

# 高性能 NEOMAX の開発

## Development of High Performance NEOMAX Magnets

金子裕治/Yuji Kaneko・住友特殊金属㈱ 研究開発部マグネット開発室 主任研究員 工博

石垣尚幸/Naoyuki Ishigaki・住友特殊金属㈱ 開発本部 主席研究員 マグネット開発室長 工博

### 要 約

NEOMAXの高性能化と耐熱性の改良を図るために、Nd-Fe-B焼結体の結晶組織を微細化・均一化する新技術について研究を行った。原料合金の新しい溶製技術の開発、微粉碎技術の改良ならびに焼結技術を高めることにより、400 kJ/m<sup>3</sup>を超える超高性能材ならびに 240°Cの高温まで使用可能なNEOMAX-EHシリーズの開発に成功した。

### Synopsis

In order to obtain better magnetic properties and to improve temperature stability of NEOMAX magnets, new technologies for controlling the micro-structure of Nd-Fe-B sintered magnets so that it becomes fine and uniform have been developed. With a new casting process for Nd-Fe-B alloy, an improved milling technique, and adjustment of sintering conditions, we succeeded in developing the highest energy magnet in the world, exceeding 400 kJ/m<sup>3</sup>, and the new advanced NEOMAX-EH series which has higher temperature resistance, up to 240°C.

## 1. はじめに

希土類-鉄-ほう素系永久磁石は、1982年に住友特殊金属㈱の佐川真人博士(現 インターメタリックス㈱)らによって発明され、最強の永久磁石としてエレクトロニクス製品や OA・FA 用の各種モータ、医療用診断装置など広範囲な分野で応用されている。1995年の日本における生産量は約 1900 Ton に達し、磁石応用分野の小型化・軽量化ならびに高機能化を支える必要不可欠な機能性材料として脚光を浴びている。第 1 図に希土類-鉄-ほう素系永久磁石(当社商品名: NEOMAX)の応用分野について材質ごとに分類をした一例を示す。永久磁石は電気をいれることなく、外部の空隙に磁束を安定して供給できるパワーソースである。最近、省エネルギーの観点からエアコン用のコンプレッサ用モータへの応用や、さらに自動車の安全性向上のために制動装置への応用(リターダ、ABS センサーなど)が盛んである。

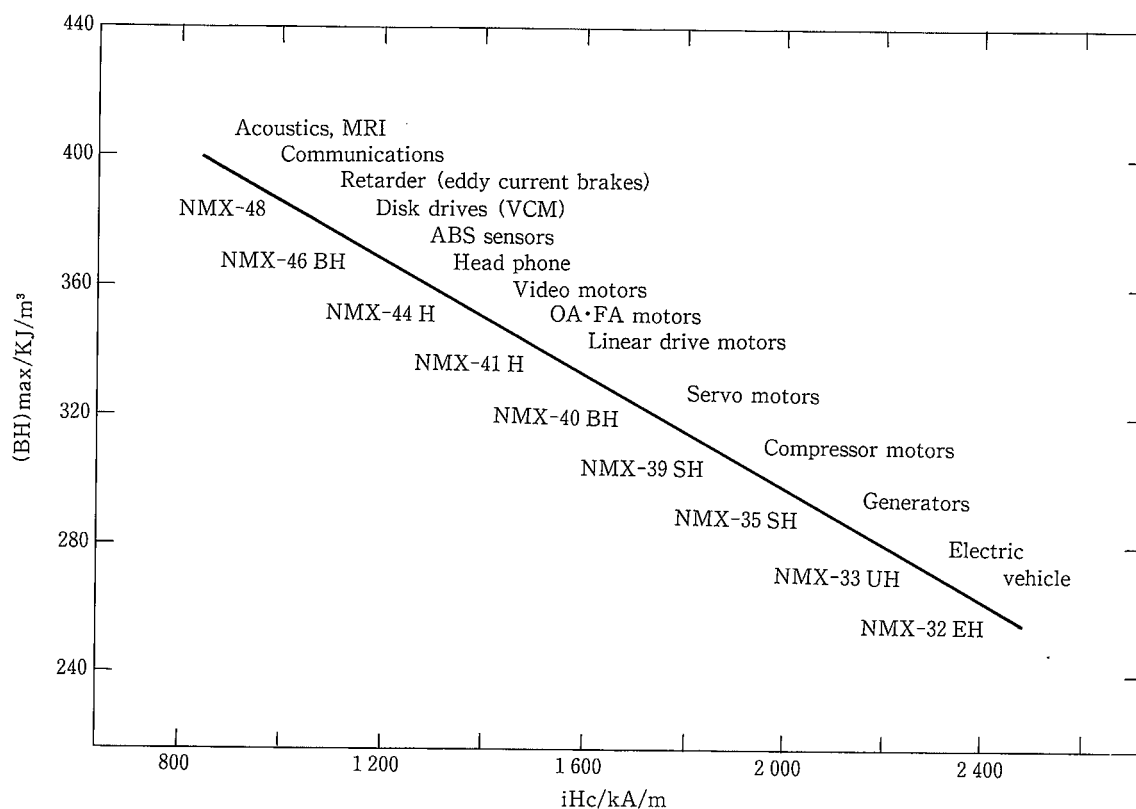
NEOMAX は、希土類元素(R)として Nd, Pr, Dy など を約 32 wt %, ほう素(B)を約 1 wt % 含み、残りは Fe を主成分とし、主として 3 つの金属間化合物から構成される。主相は強磁性の Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 相、さらに常磁性の Nd<sub>11</sub>Fe<sub>4</sub>B<sub>4</sub> 相(B-rich 相)および結晶粒界相として Nd<sub>19</sub>Fe 相(Nd-rich 相)が含まれる<sup>2)</sup>。第 2 図に NEOMAX の製造工程を示す。最初に Nd, Fe, Fe-B(フェロボロン)などの素原料

を溶解・鋳造し Nd-Fe-B 系の原料合金にする。この合金塊を粗粉碎、微粉碎をして約 3 μm の微粉末にし、ついで各結晶粒の磁化容易軸方向を整列させるため、磁界中でプレス成型をする。得られた成型体は、焼結、熱処理、加工、表面コーティングの工程を経て NEOMAX になる。そこで、この粉末冶金のプロセスにおいて、NEOMAX の高性能化を実現するためには、如何にして粉体製造技術を高めるか?、如何にして焼結体の結晶組織の制御技術を確立するか? が重要な技術課題である。

