

半溶融鍛造プロセスを用いた 異方性セミソリッド・ネオジム磁石の創製

産業技術総合研究所 極限機能材料研究部門
上級主任研究員 田村 卓也

(2021 年度 一般研究開発助成 AF-2021004-B2)

キーワード：半溶融鍛造，セミソリッドプロセス，異方性ネオジム磁石

1. 研究の目的と背景

近年、ハイブリッド車・電気自動車の普及および販売台数激増の予測から、駆動用モーターなどに用いられるネオジム磁石への需要が増加している。最強磁石である異方性焼結ネオジム磁石は磁石粉末を磁場中にて c 軸配向させるため、①溶解・急冷凝固、②粉碎・磁場中粉末 c 軸配向・焼結という鑄造技術と粉末冶金技術を高度に組み合わせ、非常に多数の工程を踏んでおり、さらに焼結プロセスの為、角型などシンプルな形状しか作製できていない。一方、磁力は劣るが複雑形状が可能な磁石粉とプラスチックを混練して射出成形した等方性(c 軸配向していない)ネオジムボンド磁石も用いられているが、こちらも等方性磁石粉末を作製するために溶解・超急冷凝固、粉碎・熱処理が必要であり、こちらも非常に多数の工程を踏まなければ磁石化できない。

しかし、実施者らは「NdCu 共晶+50wt% Nd₂Fe₁₄B」合金において溶解時に(超)急冷凝固も必要とせず、金型鑄造した母合金にセミソリッドスラリー作製法の一つである電磁振動プロセスを行うだけで、液相となった低熔点 NdCu 非磁性相中に固相の Nd₂Fe₁₄B 磁石相が微細分散・さらに c 軸配向化し、簡単に異方性鑄造ネオジム磁石が作製できる

事を Nature 誌のグループ誌である Scientific Reports にて 2019 年発表を行った(図 1)¹⁾。電磁振動プロセスでは、低熔点金属相のみが溶解する温度(約 600~700℃)で 2 段階のステップを踏んでいる。STEP1-1 では低周波振動により固相である磁石相を壁面に叩きつけることにより破碎し、2 段階目の STEP1-2 では磁石相の軸方向に対する磁化率の違い、及び半溶融状態においては Nd₂Fe₁₄B 板状結晶の方が NdCu 共晶液相よりも電気抵抗が高いため Nd₂Fe₁₄B 板状結晶の周りに共晶液相の振動流ができ、配向化し異方性鑄造磁石となる。

セミソリッドプロセス(半溶融・半凝固加工)は固相と液相が混じりあった状態で、固相を微細分散化させることで試料全体が粘土のようにスラリー化し、鍛造・圧延や射出成形により成形できる技術であり、構造材料の Al 合金や Mg 合金にて産業化されている。しかし、電磁振動プロセスによる異方性鑄造ネオジム磁石の作製においては、実際の成形までは出来ておらず、スラリー化した後に、凝固・磁石化しており、成形加工による異方性鑄造ネオジム磁石作製プロセスの研究開発が必須となっている。

そこで、本研究では、酸化・反応しやすい異方性鑄造ネオジム磁石のセミソリッドスラリーの成形に最適と考えられる半溶融鍛造工程のみでスラリー化・成形できる技術開発を行い、市販のネオジムボンド磁石の特性を超える異方性セミソリッド・ネオジム磁石の創製を行う事を目的としている。このプロセスが実用化されると、安価な金型鑄造で作製されたビレットを半溶融鍛造するだけで市販のネオジムボンド磁石の特性を超える磁石が 1 ステップで作製できることになり、素形材の更なる可能性を見出すことが出来ると考えている。

