

ネオジム系焼結磁石の Dy 拡散プロセスにおける勾配磁場の影響 Effect of field gradient in Dy-diffusion process in sintered Nd-Fe-B magnets

秋屋 貴博¹, 加藤 宏朗^{1,2}, 高橋 弘紀³

¹ 東北大・NICHe, ² 山形大・工, ³ 東北大・金研

T. Akiya¹, H. Kato^{1,2}, K. Takahashi³

¹ New Industry Creation Hatchery Center, Tohoku University

² Graduate School of Science and Engineering, Yamagata University

³ Institute for Materials Research, Tohoku University

1. はじめに

現在世界最強の希土類系永久磁性材料であるネオジム (Nd) 系焼結磁石は、各種モーターなどで用いられている。その全世界における年間生産量は、2000年に年1万トンに達し、数年内に年10万トンに達するものと予測されている。Nd系磁石の出現と応用によって小型の電子機器や高出力モーターが開発され、非常に豊かかつ便利な社会が実現されてきたが、一方で電気自動車や風力発電機といった高負荷の用途においては、200°C近くの耐熱温度が要求されるという課題も抱えている。Nd系磁石の耐熱温度向上のためには、その保磁力を上昇させることが重要であり、工業的には磁石重量の10%ものNdをジスプロシウム (Dy) で置換するという手法がとられている。しかしDyを用いることで、保磁力の上昇とは引き換えに残留磁化が低下するため、磁石の強力さの指針である最大エネルギー積 ($(BH)_{\max}$ 値) の減少を引き起こす。さらに、Dyは産地が限られる上に天然存在比が小さいという、典型的な稀少金属元素であり、その使用量の低減や代替が強く求められている。

ここ数年間、Nd系磁石の保磁力と磁石内部の微細構造の関係が詳細に調査され、それらの間に強い相関があることが明らかにされてきた。まずNd系焼結磁石は、数 μm 径の粒子状のNd₂Fe₁₄B主相と、Nd-rich粒界相で形作られている。このNd-rich粒界相が主相間の二粒子粒界部に入り込み、主相粒子表面に万遍なく広がるのが保磁力向上のための必要条件であることが明らかにされた。そのNd-rich相の役割としては、主相表面の欠陥の修復や、主相粒子間の磁氣的結合を変化させることなどが考えられている [1]。

これまでに本研究では、Nd-rich粒界相の強磁場環境を用いた構造制御を目的としてNd系焼結磁石の強磁場中熱処理を行ってきた [2]。その結果、熱処理時の強磁場環境が保磁力に及ぼすいくつかの興味深い現象を確認してきた。特に、磁石試料の配向方向に対して熱処理時に印加した磁場の方位を変えた場合違いが現れたことから、磁場配向が関係する現象も示唆してきたが [3]、現在までに従来法を大きく上回る高い保磁力を得るまでには至っていない。その原因はいくつか考えられるが、単なる強磁場中熱処理では、Nd系焼結磁石の高保磁力化を達成することは難しいと思われる。

一方で、Nd系焼結磁石の保磁力を上昇させるために、粒界拡散プロセスという非常に有効な方法がある [4]。このプロセスでは、焼結磁石表面にDyを含む合金などを塗布し、熱処理を行うことで磁石内部にDyを拡散させる。一般に金属中への拡散には非常に長時間を要するが、Nd系焼結磁石の場合にはNd-Fe-B系の三元共晶の最低温度が約670°Cであり、粒界に出現した液相を介して高速な拡散が起る。また、粒界部から主相粒子の表面にDyが拡散することで主相表面の結晶磁気異方性が上昇し、保磁力の上昇が起る。この粒界拡散法では稀少なDyを用いるが、粒界および主相表面のみに効果的にDyを用いる方法であるため、その使用量は従来法に比べて少なく済み、問題となっていたDy置換による残留磁化の低下も極力抑えることができる。しかし、約5mm以上の厚さを持つ磁石の場合では、内部までDyを拡散させるために高温で長時間の熱処理が必要であるといった課題がある。

ここで、強磁場プロセスはバルク材料全体に影響を及ぼす可能性がある。特に、均一磁場中で起る磁

場配向だけではなく、勾配磁場による物質の輸送現象も興味深い。そこで、今年度は Dy 拡散プロセスにおける勾配磁場の影響について検討した。

2. 実験方法

実験には、インターメタリックス社で作製された $7 \times 7 \times 4 \text{ mm}^3$ の直方体状の Nd 系焼結磁石（容易軸は 4 mm の辺に平行）試料を用いた。Dy を含む合金のペーストは $7 \times 7 \text{ mm}^2$ の面の片側だけに塗布した (Fig. 1 参照)。今回は 3 種類の磁石試料 A, B および C を用意し、 700°C で 10 時間強磁場中熱処理を行った。Fig. 2 に示すように、試料 A は Dy 拡散源を磁場中心から遠い側に置いて強磁場中熱処理を行った。試料 B は磁場中心で行い、磁気力が発生しない条件で行った。一方、試料 C は、試料 A と逆に、Dy 拡散源を磁場中心側に向けて設置して強磁場中熱処理を行った。

強磁場中熱処理時の磁場強度は、いずれも磁場中心の位置で 10 T を発生する条件とした。試料 A および C は磁場中心から 105 mm 離れた位置に固定したので、その位置に置ける磁場強度はおおよそ 7 T、磁気力場の大きさは約 $400 \text{ T}^2/\text{m}$ である。熱処理は、一旦 10^{-4} Pa までターボ分子ポンプを用いて真空引きを行った後、熱伝導性を高める目的で、ヘリウムガスを 10^3 Pa 程度まで導入した雰囲気で行った。