本報では、NEOMAX の各結晶粒を微細化・均一化し、かつ、磁化容易軸方向の配向度を高めることにより、400 kJ/m<sup>3</sup>(50 MGOe)を超える超高性能磁石と 513 K(240°C)でも使用可能な高耐熱磁石を開発した研究成果について報告する。

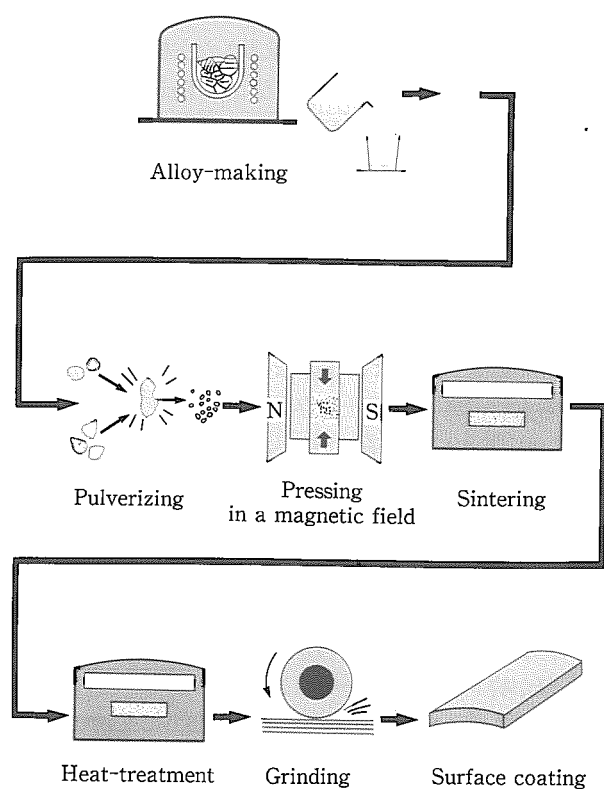
## 2. 実験方法

純度 99.5% の Nd, Pr, Dy, 99.9% の電解 Fe およびフェロボロン(B-20.2% Fe Bal.)を用いて(Nd, Pr, Dy)<sub>12.5-15</sub>Fe<sub>77-81.5</sub>B<sub>6-8</sub>組成に高周波溶解し、鉄製の鋳型に鋳造して原料合金を溶製した。一方、上記組成の合金を、ロール冷却による溶湯急冷法によっても作製した。これらの合金は約 500 μm に粗砕した後、N<sub>2</sub>ガス噴射のジェットミルを用いて平均粒径が約 3 μm の微粉末にした。得られ



第1図 NEOMAX の応用分野

Fig.1 Breakdown by application of NEOMAX



第2図 NEOMAX の製造工程

Fig.2 A flow chart of the production process of NEOMAX

た微粉末について、フィッシャー・サブ・シーブサイザーにより平均粒度を測定した。また、その粒度分布については He-Ne レーザ回折式粒度分布測定装置により評価した。微粉末は磁界中で  $10 \times 12 \times 15$  mm にプレス成形し、Ar 雰囲気中、1300~1350 K に 7.2 kS 加熱して焼結した。さらに 750~850 K で熱処理を行った後、2.4 MA/m の磁界で着磁してから B-H トレーサで磁石特性を測定した。他方、インターメトリックス㈱の RIP 成型装置を用いて<sup>3)</sup>、 $\phi 25 \times 10$  mm の成型体を作製し、上述と同様に焼結体にした後、磁石特性を測定した。焼結体の結晶組織は、走査型電子顕微鏡ならびに Kerr 顕微鏡で観察し、結晶粒径分布を画像処理法により求めた。

### 3. NEOMAX の高性能化について

#### 3-1 高 Br 化のプロセッシング技術

Nd-Fe-B 系磁石の理論値は  $512 \text{ kJ/m}^3$  (64 MGOe) である<sup>4)</sup>。これまでの研究報告において、 $431 \text{ kJ/m}^3$  (54.2 MGOe) が達成されている<sup>5)</sup>。すなわち、Nd-Fe-B 系磁石の残留磁束密度を高めるためには、(1)式に基づいて各重要因子を技術的に確立する必要がある。

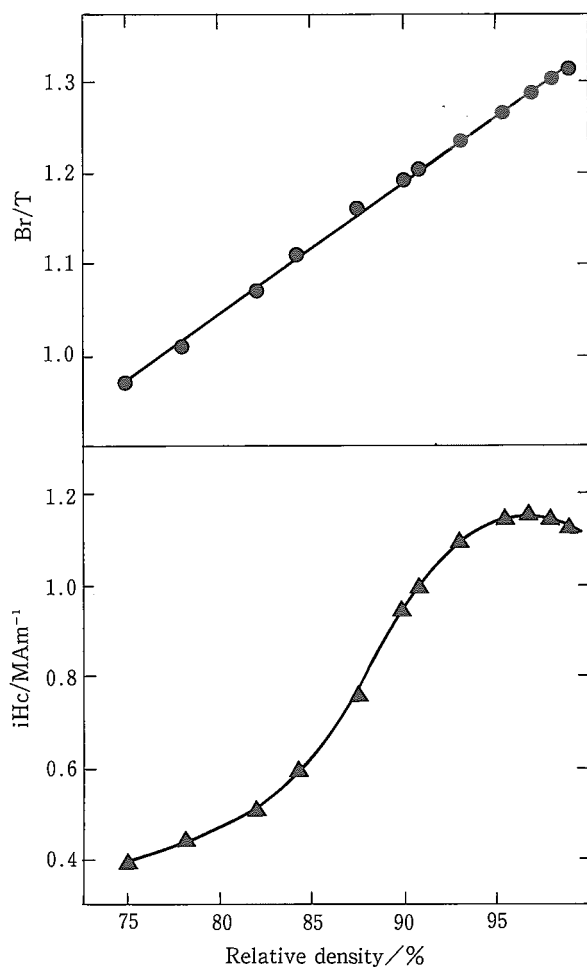
$$Br \propto (Is \cdot \beta) \cdot \{(\rho/\rho_0) \cdot (1-\alpha)\} \cdot f \quad \cdots (1)$$