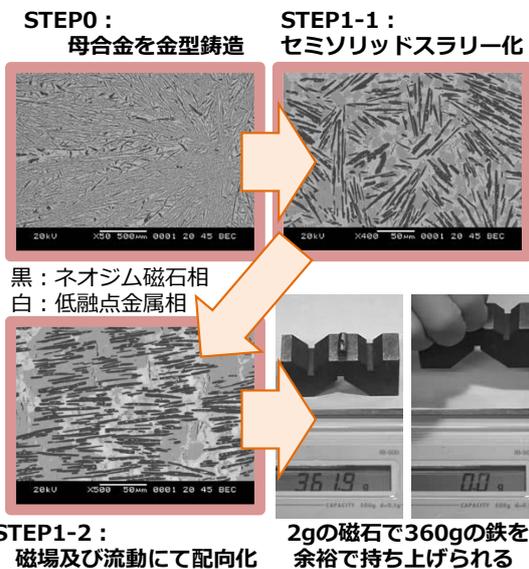


図1 電磁振動プロセスによる異方性鑄造ネオジム磁石の作製

2. 実験方法

2.1 母合金作製方法

原料合金は、純度 99.99%の純鉄及び純度 99.9%の Nd 金属、純度 99.99%の Cu、純度 99.5%の B を用いて「Nd₇Cu₃+55, 60, 65, 70wt% Nd₂Fe₁₄B」の 4 組成をそれぞれ 150g 秤量後、秤量した原料を図 2 に示す高周波溶解にて He 雰囲気中で溶解(溶湯温度：約 1600℃)し、BN 離型剤を厚く塗布した炭素鋼鑄型(型温：約 74℃)に鑄込むことにより φ6 mm、長さ約 50mm 母合金丸棒を作製した。



図2 高周波溶解装置内部

2・2 半溶融鍛造方法

ネオジウム元素は非常に活性であり、これまで不活性ガス中でなければ加熱できないと考えられていた。しかし、例えば非常に活性な金属であるアルミニウム合金に関しては非常に安定な酸化物を表面に形成するため、大気中で溶解しても発火等も起こさず非常に安定に溶解できる。逆にアルミニウムに匹敵する活性な金属であるマグネシウム合金は大気中で溶解すると発火するため、保護ガスを使用するのが必須となっている。この様に非常に活性な元素であっても、表面に形成される酸化物の状態により大気中で加熱・溶解できる元素と出来ない元素がある。大気中で加熱・溶解できない場合、真空置換できるチャンバー等を用いなければならないため、装置が非常に大掛かりになる。逆に大気中で加熱・溶解できる場合はアルミ半溶融鍛造等にて用いられている装置をそのまま流用できるため、産業化には非常に有利である。そこで、予備実験として「Nd₂Cu₃+55wt% Nd₂Fe₁₄B」合金を半溶融状態になるまで大気中で加熱し、大気中で発火するか否かを調査した。その結果、約700℃付近まで加熱しても発火する事は無かった。また、冷却後の試料表面にはしわが寄っており、安定な酸化膜が表面に形成されることで、発火しないことが判明した。また、半溶融状態の試料をドライバー等で切断しても火花は飛び散るものの、試料が発火する事は無かった。この事より、異方性セミアソリッド・ネオジウム磁石用母合金は大気中で半溶融鍛造できることが判明した。そこで、図3のような半溶融鍛造装置を作製した。ベースはハンドプレス的一种であるアーバープレスを用いて、金型設置部分はmax. 1000℃まで加熱できる管状炉で加熱できるようにした。また、上部に変位計、軸にはロードセルを設置し、変位と加圧力を測定できるようにした。加圧力は測定の結果、max 約300kgまで加圧できることが判明した。

次に、半溶融鍛造に用いる金型の設計を行った。加圧力

はmax 約300kgと低いことに加えて、産業用装置とは異なり、試料の入った金型ごと試料が半溶融状態になるまで加熱する仕組みの装置であることから、SUS316L合金を用いることにした。また、試料形状は磁石相ではない液相を絞り出す効果が期待できるカップ形状とする事とした。それを踏まえ、図4に示すような金型と押し出しピンを設計した。最初に金型に設置するφ6の母合金高さは5mm厚にて



