

Sm-Fe-N 系磁石用粉末の作製とボンド磁石への応用

Production of an Sm-Fe-N Magnet Powder and Its Application in a Bonded Magnet

石川 尚・川本 淳・大森賢次 住友金属鉱山(株) 中央研究所

T. Ishikawa, A. Kawamoto, and K. Ohmori, Central Research Laboratory, Sumitomo Metal Mining Co., Ltd.

Sm₂Fe₁₇N₃ alloy powder is expected to be useful for developing a high-performance bonded magnet. From a commercial viewpoint, a reduction and diffusion process is an attractive method of making Sm₂Fe₁₇ mother alloy, because of its excellent cost performance. This paper introduces the production of Sm₂Fe₁₇N₃ magnet powder by a reduction and diffusion method, and its use in anisotropic bonded magnets, namely, injection-molded magnets, flexible extrusion-molded magnets and Sm-Fe-N-ferrite hybrid magnets.

Key words: Sm₂Fe₁₇N₃, magnet powder, reduction and diffusion, bonded magnet, injection molding, extrusion molding, hybrid magnet

1. はじめに

永久磁石はモータやセンサなどの電気電子機器から身の回りの雑貨までさまざまな場面で使用されており、用途に応じた多くの種類が用いられている。材料と製造方法の観点で永久磁石を分類したものを Fig. 1 に示した。

ここで磁石粉末に樹脂を加え、圧縮成形や射出成形などの手法で成形した複合材料がボンド磁石（樹脂磁石やプラスチック磁石と呼ばれることもある）である。磁石粉末を非磁性の樹脂で薄めているため、例えば同じ粉末から製造される密度の高い焼結磁石に比べると磁力は小さいが、形状自由度が大きい、寸法精度を出しやすい、他の部品との一体成形が可能である、など使い勝手の良さから広く用いられている。

その中でも希土類磁石粉末を用いた希土類ボンド磁石は、ハードディスクドライブや CD-ROM ドライブなどのスピンドルモータを主とした、OA や AV 用途に必須の部品となっている。日本ボンド磁石工業協会の統計によれば、1999 年の希土類ボンド磁石出荷実績は、重量で 1,270 トン（前年比 7% 増）、金額で 228 億円（前年比 2% 増）である。このほとんどが、Magnequench International 社製等方性 Nd-Fe-B 系磁石粉末（MQ 粉）を使用した圧縮成形磁石であり、その最大エネルギー積は 90 kJ/m³ を超える。

さらに近年注目を集めている希土類ボンド磁石用材料として、Sm-Fe-N 系磁石粉末、HDDR (Hydrogenation-Disproportionation-Desorption-Recombination) 法に

Materials	Forming	Bonded					Casted	Others
		Compression	Injection	Extrusion	Calendered	Sintered		
Rare-earth	Nd-Fe-B	○	○	○		○		○
	Sm-Co 2-17	○	○			○		
	Sm-Co 1-5		○			○		
	Sm-Fe-N	○	○	○				
Ferrite		○	○	○	○			
AlNiCo/FeCrCo		○				○	○	

Fig. 1 Classification of permanent magnets.

よって製造される異方性の Nd-Fe-B 系磁石粉末、液体急冷法で製造される等方性ナノコンポジット磁石粉末があり、それらを用いた射出成形磁石や圧縮成形磁石などが上市されている。このうち Sm₂Fe₁₇N_x 化合物は、旭化成工業(株)の今井と入山¹⁾によって 1987 年に特許出願され、1990 年 Ireland Trinity College の Coey と Sun²⁾によって論文発表されたものである。この化合物は、高性能永久磁石材料の必要条件とされる飽和磁化・一軸磁気異方性・キュリー温度のいずれにおいても、Nd₂Fe₁₄B 化合物と同等以上の性能を有している。

筆者らのグループでは、還元拡散法 (reduction and diffusion method) をベースとして Sm₂Fe₁₇N_x 化合物を主相とする磁石粉末を製造し、それを異方性の射出成形磁石や押出成形磁石に展開してきた。ここでは、まずごく簡単に Sm-Fe-N 系磁石の概要に触れ、次に還元拡散法を用いた磁石粉末の製造方法とボンド磁石への応用について述べる。

2. Sm-Fe-N 系磁石の概要

Sm-Fe-N 系磁石粉末は、Sm-Fe 系母合金粉末を N₂ ガス、N₂ と H₂ の混合ガス、NH₃ と H₂ の混合ガスなどの雰囲気下で加熱窒化し、合金内部に窒素原子を導入することによって製造される。得られた化合物は 600°C 以上の加熱によって熱分解するため、実用化にあたって焼結による緻密化ができず、現状ではボンド磁石への応用が主体となっている。これまでに上市された Sm-Fe-N 系磁石としては、Th₂Zn₁₇ 型結晶構造をもつ Sm₂Fe₁₇N_x 系化合物を主

相とするものと、TbCu₇型結晶構造をもつSmFe₇N_x系化合物を主相とするものの2種類がある。

Sm₂Fe₁₇N_x系では、後で詳しく述べる還元拡散法を用いた異方性磁石材料以外に、飛世ら³⁾が報告した等方性磁石材料がある。これは、Sm-(Fe, Ti, B)系合金にHDDR法を適用し窒化することによって30 μm程度の磁石粉末を製造するものである。粉末は、結晶粒径0.1~0.5 μmの多結晶体であり、結晶方位がランダムであるため等方性磁石に用いられる。

SmFe₇N_x系化合物をベースとするものでは、福野ら⁴⁾がSm-Zr-Fe-Co-N系でα-FeとSmFe₇N_x系化合物とからなるナノコンポジット磁石粉末を液体急冷法で製造し圧縮成形磁石やシート磁石に応用している。また桜田ら⁵⁾も類似の合金系でSmFe₇N_x系化合物磁石粉末を検討している。