Is: 飽和磁化,  $\beta$ : 飽和磁化の温度係数,  $\rho$ : 焼結体の密度,

$\rho_0$ : 理論密度,  $\alpha$ : 非磁性相の体積割合,  $f$ : 結晶配向度

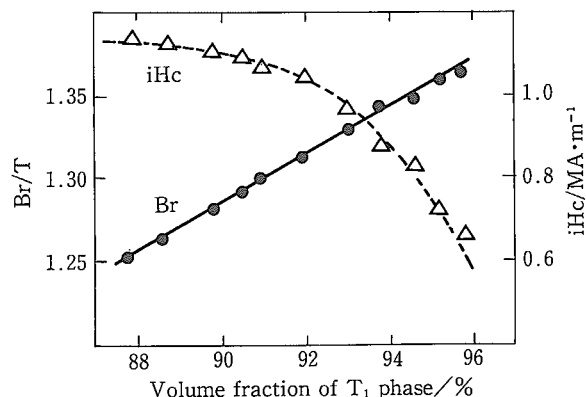
第3図に  $\text{Nd}_{14.5}\text{Fe}_{79}\text{B}_{6.5}$  組成の焼結体の相対密度 ( $\rho/\rho_0$ ) と磁石特性の関係を示す。Br は相対密度の増加に正比例して向上する。しかも、保磁力 (iHc) についても、密度の増加にともなって急激に増大し、95%~97% でほぼ飽和値に達する。すなわち、NEOMAX の高性能化を実現するためには、磁石の組成を適正化し、かつ、焼結条件を最適化して、液相焼結機構による緻密化反応を促進することが必要である。

焼結体の成分分析値から  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  相 ( $T_1$  相) の体積割合を算出し、磁石特性との関係を検証した結果を第4図に示す<sup>6)</sup>。Br は主相の体積割合の増加に比例して向上する。これに対して、iHc は主相の増加にともなって漸次減少し、93% 以上では急激な低下を示した。このことは、主相を増加させると、そのバランスとして B-rich 相や Nd-rich 相が減少するために、焼結時に生成する液相量が不足して結晶粒の異常成長が起こったり<sup>7)</sup>、結晶粒と粒界相との整合



第3図  $\text{Nd}_{14.5}\text{Fe}_{79}\text{B}_{6.5}$  組成の焼結体の相対密度と磁石特性の関係

Fig.3 Relationship between relative densities and magnetic properties of  $\text{Nd}_{14.5}\text{Fe}_{79}\text{B}_{6.5}$  specimens



第4図 Nd-Fe-B 系焼結磁石の磁石特性に及ぼす主相 ( $T_1$ ) の体積割合の影響

Fig.4 Dependence of magnetic properties on the volume fraction of  $T_1$  phase for the Nd-Fe-B sintered magnets

性が不十分になることが原因と推察される<sup>8)</sup>。したがって、磁石の組成を制御して単純に主相の体積割合を増加させる手法だけでは、高性能磁石に要求される高 Br 化と高 iHc 化とを同時に達成することは困難である。

### 3-2 結晶組織の微細化

NEOMAX の高保磁力化を達成するために、均一な粒径分布を有する微細結晶組織の焼結体を得る技術開発に取り組んだ。新しく開発した Nd-Fe-B 系合金の溶製技術として、ロール急冷方法によって得られた合金の鍛造組織を、従来方法による鋳型溶製合金と比較して写真1に示す。鋳型溶製合金には 200  $\mu\text{m}$  以上に成長した主相のデンドライトが存在し、その間隙を埋めるように Nd-rich 相が偏在する。しかも、磁石特性などに悪影響を及ぼす初晶 Fe の晶出が認められる。これに対して新規な合金溶製法による合金は、デンドライトの短軸方向の大きさが約 10  $\mu\text{m}$  以下と微細で、しかも Nd-rich 相が主相の回りに細かく分散した組織を示す。

これらの合金をジェットミル粉碎して得られた微粉末の粒度分布を第5図に示す。従来法による粉末には 10  $\mu\text{m}$  以上の粗大粒子が 10% 以上も存在し、1  $\mu\text{m}$  以下の超微粉末から 40  $\mu\text{m}$  の粗大粒子まで広い粒度分布を示す。一方、新製法による粉末は、最適の 3~5  $\mu\text{m}$  を最大頻度とし、5  $\mu\text{m}$  以上の存在量が 5% 以下の鋭い粒度分布を有することが分かる。写真2にこれらの粉末を用いて作製した焼結体の結晶組織を示す。従来技術における Nd-Fe-B 系焼結磁石の結晶粒径の 10~20  $\mu\text{m}$  に対して、新製法によれば、平均結晶粒径が約 6  $\mu\text{m}$  と 1/2~1/3 まで微細化・均一化することができる。第6図に平均結晶粒径と保磁力の関係を示す。結晶粒径を 10  $\mu\text{m}$  以下に細かくすることにより保磁力は急激に増加する傾向にあることが分かる。すなわち、同じ組成の磁石であっても結晶組織を微細化することにより、保磁力を約 25% 向上できることが明らかになった。

