

# 強磁場プロセスによる高保磁力希土類永久磁石材料の開発

## Development of high-coercivity rare-earth permanent magnets by high-magnetic-field process

東北大・NICHe

山形大・工 / 東北大・NICHe

東北大・金研

秋屋 貴博

加藤 宏朗

高橋 弘紀

T. Akiya<sup>A</sup>, H. Kato<sup>A,B</sup>, K. Takahashi<sup>C</sup>

<sup>A</sup> New Industry Creation Hatchery Center, Tohoku University

<sup>B</sup> Department of Applied Mathematics and Physics, Graduate School of Science and Engineering, Yamagata University

<sup>C</sup> Institute for Materials Research, Tohoku University

### 1. 緒言

Nd系焼結磁石は、現在世界最強のハード磁性材料であり、スピーカーなどの小型電子機器から、電気自動車用モーターや発電機といった大型機械まで、幅広い用途で使われている。しかし、主相であるNd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>BのCurie温度が約310°Cであることから、高温特性保持のために磁石の高保磁力化が応用上の課題となっている。

一般的なNd系焼結磁石は5 μm程度の粒径を有するNd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B主相粒子と、Nd-rich粒界相から成っている。その保磁力は、主相表面におけるNd-rich粒界相の存在形態や、結晶構造などに強く影響を受けることがわかってきた。そのような高保磁力の鍵を握るNd-rich相を制御するために、現在工業的に作製されているNd系磁石では、添加元素を用いることや熱処理プロセスの最適化といった冶金学的手法が用いられている。

一方、強磁場環境を応用した材料電磁プロセスングの方法を用いることで、粒界の構造を非晶質化することや、Lorentz力の発生により駆動力を発生させることが可能であり、Nd系磁石のような粒界の微細構造が特性に強く影響を及ぼす場合には、その効果が強く起るものと期待される [1]。

本研究は、Nd系焼結磁石の微細構造に変化をもたらし、得られた知見から高保磁力を得るための新しい作製プロセスを確立することを目的として強磁場プロセスに着目している。これまでに、Nd系焼結磁石の強磁場中熱処理実験を行い、試料内部で液相が出現し始める温度近傍で、比較的大きな保磁力が上昇することを観測している [2]。

これまでの実験は、全て磁石試料の容易軸に平行方向に均一静磁場を印加した状態で行ってきた

ため、主に磁石内部で磁場配向が起ったと考えてきた。一方、Nd-Cuの液相中から析出したNd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>Bが、500°Cを超える高温でもその常磁性磁化率の異方性によって磁場配向することがCourtoisらによって報告されている [3]。また、一般的なNd-Fe-B系焼結磁石では、700°C以上でNd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B相それに接するNd-rich相が共晶反応を起こし、溶融状態となる [4]。すなわち、一旦700°C以上まで加熱することで、Nd-Fe-B系焼結磁石の内部にはNd-Fe-B三元系の液相を生じ、その後の冷却過程でNd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B相が再び析出する。

そこで本年度は、Nd系焼結磁石試料の容易軸に対して平行および垂直に強磁場を印加しながら強磁場中熱処理実験を行い、析出するNd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B粒子の磁場配向効果について調査した。

### 2. 実験方法

実験に用いたNd-Fe-B系焼結磁石は、焼結前の粉碎の工程で主相の平均粒径を1.4 μmまで微細化し、試験的に作製されたものである。試料の組成は、DyおよびCoを含まない、Nd<sub>32.48</sub>Fe<sub>bal</sub>B<sub>0.98</sub>Cu<sub>0.11</sub>Al<sub>0.24</sub> (mass.%)である。熱処理にはバルブ付きの片封石英管を用いた。試料空間は一旦1×10<sup>-4</sup> 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10<sup>3</sup> Pa程度まで純Heガスを導入した。

強磁場熱処理は、ボア径100 mmφを有する10 T-CSMに電気炉を組み合わせた装置で行った。試料には、8.0 MA/m (10 T)の強磁場環境下で、800°C、120分間の熱処理を施した。その時の磁場方位は、試料の配向方向に対して平行および垂直とした。熱処理後の磁場は、約400°Cまで冷却する間も印加し

続けた。

磁気測定は、東英工業株式会社製パルス励磁型磁気特性評価装置を用いて行った。測定時、印加したパルス磁場の最大値は 6.4 MA/m (8 T) である。

### 3. 結果と考察

図は、強磁場熱処理後の試料の減磁曲線である。図には、熱処理時に試料の容易軸に対して平行および垂直に磁場を印加した場合と、参照試料として磁場を用いなかった場合の結果もあわせて示した。