図3 半溶融鍛造装置外観写真

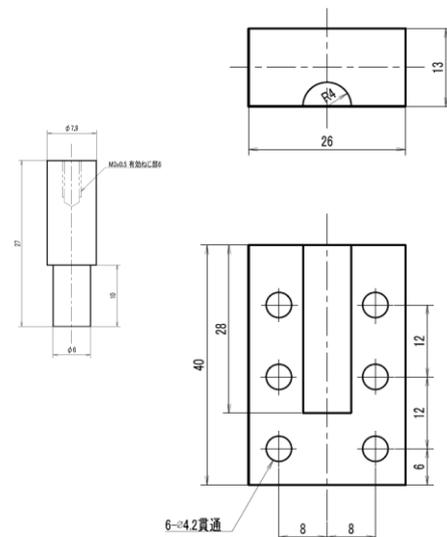


図4 金型及び押し出しピン図面

設計し、ピンが完全に型内に入り込むと、母合金は1mm厚までプレスされ、余ったセミソリッド試料はカップの縁に押し出されるが、カップの縁部には圧力がかからない設計となっている。

半溶融鍛造は、 $\phi 6$ mm、長さ約50mmの母合金丸棒を長さ5mmに切断、図4に示した金型内に入れ、その上から押し出しピンを置いた状態で半溶融鍛造装置の管状炉内に設置し、620°Cまで加熱、620°Cで15min保持した後にアーバークプレスによりプレスを行った。室温から620°Cまでは約25minで加熱することが出来た。また、アーバークプレスにてプレスできなかった場合は、金型を620°Cで15min保持した後に管状炉から取り出し、図5に示す油圧プレスにセットし、油圧プレスによりプレスを行った。この際のプレス圧は約1.5tであった。



図5 油圧プレス装置外観写真

2・3 磁気特性測定方法

磁気特性は、カップ形状の底部の中心から4mm×4mmの試料を切り出し、2Tの常電導マグネットを用いたVSM装置にて室温にて磁気特性を測定した。

3. 実験結果

3・1 アーバークプレスを用いた半溶融鍛造

図6にアーバークプレスを用いて半溶融鍛造を行った場合の試料断面組織写真を示す。見てわかるように、「NdCu共晶+55wt%Nd₂Fe₁₄B」合金の場合は5mm厚の試料を約1mm厚まで半溶融鍛造することが出来たが、「NdCu共晶+60wt%Nd₂Fe₁₄B」合金、「NdCu共晶+65wt%Nd₂Fe₁₄B」合金の場合は完全に押し出しピンが型内に入り込むまでプレスを行う事が出来なかった。そのため、「NdCu共晶+70wt%Nd₂Fe₁₄B」合金のアーバークプレスを用いた半溶融鍛造実験は行わなかった。これら半溶融鍛造を行った試料の断面中心部のライン、図6(b)の黒線で示したラインに沿って約1mmおきにSEMの反射電子像にて拡大写真を撮影し、画像処理によって非磁性相のNdCu相と磁石相のNd₂Fe₁₄B

相の面積率を測定した。Nd₂Fe₁₄B相の面積率が大きくなると、磁気特性において飽和磁化が大きくなるため、残留磁化が増大する可能性が大きくなり、結果強い磁石となる。その結果を図7に示す。また、非磁性相のNdCu相の面積率は100%からNd₂Fe₁₄B相の面積率を引いた値になる。この結果より、屈曲部を通過しないカップ形状の底部は全ての組成において平均値よりも大きくなっており、さらに特筆すべき点は、底部全体において磁石相のNd₂Fe₁₄B相の面積率が均一に上昇している点である。特に55, 60wt%Nd₂Fe₁₄B合金においては上昇率が高くなっていった。また、屈曲部以降のNd₂Fe₁₄B相の面積率はいずれの試料においても大幅に低下していくことが判明した。これは、アーバークプレスを用いた半溶融鍛造においては、屈曲部を通過する相は半溶融鍛造時に液相である非磁性相のNdCu相が主であることを示している。