3. 還元拡散法を用いたSm-Fe-N系磁石粉末の作製

筆者らのグループでは、窒化に供するSm-Fe母合金粉末を還元拡散法で製造している。これを窒化した後、所定粒度まで微粉碎して磁石粉末を製造している。製造工程をFig. 2に示し、各工程について以下に述べる。

3.1 Sm-Fe母合金製造工程

還元拡散法は、希土類酸化物をカルシウムで還元し他の金属に拡散させることによって合金を得る方法で、SmCo₅

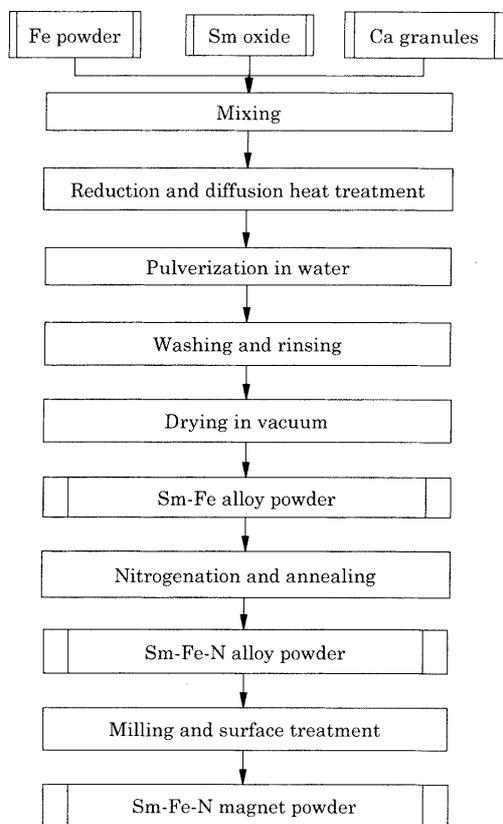
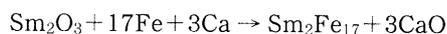


Fig. 2 Process of manufacturing Sm₂Fe₁₇N₃ magnet powder.

合金の製造方法として General Electric 社によって開発されたものである⁶⁾。現在までにSmCo₅合金以外にもNd-Fe-B合金やTb-Fe-Co合金の製造に実用化されている。なお還元拡散法に近い希土類コバルト合金などの製造方法に共還元法がある。これはTh. Goldschmidt社が開発した方法⁷⁾で、希土類とコバルトを酸化物として用い、カルシウム蒸気でこれらを同時に還元する点が異なる。

Sm-Fe母合金粉末の製造においては、原料の酸化サマリウム粉末と鉄粉末を粒状金属カルシウムと十分混合し、Arガスなどの不活性ガス雰囲気中1,100°Cで加熱する。このときSm₂O₃はCaによって還元されSmまたはSm-Ca融体を形成し、これらがFeに拡散してSm-Fe合金となる。Sm₂Fe₁₇合金製造では、



に従い反応が進むが、実際の製造ではロスを考慮して反応当量よりもやや過剰にSmやCaを投入する。また鉄粉末の一部を酸化鉄(Fe₂O₃)粉末として投入する場合もある。これはFe₂O₃をCa還元するとき生じる熱エネルギーを利

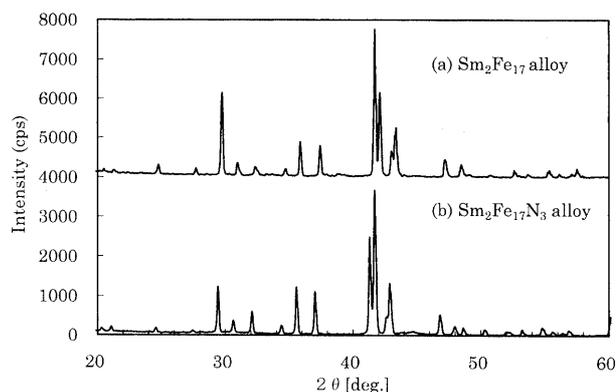


Fig. 3 XRD patterns of (a) Sm₂Fe₁₇ and (b) Sm₂Fe₁₇N₃ alloy powder (Cu-K_α).

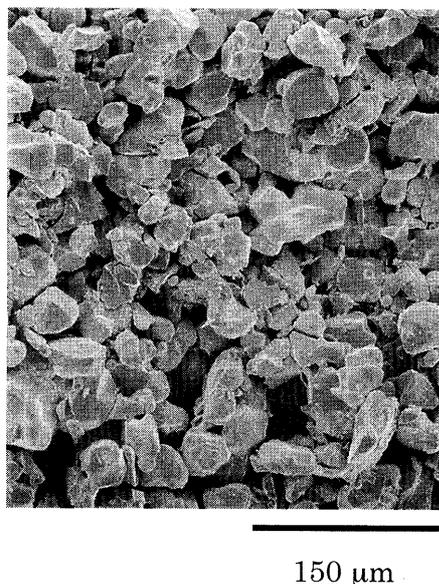


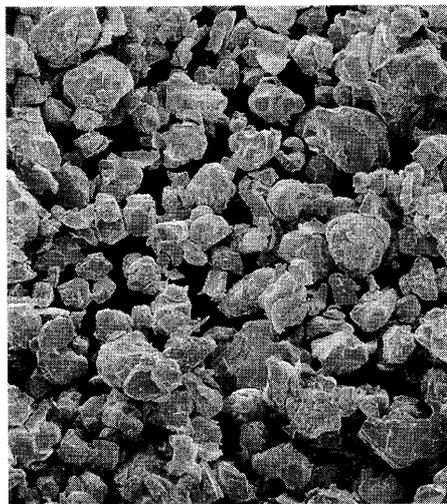
Fig. 4 Scanning electron microscopy photograph of Sm₂Fe₁₇ alloy powder.