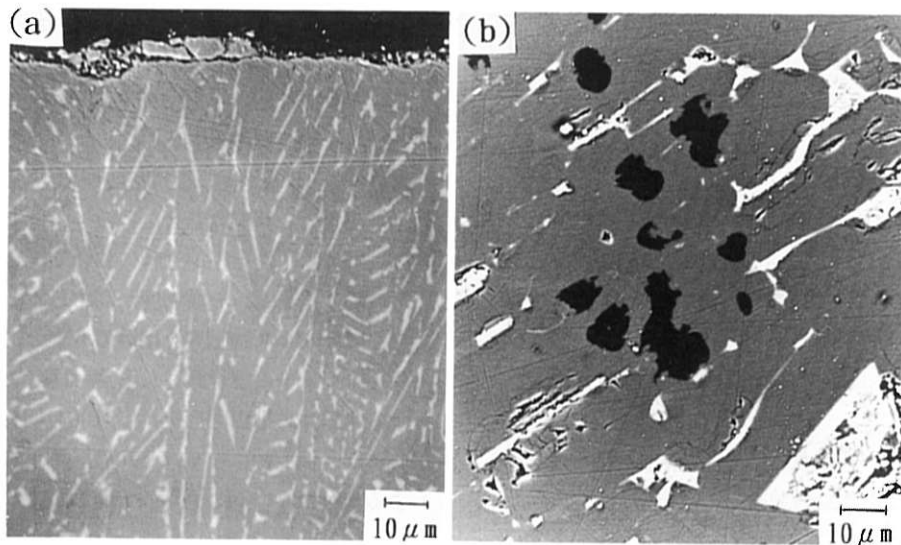
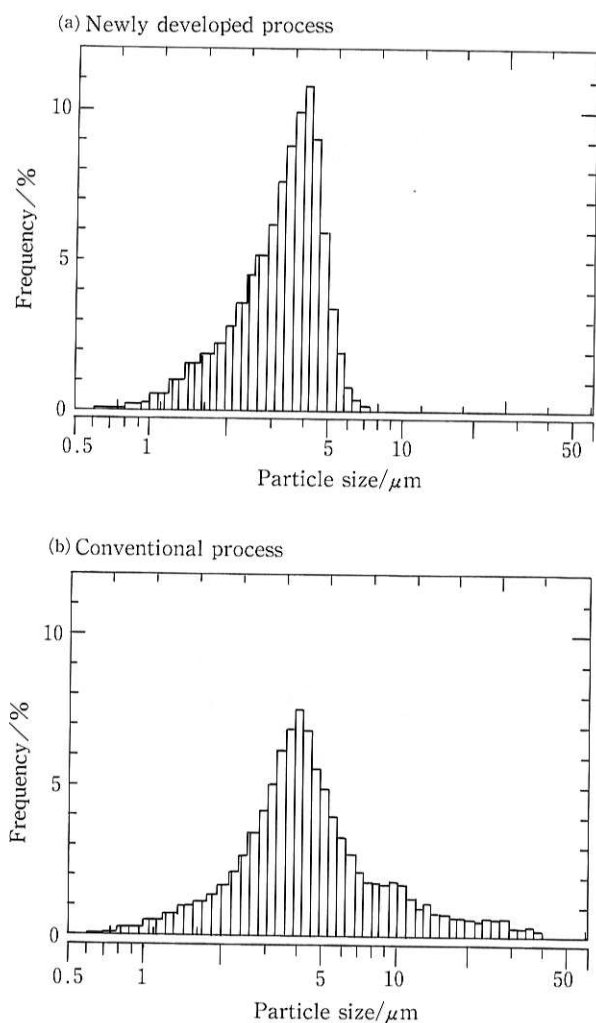


写真1 NEOMAX用の原料合金の金属組織  
(a): 新開発の溶製品, (b): 従来溶製品

Photo 1 Microstructure of the alloy ingots for NEOMAX prepared by (a) the new casting method, and (b) the conventional casting



第5図 新しく開発したプロセスと従来方法によるNd-Fe-B合金粉末の粒度分布

Fig.5 Particle size distribution of Nd-Fe-B alloy powders prepared by (a) the newly developed process and (b) the conventional process

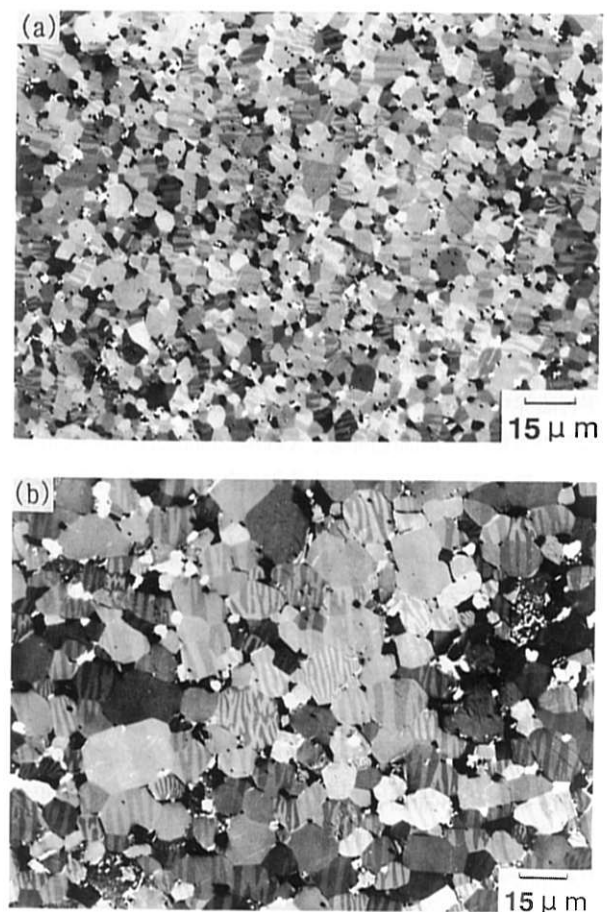
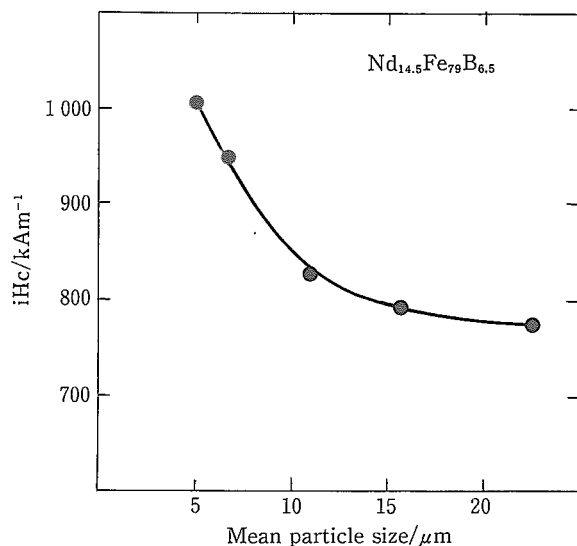


写真2 Nd-Fe-B焼結磁石の結晶組織  
(a): 新開発品, (b): 従来品

Photo 2 Microstructure of Nd-Fe-B sintered magnets prepared by (a) the newly developed process and (b) the conventional process



