.5)である。Dy量を変化させることにより、保磁力*iHc*水準の異なる材料の製造が可能である。これら材質の残留磁束密度*Br*と*iHc*の温度係数(297~393 K)を表2に示す。温度係数は297~393 Kの温度範囲で定義した。これらHILOP材の温度係数は従来材と比較して、若干小さい。図4にはHILOP材の保磁力を変えた場合の不可逆減磁率の温度変化を示す。用いたパーミアンス係数(*Pc*)は2.0である。従来材と同様、*iHc*の高い材料ほど不可逆減磁率が小さく、耐熱性がよい。応用に適したHILOP材の選択が可能である。さらに、HILOPは高*Br*を示す材料にも適用でき、その減磁曲線の例を図5に示す。*iHc*=1.04 MA/m(13.1 kOe)の場合には(BH)_{max}=406 kJ/m³(51.0

表2 HILOP 材の Br , iHc の温度係数.

材 質	磁気特性			Br の 温度係数 (%/K)	iHc の 温度係数 (%/K)
	Br (T)	iHc (MA/m)	$(BH)_{\max}$ (kJ/m ³)		
HILOP	1.29	1.66	321	-0.081	-0.551
	1.26	1.85	305	-0.083	-0.548
	1.23	2.29	293	-0.089	-0.516
従来材	1.20	1.67	277	-0.099	-0.599

表3 HILOP 材の磁気特性.

材 質	Br (T)	iHc (MA/m)	$(BH)_{\max}$ (kJ/m ³)
HS-47AH	1.37	1.20	360
HS-44CH	1.34	1.44	344
HS-40DH	1.24	1.84	304
HS-36EH	1.19	2.24	273

MGOe), $iHc=0.68$ MA/m(8.5 kOe) の場合に $(BH)_{\max}=429$ kJ/m³(53.9 GOe)が得られている.

表3に HILOP 材の材質と磁気特性の代表値を示す.

5. ま と め

製造工程を湿式プロセス(HILOP)とすることにより, 焼結酸素量を 0.2 mass%以下に低減し, 従来材料を大幅に凌駕する磁気特性を有する Nd-Fe-B 系焼結磁石の量産が可能となった. HILOP 材の焼結酸素量は 0.2 mass%以下で, 結晶粒径が微細で耐食性および機械強度にも優れた材料である. HILOP 材は量産における諸特性が安定した材料でもあり, 工業的な意義は大きい. 今後の動向である高性能化に対処可能な製法ということが出来る. 各種応用における小形・軽量・高性能化に対応することが可能である.

HILOP 材の更なる高性能化および湿式法という特徴あるプロセスを生かす磁石製法の改善を現在も継続している.

6. 特 許

登録2, 731, 337, USP5, 489, 343の他出願40件.

文 献

- (1) E. Otsuki, T. Otsuka and T. Imai: Proceedings of the 11th Workshop on RE Magnets and their Applications, Pittsburgh, (1990), p. 328.
- (2) M. Sagawa, S. Fujimura, H. Yamamoto, Y. Mitsuura and K. Hiraga: J. J. Appl. Phys., **26**(1987), 785.
- (3) 遠藤 実, 新藤幹夫: 粉体および粉末冶金, **41**(1994), 985.
- (4) 金子裕治, 笹川泰英, 國吉 太: 粉体粉末冶金協会平成10年度春季大会講演概要集, (1998), 2-44A.
- (5) 内田公穂, 高橋昌弘, 谷口文丈, 三家本 司, 佐々木研介: 日立金属技報, **13**(1997), 59.
- (6) T. Takahashi, K. Uchida and F. Taniguchi: J. Appl. Phys., **83**(1998), 6402.

図4 HILOP 材の保磁力を変えた場合の不可逆減磁率と加熱温度の関係 ($Pc=2.0$).

図5 高エネルギー積 HILOP 材の減磁曲線.