用して反応の均一化を狙って行われる。このようにして得られた反応生成物は、 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ 相を主相とする Sm-Fe 合金粉末と CaO および未反応の Ca からなる多孔質の焼結体となっている。この焼結体を水中に投入すると、CaO や未反応の Ca は水と反応して $\text{Ca}(\text{OH})_2$ となりスラリ状に崩壊する。ここで Sm-Fe 合金粉末は $\text{Ca}(\text{OH})_2$ に比べて比重が大きいため沈降しやすく、デカンテーションと注水の繰り返しで $\text{Ca}(\text{OH})_2$ を分離除去できる。これを乾燥すれば、粉末状の $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ 合金が回収できる。得られた $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ 合金粉末の X 線回折パターンを Fig. 3(a) に、また粉末の外観 SEM 写真を Fig. 4 に示す。X 線では $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ 単一相となっており α -Fe 相は認められない。また外観は丸みを帯びており、インゴットを粗粉碎したものに比べて粒度のそろった粉末になっている。

還元拡散法で用いられる酸化サマリウム原料は、蒸留によって分離精製される金属サマリウムに比べて、はるかに安価である。また $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ 化合物の包晶温度以下で拡散させるとともに鉄粉末粒度の選択によって Sm の拡散距離をある程度制御できるので、残留 α -Fe 相のない単相合金を製造しやすく、溶解鋳造法に必要な均一化熱処理が不要である。さらに $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ 合金が直接粉末として得られるため窒化前の粗粉碎工程も不要である。これらのことから溶解鋳造法に比べてコスト的に有利である。

3.2 窒化工程

$\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ 相に窒素原子を導入する窒化工程では、均一な $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 相を得ることが重要になる。そのため、窒化雰囲気として NH_3 と H_2 の混合ガスを選択し、窒化熱処理後に Ar ガス下でアニールを行っている。アニールは粉末中の窒素濃度分布を均一化する目的で行っている。なお窒素原子の拡散距離を考慮すると、投入する $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ 母合金



150 μm

Fig. 5 Scanning electron microscopy photograph of $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ alloy powder.

粒度分布の狭い方が窒化時間を制御しやすい。粒度分布が広い場合、大きい粉末に合わせて窒化時間を設定すると細かい粉末で過窒化となり、逆に細かい粉末で設定すると大きい粉末の内部に未窒化部が残り、いずれの場合も磁気特性が低下するからである。このような観点で、Fig. 4 に見られるような粒度分布の狭い $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ 合金粉末は、均一窒化の点でも適している。

得られた粉末の SEM 写真を Fig. 5 に、X 線回折パターンを Fig. 3(b) に示す。粉末表面にはクラックが見られ、窒化前の粉末に比べて角張った形をもっている。粒径はおよそ $50 \mu\text{m}$ で窒化による体積膨張によって砕かれたものと考えられる。

3.3 微粉碎工程

保磁力を発現させるために、窒化工程で得られた粗粉末をジェットミルやボールミルなどで平均粒径 $2\sim 3 \mu\text{m}$ まで微粉碎する。ボンド磁石用粉末として総合的に高い磁気特性を得るためには、個々の粉末が同じ磁気特性をもちかつその特性が高いことが望まれる。その第一のポイントは微粉碎後の粒度分布である。保磁力に粒径依存性がある $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 化合物粉末では、粒径をそろえ粉末の保磁力分布を狭くすることによって、減磁曲線の角型性を高めることができる。第二のポイントは粉末同士の凝集を抑制す

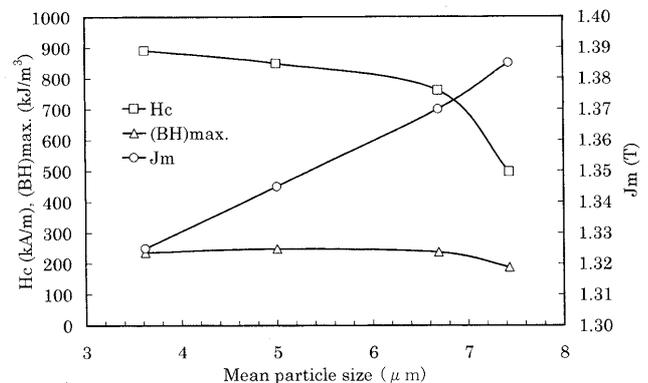


Fig. 6 Relationship between the mean particle size of $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ powder and the magnetic properties of the powder.

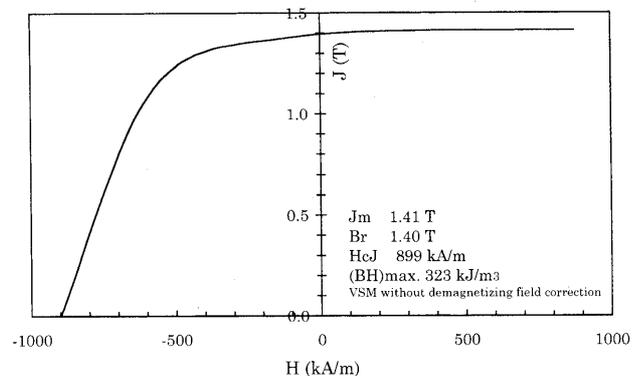


Fig. 7 Demagnetization curve of $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ magnet powder after ball-milling.