磁気測定には、強磁場センター設置の 10T-CSM と組み合わせた VSM システムおよび、東北大学未来科学技術共同研究センター設置のパルス BH トレーサーを用いて行った。

3. 実験結果

試料の強磁場中熱処理前後の保磁力の増加量は、試料 A : 1.17 kOe, 試料 B : 0.97 kOe, 試料 C : 0.74 kOe であった。

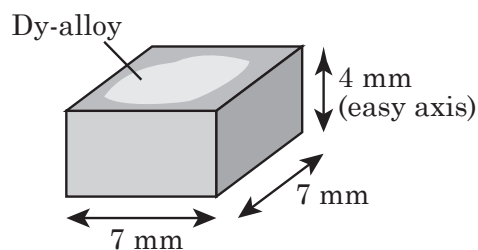


Fig. 1 Sample dimensions and the schematic picture before the Dy diffusion.

それらの試料について、保磁力が最大値を示す 500°C で低温熱処理を行った結果、いずれの試料でも約 2 kOe の保磁力上昇が観測され、強磁場中熱処理直後に現れた保磁力上昇量の差が、零磁場における低温熱処理の後まで保存されていることを確認した。

4. 考察

今回の実験では、最大 0.4 kOe 程度の差ではあるが、保磁力の増加量は試料 A が最も大きく、次いで試料 B, 試料 C の順になることがわかった。

この実験結果の解釈についてまず考えられることは、 Dy^{3+} イオンの常磁性磁化率が、 Nd^{3+} イオンよりも 10 倍大きい値を持っていると見積もられることである。詳細は文献 2 で論じられているため割愛するが、Nd 原子に比べて粒界に拡散した Dy 原子が、相対的に大きな磁場中心方向への磁気力を受けると推測できる。すなわち、試料 A と試料 C の実験結果を比較すると、磁気力の影響を拡散した Dy が受け、試料 A では試料内部まで深く拡散したが、逆に試料 C では試料内部への拡散が阻害されたことが考えられる。なお、18T-CSM を用いて行われた、磁場中心側への Dy の拡散が示唆される実験結果も文献 2 で示されているため参照頂きたい。また、試料 B では試料 A と試料 C の結果のほぼ中間値を示

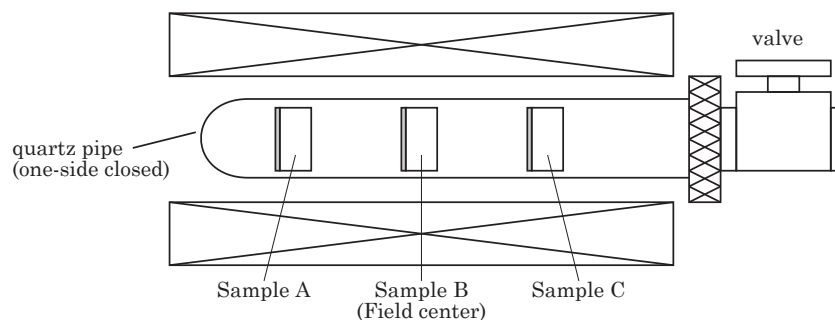


Fig. 2 Schematic picture of sample positions during the diffusion process. Shaded region in the samples denote the Dy source before the diffusion.

している。これは、磁場中心では磁気力が働かないために、Dyは外部から一切の力を受けない。したがって、通常の拡散プロセスと同様の現象が起っていたと考えられる。すなわち、Dyが700°Cの高温でもNdに比べて大きな磁化率を持ち、磁気力を受けたとして実験結果を解釈することが可能である。

また、700°Cでも焼結磁石の粒界部には、充分な量のNd-rich液相が存在している。この液相の主成分はNd, Cu, Feなどであり、導電性を有することが予想される。すなわち、時間的に静的な強磁場環境下に置かれたNd-rich液相には、対流抑制効果が働くものと考えられる。その場合には、時間変動場を与えることでNd-rich液相の攪拌を促し、Dyの粒界拡散を促進することも可能であると推測できる。

以上のことから、強磁場環境を応用したプロセスは、バルク材料の内部構造および特性の変化・改善に有効であり、材料の作製プロセスが抱える問題に対して有効な解を見いだす方策として極めて有望であると考えられる。

5. まとめ

Nd系焼結磁石のDy拡散処理時における磁気力

場の影響について系統的な実験を行った。その結果、DyがNdに対して相対的に大きな磁気力を受けたとすることで解釈できる実験結果が得られた。今回は一定の大きさの磁場環境下のみで実験を行ったが、時間変動場中で熱処理を行うことで、更に粒界拡散を促進することができると推測される。

謝辞

本実験に用いた焼結磁石試料は、インターメタリックス株式会社から提供されたものである。

参考文献

- [1] H. Sephri-Amin, T. Ohkubo, T. Shima, and K. Hono, *Acta. Mater.* **60**, 819 (2012).
- [2] H. Kato, T. Akiya, and K. takahashi, *J. Jpn. Inst. Metals*, **76**, 72 (2012).
- [3] T. Akiya, F. Sato, Y. Une, M. Sagawa, K. Takahashi, and H. Kato, *J. Jpn. Inst. Metals*, **75**, 193 (2011).
- [4] H. Nakamura, K. Hirota, M. Shima, T. Minowa, and M. Honshima, *IEEE Trans. Magn.* **41**, 3844 (2005).