第6図 Nd-Fe-B焼結磁石の結晶粒径と保磁力の関係

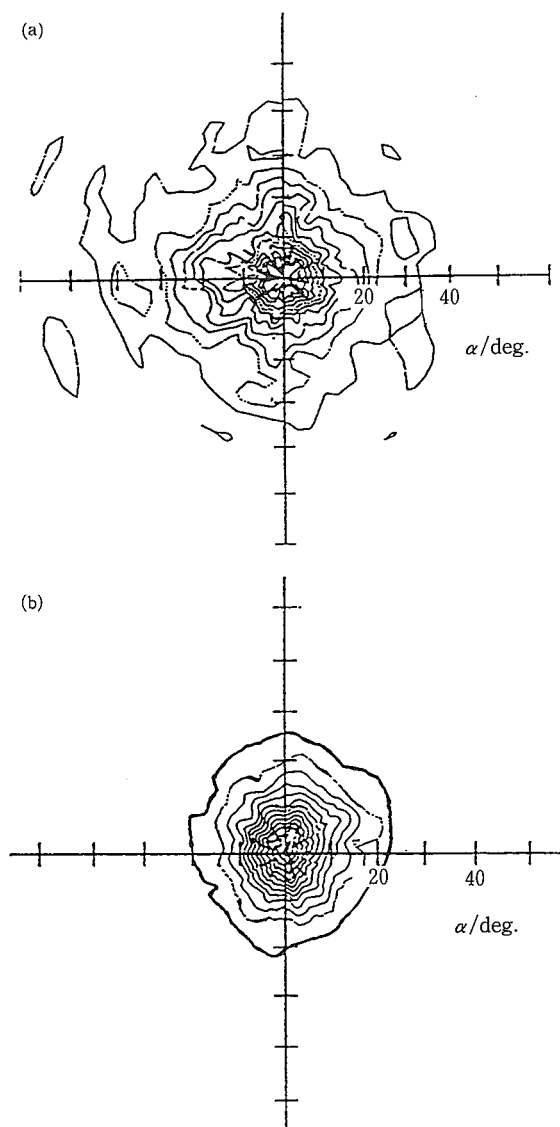
Fig.6 Relation between the mean particle size and coercivity of Nd-Fe-B sintered magnets

### 3-3 結晶配向度の向上

NEOMAXの製造プロセスでは、各結晶粒の磁化容易軸方向を揃えるために磁界中でプレス成形を行う。ここで、印加した磁界の方向とプレス圧縮方向とが直交する直角磁界中成型と、両者の方向が同一方向の平行磁界中成型とに分類される。前者はブロック形状品の成型に適し、(BH)max値は後者に比べて10～15%高くなる。しかし、後者の平行磁界中成型は、リング形状品や弓形形状品など、Near Net Shapeな成型が可能である。そこで、直角磁界中成型品と平行磁界中成型品の特長差の原因を明らかにするために、両者の焼結体の結晶配向度をX線極点図形法を用いて評価した。第7図に各成型法による焼結体について、磁化容易軸方向であるNd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B結晶の(004)回折線の極点図形を示す。直角磁界中成型の場合には、軸の中心に向かって回折線強度が強くなり、しかも測定角度の変化に対する回折線強度の分布が狭い。これに対して、平行磁界成型では(004)回折線の強度の分布が広範囲に広がっており、各結晶粒の磁化容易軸方向の配向度が低いことを示唆する。このことは、直角磁界成型では印加した磁界の方向と直交する方向から圧縮するため結晶配向度への影響は比較的小さいが、平行磁界成型の場合には配向を押し潰すように圧縮するため結晶配向度が低下して磁石特性の劣化を引き起こすものと考えられる。

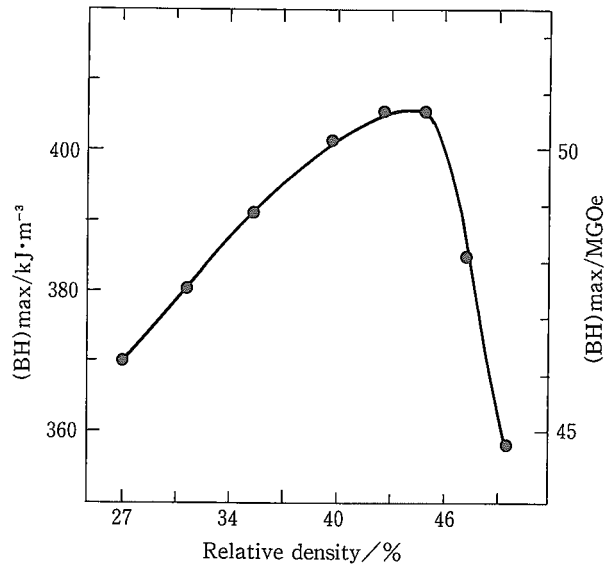
新しい粉末成型方法として、ラバーモールドに粉末を充填し、2.4 MA/mを超えるパルス強磁界により配向し、しかも、静水圧的にプレス成型するインターメタリックス(株)で開発されたRIPプロセスについて検討した。第8図にラバーモールドへの粉末充填密度と磁石特性の関係を示す。前述の金型による直角磁界中成型あるいは平行磁界中成型の場合、最適とされる粉末充填密度は相対値で27%付近で

あるのに対して、新プロセスでは、充填密度を高めるほどBrおよび(BH)maxが向上し、40～45%付近で最高の磁石特性が得られる。しかし、充填密度を46%以上に高めると急激な特性劣化が生じる。これらの現象は次のように解釈できる。すなわち、相対密度が40%以下の状態では、パルス磁界により配向させた各粒子の自由度が大きすぎるために、静水圧的な圧縮過程において容易に配向が乱れることになる。また、充填密度が高すぎると粒子同士が抵抗になって、パルス強磁界を用いても十分に配向することができなくなるものと推察される。第9図にRIP新プロセスによる焼結体の極点図形を示す。(004)回折線の分布は軸の中心に向かって密になり、しかも、特定の方向からの圧縮による乱れない同心円状の分布を示すことが分かる。