ることである。異方性ボンド磁石の製造工程では磁界をかけながら粉末の磁化容易方向をそろえて配向させる。このとき粉末同士が強く凝集していると配向度が上がり磁石の残留磁束密度や角型性は低下する。第三のポイントは、粉末がニュークリエーション型の保磁力機構をもつため、逆磁区の核となりうる場所を粉末に作らないことである。例えば、 α -Feなどの軟磁性析出物やクラック・歪みなどの表面欠陥は逆磁区の核になりうると思われる。また粉末に角張ったところがあると、局所反磁界が大きくなって逆磁区を生成しやすくなると思われる。このような逆磁区の核があるとその粉末の保磁力が低下するので、全体の保磁力や角型性も低下する。

湿式ボールミルによる粉碎時間を変え、粒径と磁気特性の関係を調べた結果を Fig. 6 に示した⁸⁾。粒径が減少すると保磁力は増大していくことがわかる。一方、粉碎の進行に伴って粉末が酸化し非磁性相が増加するとともに、逆粉碎が進み粉末同士が凝集する現象が起きる。その結果、粒径が小さいほど磁化が減少することになる。磁化と保磁力の相反する挙動によって最大エネルギー積はある粒径で最大となる。さらに粉末の酸化や凝集を抑制すれば、特性は改善される。例えば田島ら⁹⁾や町田ら¹⁰⁾は、湿式ボールミル粉碎で粉碎溶媒に界面活性剤を添加すると、凝集や歪みの導入を抑制しなめらかな表面をもつ粒径のそろった粉末が得られ、その結果磁気特性が向上することを報告している。粉碎条件と添加剤を検討し筆者らのグループで得られた湿式ボールミル粉碎粉末の減磁曲線の例を Fig. 7 に示す¹¹⁾。これまでも Sm-Fe 還元拡散合金を窒化した例が報告されているが^{12), 13)}、そのいずれよりも優れており、かつ溶解鑄造合金から製造されたこれらの報告に匹敵する磁気特性が得られている。

3.4 新しい製造方法

還元拡散法を応用した新しい $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 化合物粉末の製造方法を久米ら¹⁴⁾が報告している。これは、 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ 合金粒子が還元拡散反応により形成される段階で、粒径が約 $3\ \mu\text{m}$ となるように条件を設定することによって、従来必要だった微粉碎工程を簡略化しようというものである。還元拡散合金の粒径は、反応に伴う粒成長のため原料粉末の数倍になる。したがって用いる原料粉末の粒径と還元拡散反応温度および時間を制御すれば、目標とする粒径の合金を得ることは可能である。

粒径の小さな原料粉末を得るために、サマリウムと鉄の硫酸水溶液からこれらの水酸化物を沈殿させ、大気焼成し酸化物にする。これを、鉄を含有する酸化物が適量残留するよう条件を制御しながら水素還元すると、目的の還元拡散用原料粉末となる。鉄系酸化物を一部残留させるのは、Ca 還元に伴う発熱を還元拡散反応に利用するためである。得られた原料粉末に粒状金属カルシウムを混合し Ar ガス中 $1,050^\circ\text{C}$ で還元拡散反応を起こさせると Sm-Fe 合金粉

末を含む多孔質焼結体になる。引き続き雰囲気窒素ガスに切り替え 450°C で窒化すると、Sm-Fe-N 合金粉末と CaO および CaN からなる焼結体となる。これを水洗して Ca 分を除去し Sm-Fe-N 合金粉末を回収する。以上各工程の条件を調整することによって、微粉碎をほとんど必要としない粒径 $3\ \mu\text{m}$ の $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 化合物粉末が製造できる。なおこのようにして得られた粉末は、粒径は異なるものの Fig. 4 と同様に丸みを帯び粒度がそろったものになっている。このようにして製造された粉末の磁気特性は B_r 1.08 T, H_c 1,138 kA/m で、これをさらに機械解砕したものは B_r 1.24 T, H_c 1,074 kA/m と非常に高い H_c を有している。

4. 異方性ボンド磁石への応用

3.3 で得られた $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 化合物粉末をボンド磁石に応用した例として、ポリアミド 12 をバインダとした射出成形磁石、ゴムまたはエラストマーをバインダとした押出成形磁石、そして $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 化合物粉末にフェライト磁石粉末を混合したハイブリッドタイプの射出成形磁石について述べる。いずれも、金型に配向磁界をかけながら成形することによって磁石粉末の結晶 c 軸を磁界方向にそろえた異方性のボンド磁石である。これらボンド磁石の製造工程を Fig. 8 に示す。

4.1 射出成形磁石

Fig. 8 において磁石粉末と樹脂バインダとしてポリアミド 12 を混合混練し $3\ \text{mm}$ 程度にペレット化したものはコンパウンドと呼ばれ、磁石メーカーや磁石を内製している部品・機器メーカーに需要がある。高性能の異方性射出成形磁石を製造するためには、溶融したコンパウンドを金型に射出したとき、磁石粉末を十分配向させる必要がある。そのためにはコンパウンドの流動性が高いこと、配向磁界がなるべく大きいことが要求される。後者については磁石形状などにより常に十分な磁界強度が得られるとは限らない。したがってコンパウンドの配向特性は重要である。Fig. 9

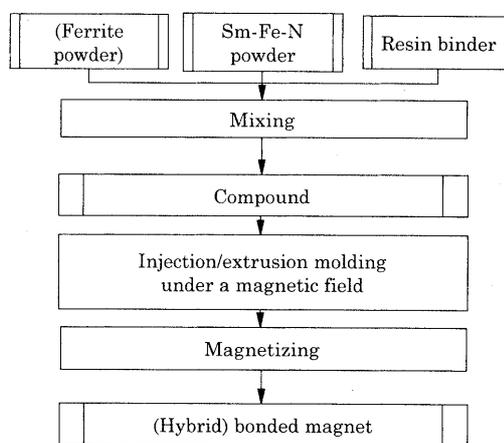


Fig. 8 Process of manufacturing an $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ anisotropic bonded magnet.