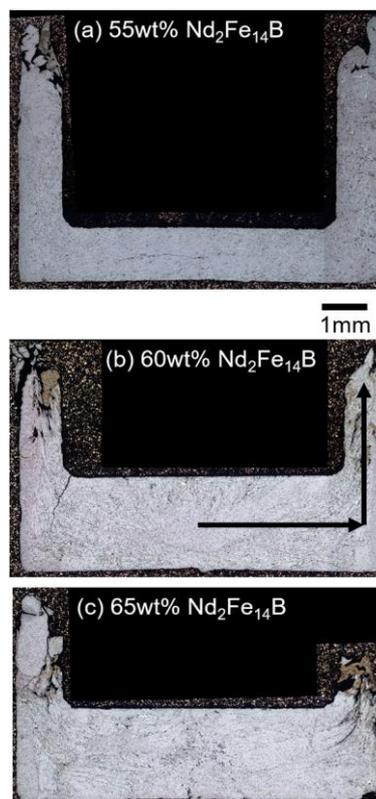


図6 アーバークプレスを用いて半溶融鍛造を行った場合の試料断面組織写真

3・2 油圧プレスを用いた半溶融鍛造

アーバークプレスを用いた半溶融鍛造では、60wt%Nd₂Fe₁₄B合金以上のプレスが完全には出来なかったため、油圧プレスを用いた半溶融鍛造も行った。その結果、「NdCu共晶+55, 60, 65, 70wt% Nd₂Fe₁₄B」合金、全てにおいて押し出しピンが型内に完全に入り込む所定の位置までプレスを行う事が出来た。そこで、アーバークプレスを用いた半溶融鍛造と同様に試料断面組織を観察し、図6(b)の黒線で示したラインと同様に半溶融鍛造を行った試料の断面中心部のラインに沿って約1mmおきにSEMの反射電子像にて