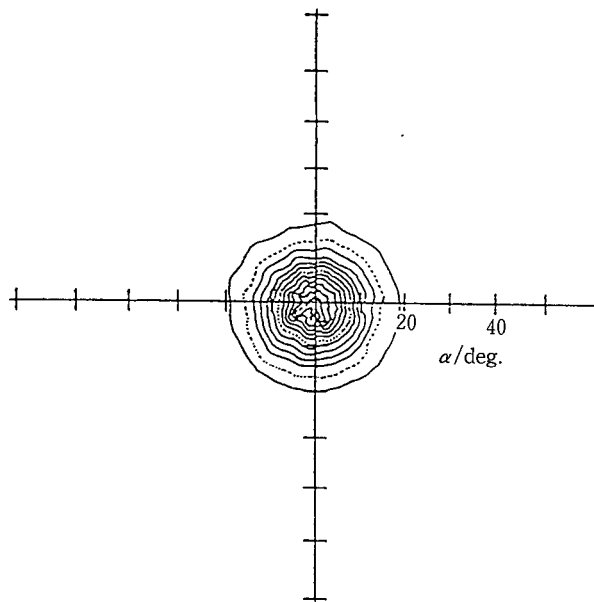
第7図 直角磁界中成型方法と平行磁界中成型方法によって作製したNd-Fe-B焼結磁石のx線極点図形

Fig.7 X-ray pole figures for (004) diffraction line of Nd-Fe-B sintered magnets prepared by (a) the parallel magnetizing, and (b) the perpendicular magnetizing pressing



第8図 Nd-Fe-B 焼結磁石の磁石特性に及ぼすゴム型への粉末充填密度の影響

Fig.8 Dependence of magnetic properties of  $\text{Nd}_{13.5}\text{Fe}_{80.5}\text{B}_{6.0}$  magnets on the packing densities to the rubber mould



第9図 RIP新プロセスによる高性能Nd-Fe-B磁石の極点図形

Fig.9 X-ray pole figures of newly developed high performance Nd-Fe-B sintered magnet prepared by the RIP process

## 4. 高性能 NEOMAX の開発

### 4-1 超高性能 NEOMAX

Nd-Fe-B 系磁石を構成する各化合物相の割合を制御する合金設計技術、粒度分布の精密な制御技術、結晶配向度の向上化技術ならびに微細で緻密な焼結体の製造技術など、NEOMAX の高性能化に必要な基盤技術を確立することにより、世界トップレベルの高性能材を開発できた。第10図に当社の高性能 NEOMAX の磁石特性分布を示す。最大エ

ネルギー積が  $390 \text{ kJ/m}^3$  で、 $iH_c$  が  $955 \text{ kA/m}$  以上の NEOMAX-48 をはじめとして、 $iH_c$  のレベルを  $1115 \text{ kA/m}$  以上、 $1355 \text{ kA/m}$  以上に高めた高性能材を量産化している。

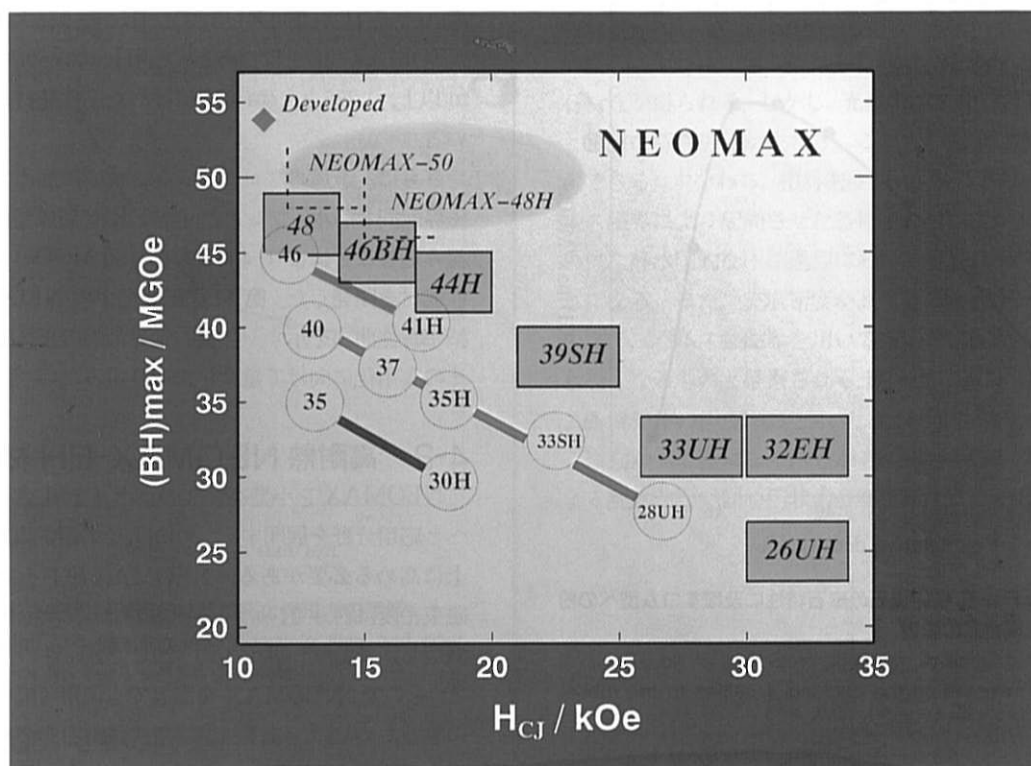
さらに、上述のプロセッシング技術に加えて、パルス強磁界配向と静水圧プレスが可能な RIP 新成型技術を工程に組み込むことにより、 $400 \text{ kJ/m}^3$  ( $50 \text{ MGOe}$ ) を超える超高性能材を開発した。第11図に開発中の NEOMAX-50 の減磁特性曲線を示す。今後、世界最強の永久磁石として、その実用化に向けて量産化に取り組みたい。

### 4-2 高耐熱 NEOMAX-EH 材の開発

NEOMAX を小型高性能のロボット用、さらに自動車用へと応用分野を展開するためには、その耐熱温度を  $160^\circ\text{C}$  以上に高める必要がある。NEOMAX 磁石を高温に曝すと、磁束密度は約  $0.11\%/^\circ\text{C}$ 、保磁力は  $0.6\%/^\circ\text{C}$  の変化率で減少し、キュリー温度の約  $320^\circ\text{C}$  で強磁性の特性が失われる。そこで、NEOMAX を高温でも使用可能な高性能磁石にするためには、まず、室温での保磁力を高め、温度に対する変化率(温度係数)を改善し、そのキュリー温度を上げることが重要である。