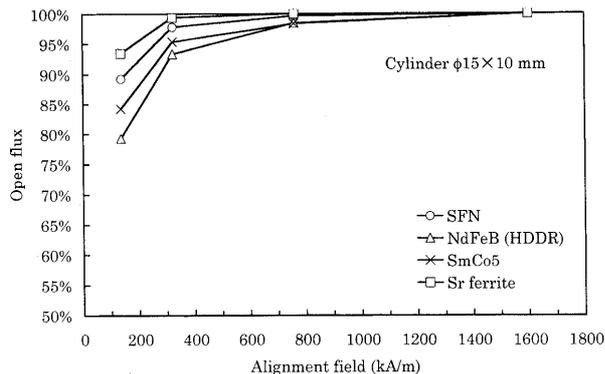


Fig. 9 Performance in the alignment of the crystal axis by means of a magnetic field at the time of injection molding.

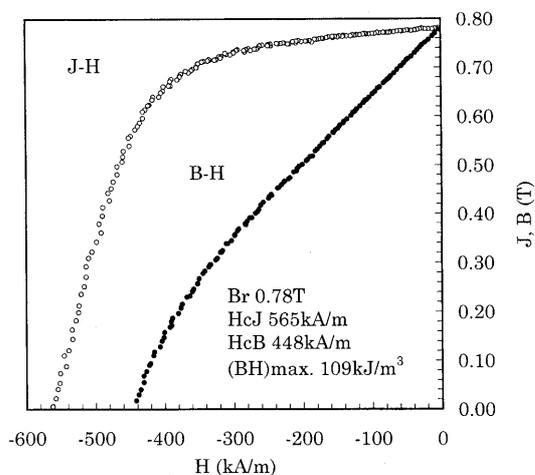


Fig. 10 Demagnetization curves $J-H$ and $B-H$ of an injection-molded $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ magnet.

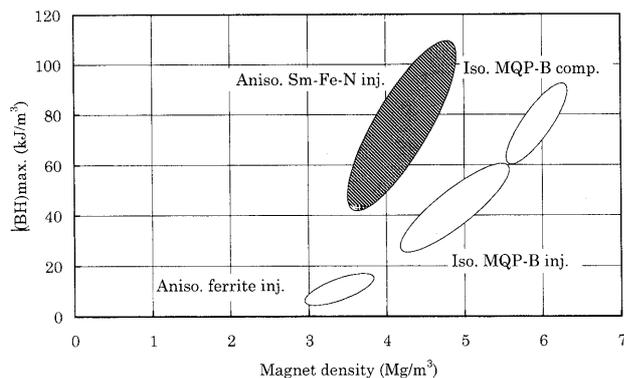


Fig. 11 Comparison of the magnets from the viewpoint of the relationship between $(BH)_{\text{max}}$ and the density.

は、配向磁界を変えて射出成形磁石を製造し、そのオープンフラックスを測定することによってコンパウンドの配向特性を評価したものである¹⁵⁾。金型は $\phi 15 \times 10$ mm の円柱を成形するためのもので、10 mm 方向に磁界がかかる。ここでは配向磁界 1,600 kA/m で成形した磁石のフラックスを 100% として相対値を示した。Sm-Fe-N は、フェライトには及ばないものの、異方性の希土類射出成形磁石

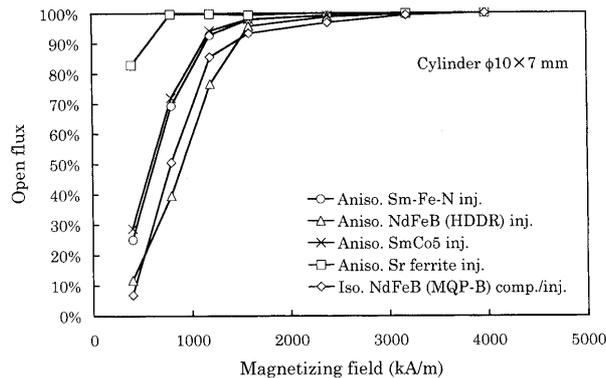


Fig. 12 Magnetizing behavior of an injection-molded $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ magnet with a size of $\phi 10 \times 7$ mm.

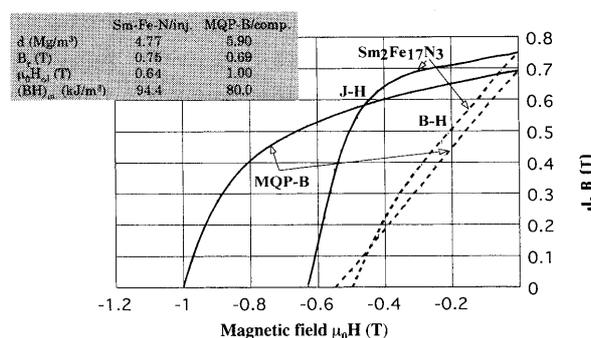


Fig. 13 Demagnetization curves of radially oriented injection-molded $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ ($\phi 23 \times \phi 18$ mm) and a compression-molded MQP-B ring magnet measured by VSM.

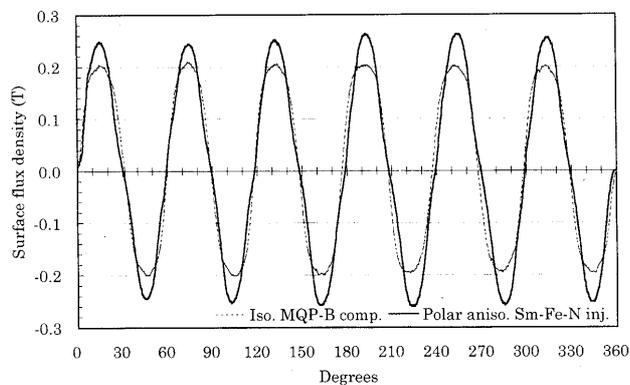


Fig. 14 Surface flux density of polar anisotropic $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ and a compression-molded MQP-B ring magnet ($\phi 23 \times \phi 21$ mm) for a spindle motor, measured by means of a Hall probe.