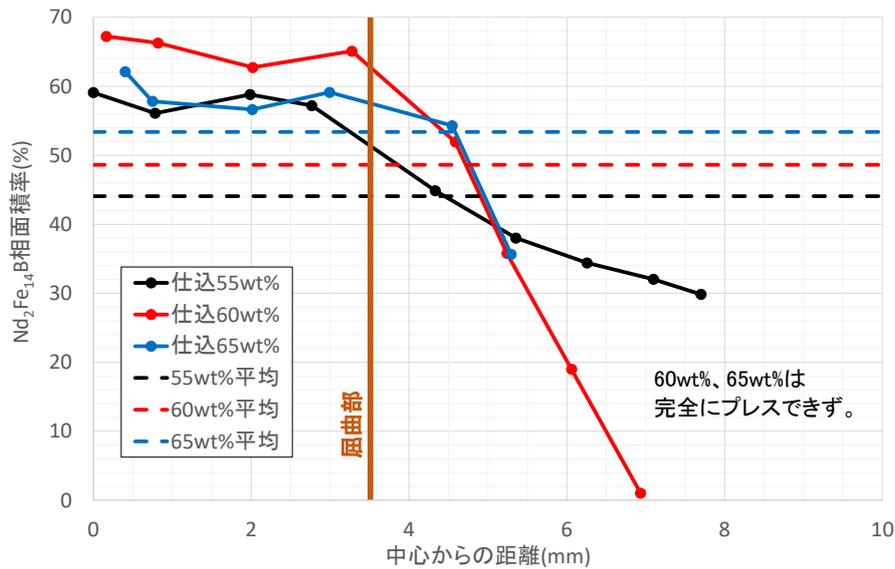


図7 アーバープレスを用いて半溶融鍛造を行った試料の断面中心部のライン（図6 (b)の黒線で示したライン）におけるNd₂Fe₁₄B相面積率の変化

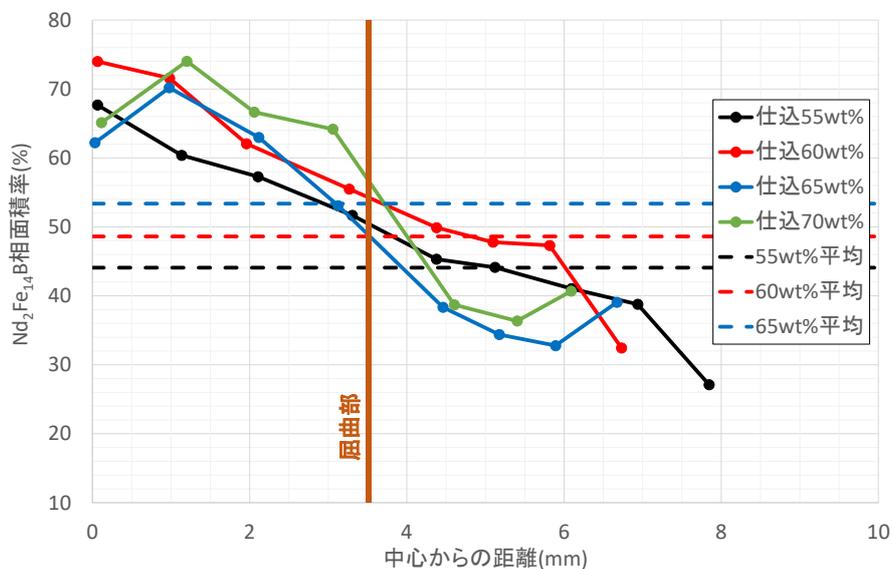


図8 油圧プレスを用いて半溶融鍛造を行った試料の断面中心部のライン（図6 (b)の黒線で示したラインと同等）におけるNd₂Fe₁₄B相面積率の変化

拡大写真を撮影し、画像処理によって非磁性相のNdCu相と磁石相のNd₂Fe₁₄B相の面積率を測定した。その結果を図8に示す。非磁性相のNdCu相の面積率は100%からNd₂Fe₁₄B相の面積率を引いた値になる。アーバープレスを用いた半溶融鍛造の結果と大きく異なる点はアーバープレスを用いた場合、カップ形状の底部のNd₂Fe₁₄B相面積率は一定であり、屈曲部を過ぎるとNd₂Fe₁₄B相面積率が大きく低下したが、油圧プレスの場合は屈曲部関係なく底部・縁部共に一定の割合で面積率が低下しやすいことが判明した。底部を磁石として用いる場合、油圧プレスでは中心部と端部の磁石相量が異なるため、磁束密度のムラが出来てしまうた

め、対策が必要と考えられる。しかしながら、油圧プレスの場合、Nd₂Fe₁₄B相面積率の上昇率が非常に高く、全ての試料において70%付近まで上昇していることから、強力磁石としての可能性を秘めていることが判明した。

3.3 磁気特性

図9にアーバープレスを用いた半溶融鍛造、油圧プレスを用いた半溶融鍛造、両方とも鍛造が可能であった「NdCu共晶+55wt%Nd₂Fe₁₄B」合金の室温におけるVSMにて測定した磁気特性を示す。縦軸は試料の磁化、横軸は保磁力を表しており、磁石として使用する場合、第2象限におけるヒステリシス部分にて磁石の特性が決定される。保磁力（第