試料の容易軸に平行に強磁場を印加しながら熱処理を行った場合では、若干の保磁力の上昇が認められたが、参照試料と大きな違いは見られなかった。一方、試料の容易軸に対して垂直方向に磁場を印加した場合には、減磁曲線の角形性が著しく悪化する現象が見られた。これは焼結磁石内部に保磁力が低い領域が形成されたことを示唆する。

減磁曲線の角形性が悪化した現象は次のように理解できる。まず 800°C では、Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 主相表面と Nd-rich 粒界相が共晶反応で液相化している。そのとき、数 μm の粒径を有する主相表面の数 nm の領域が熔融状態になっていると推測される。次に、冷却の段階で Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B のナノ粒子が主相表面に析出するが、ゼロ磁場環境ではナノ粒子の結晶軸はランダムか、主相表面の結晶構造を反映してエピタキシャルに成長すると考えられる。一方、試料の配向方向に垂直に強磁場を印加した場合、析出するナノ粒子の容易軸 (c 軸) の方位は、試料の配向方向に対して垂直に向く傾向が強くなると予想される。理論計算によると、Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B の表面は非常に乱れやすい傾向を有し、それは著しく保磁力を低下させる原因の一つと考えられている [5]。そのことから、結晶方位の異なるナノ粒子の存在により、数 μm 径の主相表面の構造が乱され、その結果保磁力の低下を招いたものと推測できる。一方、試料の容易軸に平行に磁場を印加した場合には、析出するナノ粒子の c 軸は平行に揃う傾向が現れると思われる。この場合、析出するナノ粒子は数 μm 径の Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B に悪影響を及ぼさないか、または若干保磁力を上昇させるような寄与をされると思われる。つまり、今回の実験により得られた結果は、磁場配向の効果が主因であるとして理解可能である。

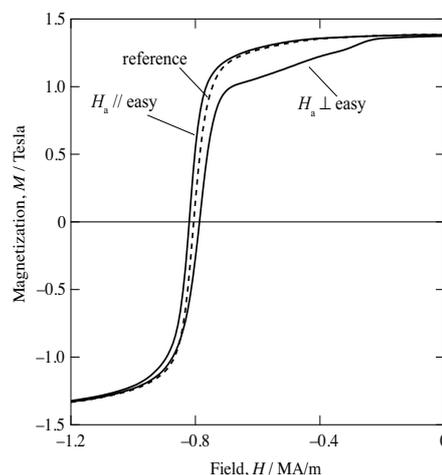


Fig. Demagnetization curves for high-field-processed (solid lines) Nd-Fe-B magnets. Annealing temperature and applied field are 800°C and 8 MA/m, respectively. Applied field direction  $H_a$  during annealing are indicated in the figure. Dashed curve is zero-field-processed one.

### 4. まとめと今後の課題

Nd 系焼結磁石の強磁場中熱処理時に印加した磁場方位と磁気特性について研究を行った。その結果、三元共晶温度以上の熱処理温度から冷却する際に試料の容易軸に垂直に磁場を印加した場合、減磁曲線に著しい劣化が観測された。この結果について、析出した Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B のナノ粒子が磁場配向したとして考察した。

さらに、今回得られた試料を用いて、より詳細な研究を行った結果は文献 6 で報告した。今後は、SEM 観察などを通して、微細構造観察の観点から Nd 系磁石の強磁場効果を明らかにしたい。

### 参考文献

- [1] 浅井滋生：入門材料電磁プロセッシング，内田老鶴圃 (2000)。
- [2] T. Akiya, H. Kato, M. Sagawa, K. Koyama, and T. Miyazaki: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **30**, 447 (2006)。
- [3] P. Courtois, R. Perrier, and R. Tormier: *J. Magn. Magn. Mater.*, **153**, 224 (1996)。
- [4] Y. Matsuura, S. Hirose, H. Yamamoto, S. Fujimura, M. Sagawa, and K. Osamura: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **24**, L635 (1985)。
- [5] G. Hrkac, T. G. Woodcock, C. Freeman, A. Goncharov, J. Dean, T. Schrefl, and O. Gutfleisch, *Appl. Phys. Lett.* **97**, 232511 (2010)。
- [6] T. Akiya, F. Sato, Y. Une, M. Sagawa, K. Takahashi, and H. Kato, *J. Jpn. Inst. Metals*, **75**, No. 4, 193 (2011)。