材料の中では優れた配向性を示すことがわかる。

射出成形磁石の減磁曲線の例を Fig. 10 に示す。密度 $4.78 \text{ Mg}/\text{m}^3$ で $B_r 0.78 \text{ T}$, $H_{cJ} 565 \text{ kA}/\text{m}$, $(BH)_{\text{max}} 109 \text{ kJ}/\text{m}^3$ が得られている。ボンド磁石では、磁石粉末の含有率を変えて磁気特性を調整することができる。Fig. 11 は、いくつかのボンド磁石について、磁石の $(BH)_{\text{max}}$ と密度の関係を示したものである¹⁵⁾。例えば $80 \text{ kJ}/\text{m}^3$ のボンド磁石について、MQ 粉を使った等方性 Nd-Fe-B 圧縮成形磁石

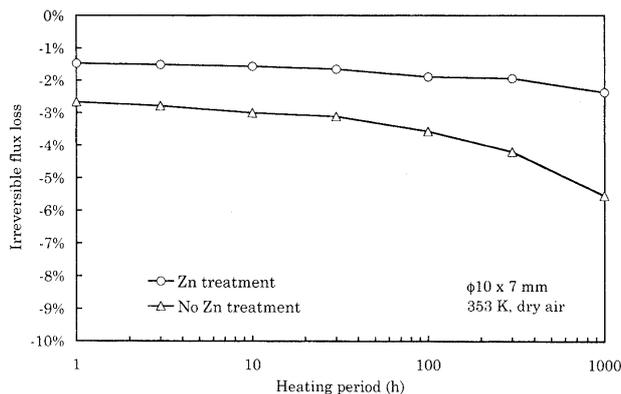


Fig. 15 Long-term thermal stability of injection-molded $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ anisotropic magnets at 353 K in a dry-air atmosphere.

では約 5.9 Mg/m^3 の密度が必要となるが、異方性 Sm-Fe-N 射出成形磁石では 4.4 Mg/m^3 程度であり 25% の軽量化が可能である。磁石材料は重量単価で議論されることが多いが、このことはコスト削減にもつながる。

磁石の着磁特性は応用上重要な項目である。例えばモータ用途では、2~3 mm ピッチで N 極と S 極とを多極に着磁した磁石を使用することが少なくない。このように多極着磁する用途では、着磁ヨークの制約から十分な磁界がかけられるとは限らない。したがってテストピースで飽和着磁したときの磁気特性が同じだったとしても、現実の製品ではその着磁特性によって得られるフラックスに差が現れる。Fig. 12 に、4,000 kA/m で着磁したときのフラックスを 100% とし、いくつかのボンド磁石の着磁特性を示した¹⁵⁾。異方性 Sm-Fe-N 磁石は、フェライトには及ばないものの異方性 SmCo_5 系磁石と同等で、等方性や異方性の Nd-Fe-B 系磁石よりも着磁しやすい。

Sm-Fe-N コンパウンドの配向特性を活かして作製したリング状磁石の例を Fig. 13 と Fig. 14 に示す。Fig. 13 は、外径 23 mm 内径 18 mm のラジアル異方性磁石の減磁曲線を VSM で測定したものである¹⁵⁾。密度 4.77 Mg/m^3 の磁石で B_r 0.75 T, H_{cJ} 509 kA/m, $(BH)_{\text{max}}$ 94.4 kJ/m^3 の性能が得られている。Fig. 14 は、スピンドルモータ用外径 23 mm 内径 21 mm 内周 12 極の極異方性磁石について、表面磁束密度を測定したものである。金型内には Nd-Fe-B 系焼結磁石を配置して配向磁界を発生させている。比較した等方性 Nd-Fe-B 圧縮成形磁石よりも高い表面磁束密度が得られることがわかる。

なお等方性磁石製造では高密度化がポイントになるのに対して、異方性磁石では高密度化に加えて磁石粉末の高配向化も重要である。高配向化にあたっては、コンパウンド材料・金型設計・射出成形の総合技術が必要になる。異方性射出成形の製造においては、熔融したコンパウンドが金型内で急速に冷却されるため流動性が低下し、配向しにくくなる傾向がある。これは磁石が小型薄肉形状になるほど

顕著である。十分な配向を前提にすれば磁石粉末含有率が高いほど磁気特性は向上するが、現実には含有率が高いと流動性が低下し配向度が悪化するため磁気特性が逆に低下する場合も見られる。例えば外径 13 mm 内径 9 mm 外周 12 極のリング状極異方性磁石でピーク表面磁束密度を評価すると、含有率 57 vol% で 0.34 mT だったのに対して、55 vol% では 0.35 mT と 3% ほど高くなった。

射出成形磁石の耐熱性をさらに高める必要がある場合、亜鉛処理した磁石粉末を用いることができる。粉末の亜鉛処理は従来いくつか報告があるが^{16)~20)}、筆者のグループでは、Sm-Fe-N 合金粗粉末と亜鉛粉末を混合して微粉碎し、その後熱処理する方法で磁石粉末を作製した。この粉末を用いた射出成形磁石の 80°C 経時変化を Fig. 15 に示す²¹⁾。亜鉛処理をしていない従来品に比べて信頼性が向上する。