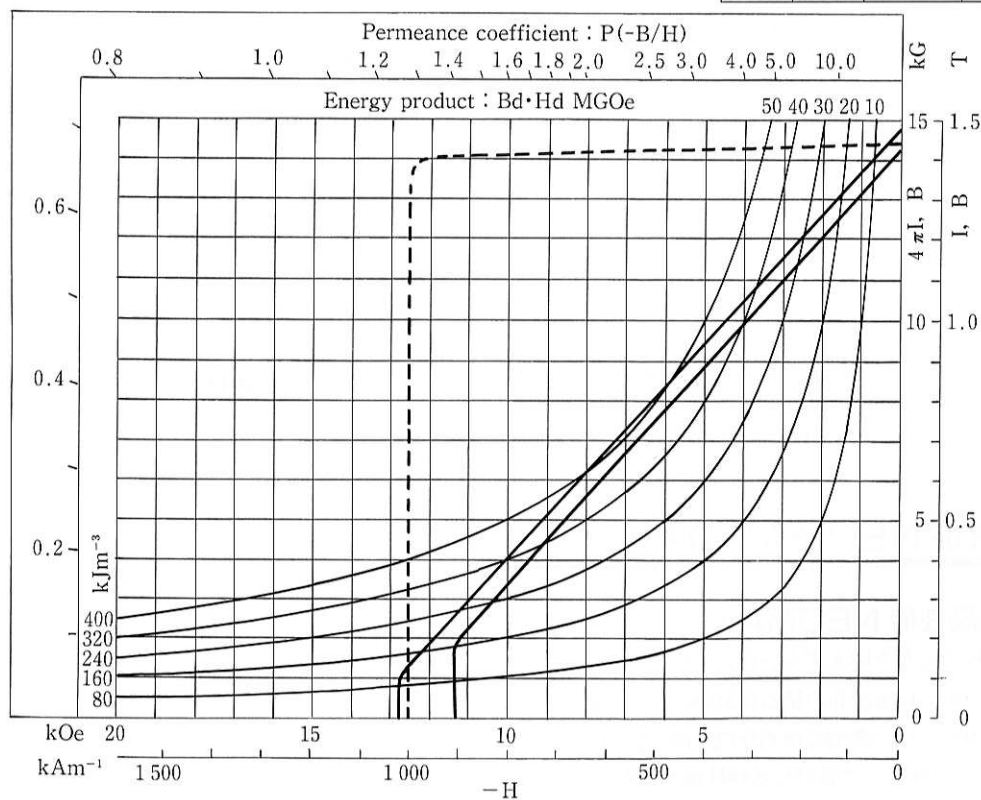
$\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  主相の組成の最適化について検討し、希土類元素(R)として Nd や Pr あるいは Dy などを組み合わせ、Al, Cu, Mo などの最適量を添加することにより異方性磁界が大きくなり、保磁力が向上する。また、キュリー温度を高めるためには Co 添加が有効で、 $30^\circ\text{C}$  以上改善できることが分かった。

第12図に NEOMAX-32 EH 新材質の減磁特性曲線の温度依存性を示す。室温における保磁力( $iH_c$ )は最高の  $2.4 \text{ MA/m}$  ( $30 \text{ kOe}$ ) 以上にまで高まり、Sm-Co 磁石を上回る  $240 \text{ kJ/m}^3$  以上の磁気エネルギーを発揮する。第13図に 32 EH 新材質を高温に保持した場合の磁束の減少率(不可逆減磁率)を他の NEOMAX 材質と比較して示す。EH 新材質は、磁石の使用条件によっては  $240^\circ\text{C}$  付近の高温まで不可逆減磁が起らない。さらにこの磁石の特徴として、Br と  $iH_c$  の温度依存性を第14図に示す。 $20^\circ\text{C} \sim 120^\circ\text{C}$  の Br の温度係数は  $-0.09\%/^\circ\text{C}$  で従来比約  $18\%$ 、 $iH_c$  についても  $-0.45\%/^\circ\text{C}$  と  $10\%$  以上改善している。このことは、サーボモータや電気自動車駆動用モータなど小型高性能モータ用への応用分野において、使用温度に対する磁束の安定性が大幅に向上することを示している。

第10図 高性能 NEOMAX の (BH)max と  $iH_c$  の特性分布Fig.10 Relation between (BH)max and  $iH_c$  of high performance NEOMAX magnets