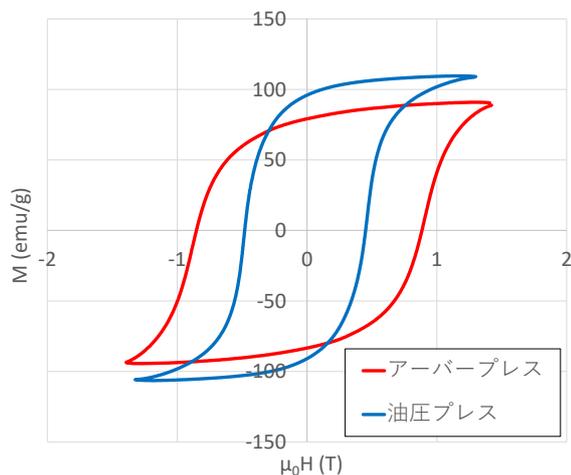


図9 「NdCu 共晶+55wt%Nd₂Fe₁₄B」合金の室温における磁気特性

2象限においてヒステリシスとx軸が交差する値)は最低限、残留磁化(第2象限においてヒステリシスとy軸が交差する値)の半分は必要であり、同じ程度の値以上であることが望ましい。今回の磁化はemu/gで記載しているが、ネオジム磁石では試料の密度が一定と仮定した場合、大体100emu/gが1T程度となる。そのことを踏まえ、アーバープレスと油圧プレスの場合の磁気曲線を見てみると、アーバープレスを用いて半溶融鍛造を行った場合は残留磁化と保磁力のバランスが良いが、残留磁化が油圧プレスよりも低くなっている。しかし、油圧プレスの場合、残留磁化は高いが保磁力がアーバープレスを用いた場合と比較して大きく低下していることがわかる。残留磁化は、配向化している場合は図7、8にて示したNd₂Fe₁₄B磁石相の面積率と連動していることから、半溶融鍛造を行った試料の底部は配向化しており、底部中心のNd₂Fe₁₄B磁石相面積率の上昇率が高かった油圧プレスにおいて高い残留磁化を示す試料が作製できたものと考えられる。しかし、油圧プレスを用いた場合、アーバープレス試料並みの保磁力を出すことが出来なかった。保磁力はNd₂Fe₁₄B磁石相面積率とは関係なく、磁石相の粒径など材料組織等にて複雑に変化する。そこで、油圧プレスを用いた場合における母合金の磁石相率が磁気特性に及ぼす影響を図10に示す。「NdCu 共晶+70wt%Nd₂Fe₁₄B」において残留磁化が僅かに上昇、「NdCu 共晶+65wt%Nd₂Fe₁₄B」合金において保磁力が僅かに上昇したが、アーバープレスを用いて半溶融鍛造を行った場合の

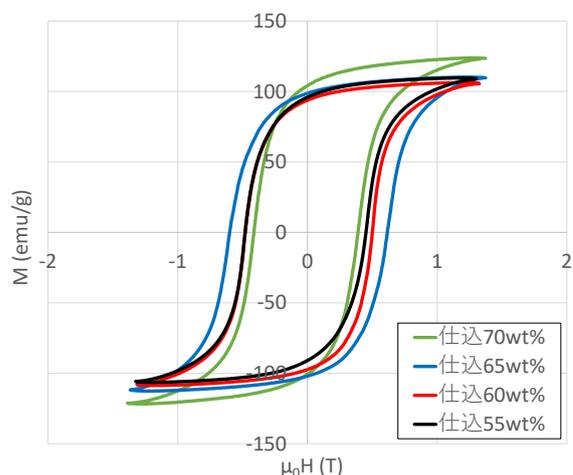


図10 油圧プレスを用いた場合における母合金の磁石相率が磁気特性に及ぼす影響

保磁力と比較すると全体的に保磁力が低く、母合金の磁石相率の影響はあまりなかった。

4. 結び

「NdCu 共晶+65wt%Nd₂Fe₁₄B」合金を用いて油圧プレスにて作製した磁石試料において、磁石の強さを表すBH(max)を計算すると113kJ/m³であった。市販の等方性ボンド磁石のBH(max)は~96kJ/m³であることから、半溶融鍛造を用いて、市販の等方性ネオジムボンド磁石の特性を超える磁石が1ステップで作製できることを実証できた。しかし、油圧プレスを用いた場合、アーバープレス試料並みの試料均一性、及び保磁力を出すことが出来なかったが、プレス圧・プレス速度を緻密に制御する事により、アーバープレス・油圧プレスの長所のみを抽出できる可能性があり、半溶融鍛造プロセスを用いた異方性セミソリッド・ネオジム磁石の基礎を築くことが出来た。

謝辞

本研究は、公益財団法人天田財団一般研究開発助成(AF-2021004-B2)の支援を受けて実施したものです。ここに深い感謝の意を表します。

参考文献

- 1) M. Li・T. Tamura:Scientific Reports, 9 (2019), 5733.
- 2) 山元洋：電気学会誌, 117 (1996), 161.