4.2 押出成形磁石

押出成形磁石は、押出方向に磁気特性が均一で、長尺・シート状のボンド磁石に適している。また射出成形に比べて金型が短納期・安価にできるので、コストパフォーマンスが高い。組成物中の磁石粉末は成形機先端の金型部にかけた磁界の方向に異方化されて押し出される。肉薄の成形品では、シート以外に、例えば外径 4 mm 肉厚 0.5 mm の円筒状磁石の事例がある。磁石の厚みや製造条件によって異なるが、現在 81 kJ/m^3 までの磁気特性が得られている。Fig. 16 にその減磁曲線を示す。

押出成形磁石にはバインダの選択によってフレキシビリティをもたせることができ、ゴム磁石またはラバー磁石と呼ばれることもある。短冊状に切断したゴム磁石はモータケースに容易に巻き込み固定できるので、ファンモータなどに広く用いられている。

4.3 ハイブリッド磁石

ハイブリッド磁石は異種の磁石粉末を混合した磁石である。Sm-Fe-N 系のハイブリッド磁石としては、高性能の

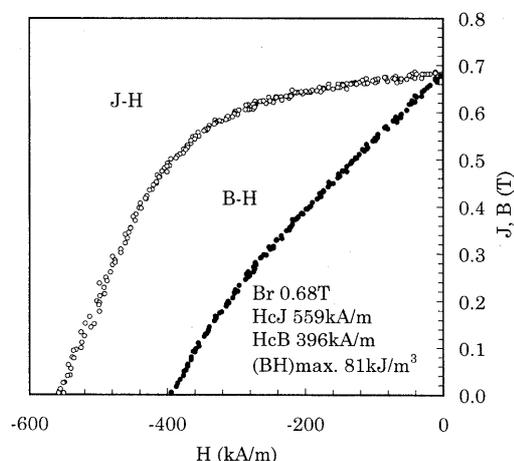


Fig. 16 Demagnetization curves $J-H$ and $B-H$ of an extrusion-molded $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ magnet.

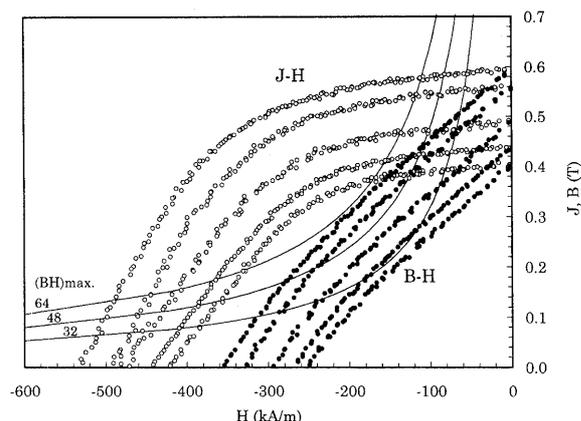


Fig. 17 Demagnetization curves $J-H$ and $B-H$ of an injection-molded $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ -ferrite hybrid magnet.

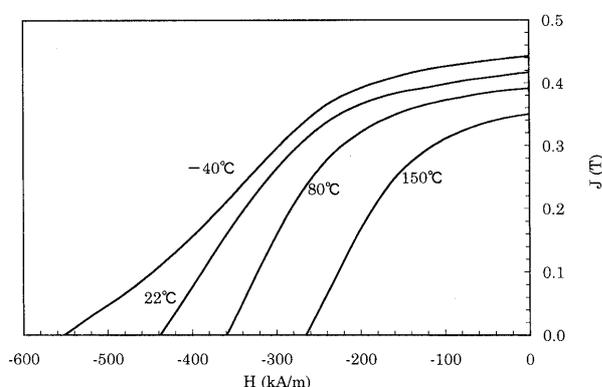


Fig. 18 Temperature dependence of the demagnetization curve of an injection-molded $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ -ferrite hybrid magnet.

磁石を製造する方法として、 $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 系磁石粉末あるいは HDDR 法で製造された異方性 Nd-Fe-B 系磁石粉末と混合した圧縮成形磁石の事例がある²²⁾。

筆者らは Sm-Fe-N とフェライト磁石粉末とのハイブリッド射出成形磁石材料を検討している。これは $(BH)_{\text{max}}$ が $20\sim 50 \text{ kJ/m}^3$ の領域、すなわちフェライト焼結磁石またはそれよりやや高い領域に対応するものである。この領域の磁石を使用する部品・機器メーカーは、磁石メーカーからフェライト焼結磁石や MQ 粉を使った射出成形磁石などを購入している。Sm-Fe-N-フェライトのハイブリッド磁石は、部品・機器メーカーの磁石内製化を可能にすることを狙ったものである。このような内製化の要求に対しては、従来 MQ 粉の含有率を調整した射出成形コンパウンドで対応してきたが、例えば 30 kJ/m^3 クラスのコンパウンドでも含有率 85 wt% 程度にしかならずコストパフォーマンスに欠けていた。また最近 MQ 粉とフェライトとのハイブリッド磁石も報告されているが^{23)~25)}、MQ 粉が等方で B_r が低いため異方性の $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 磁石粉末を使う場合に比べて希土類磁石粉末含有率が多くなりコストメリットが小さい。

Fig. 17 はハイブリッド磁石の減磁曲線である。一般に高 B_r グレードのフェライト焼結磁石では減磁曲線に肩が現れ動作点の低い用途での使用が制限されるが、ハイブリッド磁石ではこのようなことがない。また Sm-Fe-N とフェライトの H_{cJ} の温度係数 $\alpha(H_{cJ})$ はそれぞれ符号が異なるため、例えば Fig. 18 に示した減磁曲線の温度変化から求めた $\alpha(H_{cJ})$ は $-0.31\%/K$ と Sm-Fe-N 単独の場合よりも小さくなる。その結果フェライト磁石に特徴的な低温減磁は起こらず、かつ高温減磁も小さくなる。なお北澤らの圧縮成形磁石では、粉末充填率が高まる効果に加えて、磁石粉末同士の静磁気的な相互作用によって、磁気特性がそれぞれの単純な重ね合わせより向上することが報告されている²²⁾。しかしながら Sm-Fe-N-フェライトハイブリッド磁石ではこれらの効果は認められない。