NEOMAX-50

Br kG	bHc kOe	(BH)max MGOe	$iH_c$ kOe
14.1 14.7	11.3 12.8	48 52	$\geq 12$



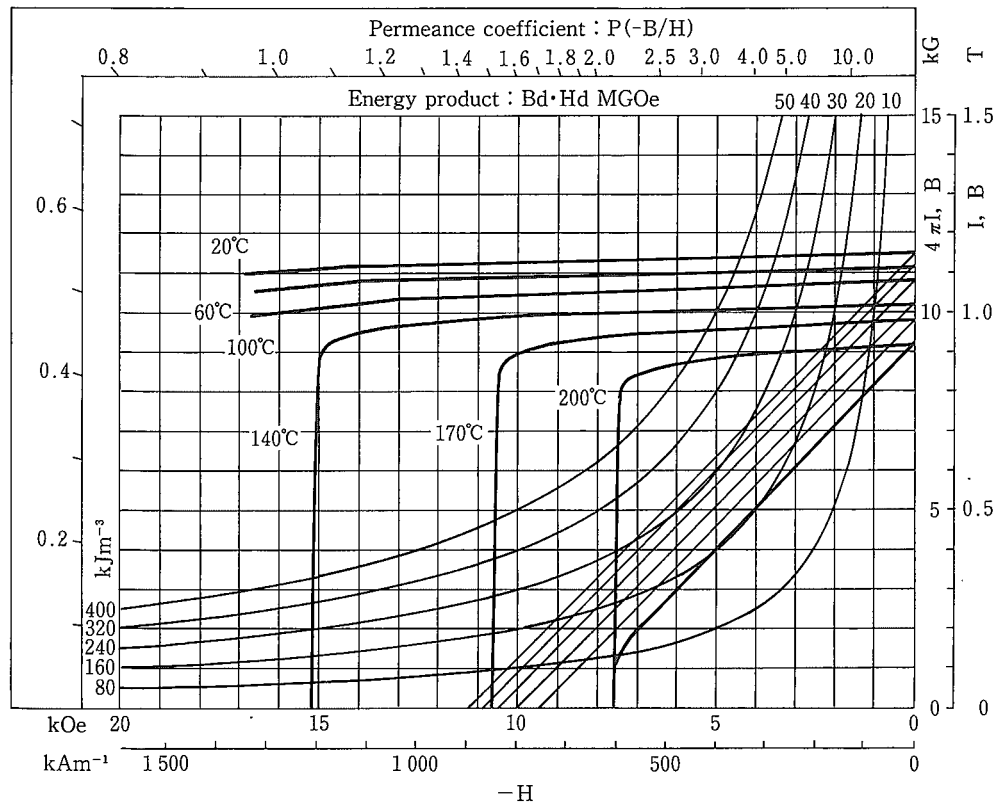
第11図 新開発の NEOMAX-50 の減磁特性曲線

Fig.11 Demagnetization curves of the newly developed NEOMAX-50



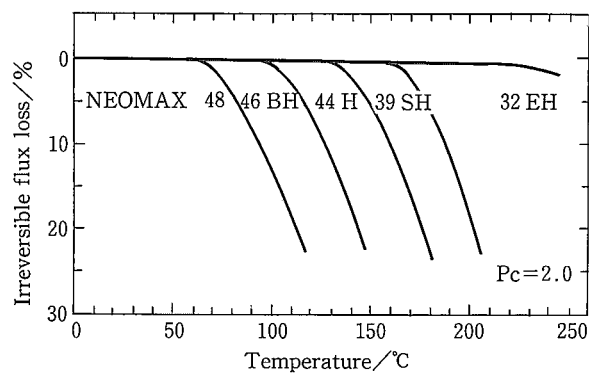
## NEOMAX-32 EH

(°C)	Br (kG)	H <sub>cb</sub> (kOe)	(BH) <sub>max</sub> (MGOe)	H <sub>cj</sub> (kOe)
20	11.51	11.22	32.3	32.0
60	11.12	10.84	30.1	26.4
100	10.75	10.44	28.0	20.7
140	10.24	9.98	26.4	15.1
170	9.78	9.50	23.7	10.6
200	9.15	7.50	20.6	7.5



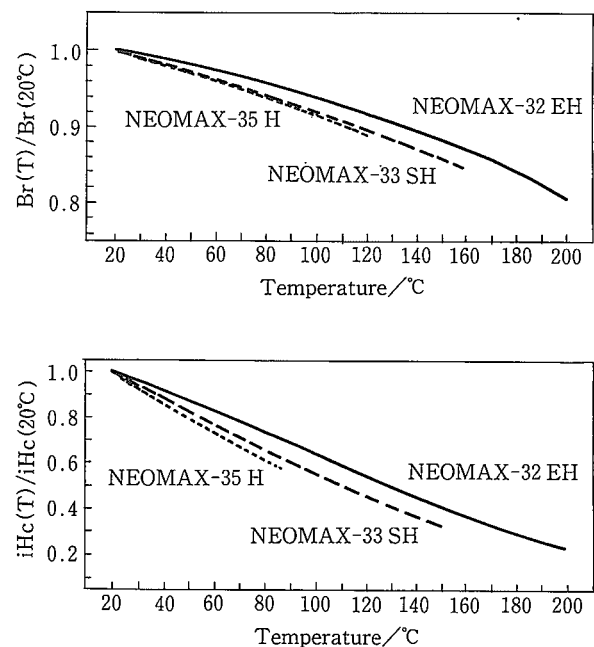
第 12 図 NEOMAX-32 EH 新材質の減磁曲線の温度依存性

Fig.12 Temperature dependence of demagnetization curves of the new advanced NEOMAX-32EH



第 13 図 NEOMAX の不可逆減磁率の温度依存性

Fig.13 Typical irreversible loss of high performance NEOMAX magnets as a function of temperature



第 14 図 NEOMAX-32 EH の Br と iHc の温度依存性

Fig.14 Temperature dependence of residual flux(Br) and coercivity(iHc) of NEOMAX-32EH compared with the conventional NEOMAX



## 5. まとめ

NEOMAX の高性能化に取り組み、焼結体の結晶組織を微細かつ均一に、各結晶粒の磁化容易軸方向の配向度を極限にまで高め、しかも結晶の成長を抑えながら真密度近くにまで緻密化させるプロセッシング技術の改良と開発により、 $400 \text{ kJ/m}^3$ を超える超高性能磁石をはじめとして、 $240^\circ\text{C}$  付近の高温にも耐え得る高耐熱磁石を開発した。

今後も、NEOMAX の応用分野の拡大に向けて、高性能化・高機能化の研究と開発に取り組みたい。



金子裕治 / Yuji Kaneko

住友特殊金属㈱ 研究開発部マグネット開発室  
主任研究員 工博

(問合せ先：075(961)3140)

## 参考文献

- 1) M.Sagawa, S.Fujimura, N.Togawa, H.Yamamoto and Y. Matsuura : J.Appl. Phys., **55**, (1984), 2083.
- 2) M.Matsuura, S.Hirosawa, H.Yamamoto, S.Fujimura, M. Sagawa and K.Osamura : Jpn. J.Appl. Phys., **24**(1985), 10.
- 3) M. Sagawa and H.Nagata : IEEE Trans. Mag., MAG-**29** (1993), 2747.
- 4) M.Sagawa, S.Fujimura, N.Togawa, H.Yamamoto, Y. Matsuura and S.Hirosawa : J.Appl. Phys., **57**(1985), 4094.
- 5) Y.Kaneko and N.Ishigaki : JMEPEG, **3**(1994)228.
- 6) 金子, 徳原, 石垣 : 粉体および粉末冶金, **41**(1994), 695.
- 7) 金子, 真島, 勝山, 永井 : 日本金属学会誌, **57**(1993), 470.
- 8) S.Hirosawa : IEEE Trans. Mag., MAG-**25**(1989), 3437.