5. おわりに

$\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 化合物を主相とする Sm-Fe-N 系磁石粉末の製造方法とそれをういたボンド磁石について紹介した。Sm 系の磁石は、Sm-Co 系磁石の印象から高価であると思われるがちである。Co は、地金価格が $10\$/1\text{b}$ 台に下がったかと思えば $30\$/1\text{b}$ を超えるなど、供給不安定に基づく価格変動の大きい原料である。一方、Sm は希土類鉱石中の含有量が La, Ce, Nd, Y などに比べて少ないことから、かつては高価な原料であった。しかし Nd-Fe-B 系焼結磁石の生産量が急増している中で添加元素として用いられる Dy の消費が進み、分離して得られる Sm に余剰感が出てきている。このため近年酸化サマリウムは酸化ネオジムよりも安価になっており、この状態は今後も続くものと思われる。あらゆる方面からコスト削減が求められる中で、Co を含まずまた酸化サマリウムから還元拡散法で製造される Sm-Fe-N 系磁石材料で新しいマーケットを展開していきたいと考えている。

なお、本文中の押出成形磁石の開発は、株式会社マグエックスとの共同開発として行われているものである。

参考文献

- 1) 今井秀明, 入山恭彦: 特許公報, 特許第 2703281 号.
- 2) J. M. D. Coey and H. Sun: *J. Magn. Magn. Mat.*, **87**, L251 (1990).
- 3) 飛世正博: 工業材料, **46**, 49 (1998).
- 4) 福野 亮: 工業材料, **46**, 41 (1998).
- 5) S. Sakurada, A. Tsutai, T. Hirai, Y. Yanagida, and M. Sahashi: *J. Appl. Phys.*, **79**, 4611 (1996).
- 6) ロバート・エドワード・セッチ: 公告特許公報, 特公昭 49-007296.
- 7) ハンス・ギュンター・ドマツェル: 公告特許公報, 特公昭 53-016798.
- 8) 川本 淳, 押村信満, 石坂和俊: 鉱山, **51**(9), 36 (1998).
- 9) K. Machida, A. Shioimi, H. Izumi, and G. Adachi: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **34**, L741 (1995).
- 10) 田島 伸, 服部 毅, 加藤義雄: 日本応用磁気学会誌, **19**,

- 221 (1995).
- 11) A. Kawamoto, T. Ishikawa, S. Yasuda, K. Takeya, K. Ishizaka, T. Iseki, and K. Ohmori: *IEEE Trans. Magn.*, **35**, 3322 (1999).
 - 12) T. Y. Lui, W. C. Chang, C. J. Chen, T. Y. Chu, and C. D. Wu: *IEEE Trans. Magn.*, **28**, 2593 (1992).
 - 13) S. Brennan, K. Kobayashi, and J. M. D. Coey: Proc. 13th International Workshop on Rare-earth Magnets and Their Applications, Birmingham, p. 795 (1994).
 - 14) 久米道也: *BM News*, **23**, 34 (2000).
 - 15) S. Yoshizawa, T. Ishikawa, I. Kaneko, S. Hayashi, A. Kawamoto, and K. Ohmori: *IEEE Trans. Magn.*, **35**, 3340 (1999).
 - 16) K. Machida, A. Nakamoto, Y. Nakatani, G. Adachi, and A. Onodera: *J. Alloys Compd.*, **222**, 18 (1995).
 - 17) H. Izumi, K. Machida, A. Shiomi, M. Iguchi, and G. Adachi: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **35**, L894 (1996).
 - 18) K. Makita and S. Hirose: *J. Alloys Compd.*, **260**, 236 (1997).
 - 19) H. Fukunaga, T. Aikawa, S. Nagaoka, and Y. Kanai: *J. Magn. Magn. Mat.*, **157-158**, 105 (1996).
 - 20) H. Fukunaga, K. Murakami, and J. M. Song: *IEEE Trans. Magn.*, **35**, 3298 (1999).
 - 21) T. Ishikawa, T. Iseki, K. Yokosawa, A. Kawamoto, I. Kaneko, and K. Ohmori: Proc. 16th International Workshop on Rare-earth Magnets and Their Applications, Sendai, p. 745 (2000).
 - 22) 北澤淳憲, 石橋利之: 日本応用磁気学会誌, **20**, 221 (1996).
 - 23) D. Seitz and D. Goll: Proc. 15th International Workshop on Rare-earth Magnets and Their Applications, Dresden, p. 69 (1998).
 - 24) D. Rodrigues, F. J. G. Landgraf, and M. Emura: Proc. 15th International Workshop on Rare-earth Magnets

- and Their Applications, Dresden, p. 437 (1998).
- 25) W. Ervens: Polymer Bonded Magnets 98, Ohio (1998).
- (2000年9月4日受理)



石川 尚 いしかわ たかし

昭 61 東北大学大学院理学研究科博士課程中退, 同年 住友金属鉱山(株)入社, 平 11 同社中央研究所勤務, 主任研究員, 現在に至る.

専門 磁性材料



川本 淳 かわもと あつし

昭 60 慶應義塾大学大学院修士課程修了, 同年 住友金属鉱山(株)入社, 主任研究員, 現在に至る.

専門 無機材料化学



大森賢次 おおもり けんじ

昭 52 東北大学大学院工学研究科博士課程修了, 同年 同学電気通信研究所助手,

昭 61 同学電気通信研究所助教授, 昭 62 住友金属鉱山(株)入社中央研究所勤務, 研究主管, 現在に至る.

専門 磁性材料

(工博)