

令和 4 年 6 月 2 日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K05071

研究課題名(和文) 電磁振動プロセスを用いた異方性鋳造ネオジウム磁石の創製

研究課題名(英文) Production of a casting anisotropic neodymium magnet via electromagnetic vibration processing

研究代表者

田村 卓也 (TAMURA, Takuya)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・材料・化学領域・研究チーム長

研究者番号：30446588

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、「NdCu + Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B」合金を対象として、液相であるNdCu非磁性相中における固相のNd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B磁石相分散状態及びc軸配向状態と電磁振動条件の関係を把握する事で、Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B相が均一微細分散化かつc軸配向するメカニズムを明らかにし、最終的に異方性鋳造ネオジウム磁石を創製することを目的として実験を行った。その結果、重希土類金属不使用で、残留磁化：0.8T、保磁力：1.0T程度の特性を出す事ができ、市販の異方性ネオジウムボンド磁石並みの磁石と同等の特性が実現可能であることを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究において見出した鋳造のみによる異方性ネオジウム磁石の作製は世界初であり、さらに均一微細分散化かつc軸配向するメカニズムを明らかにすることで、様々な値を定量化する事ができ、特に固相のネオジウム磁石相は非常に小さいエネルギーにて破碎する事が出来る事を見出した。このことは、今後様々なセミソリッドプロセスによる異方性磁石作製が可能になる可能性を指し示すものである。

研究成果の概要(英文)：For the "NdCu + Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B" alloy, we experimented to clarify the mechanism of uniform fine dispersion and c-axis orientation of the solid Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B magnet phase in the liquid NdCu non-magnetic phase by the electromagnetic vibration process. As a result, it is possible to obtain characteristics of residual magnetization: 0.8T and coercive force: 1.0T without using heavy rare earth metals, and it was possible to realize the same characteristics as commercially available anisotropic neodymium bond magnets.

研究分野：金属における凝固プロセス

キーワード：ネオジウム磁石 電磁振動 異方性 結晶配向 鋳造磁石

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

## 1. 研究開始当初の背景

近年、ハイブリッド車・電気自動車の普及及び販売台数激増の予測から、駆動用モーターに用いられる異方性焼結ネオジム磁石への需要が増加している。異方性焼結ネオジム磁石は、磁石粉末を磁場中にてc軸配向し、焼結する為、角型などシンプルな形状しか作製できないが、異方性鑄造ネオジム磁石が実現できると、これまで焼結技術では実現できなかった鑄造技術特有の3D複雑形状の異方性磁石が実現でき、これまでにない高性能モーター構造等が実現できる。しかし、鑄造技術のみでは結晶粒の孤立微細化及び結晶粒のc軸配向性を実現できない為、異方性鑄造ネオジム磁石は存在していなかった。しかし、我々はこれまで一貫して直流磁場中で溶湯に交流電流を印加することにより発生する電磁振動プロセスを用いた鑄造技術開発を行ってきた経験を活かすことにより、「NdCu + Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B」合金を鑄造する際、電磁振動力にてNd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B磁石相を微細分散化し、かつc軸配向化出来る事を見出し始めていた。しかし、これまで電磁振動プロセスにより結晶粒が配向した前例はなく、メカニズムに不明な点が多かった。

## 2. 研究の目的

そこで、本研究では、「NdCu + Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B」合金を対象として、液相であるNdCu非磁性相中における固相Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B磁石相の微細分散状態及びc軸配向状態と電磁振動条件の関係を把握する事でNd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B相が均一微細分散化かつc軸配向するメカニズムを明らかにすることを目的とした。更に得られたメカニズムに基づき、電磁振動条件及び「NdCu + Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B」合金組成にて高磁石相化し、高性能の異方性鑄造ネオジム磁石の創製を目指した。

## 3. 研究の方法

試料組成は「(Nd-30at%Cu) + 30 or 50mass%Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B」合金とした。(Nd-30at%Cu)合金は共晶組成であり、融点は520℃である。母合金は、純金属原料をHe雰囲気中高周波溶解にて溶解(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φ6mm母合金丸棒(L:15mm)を作製した。この母合金を用いて超電導マグネット(~10T)を用いた電磁振動プロセスにより半溶融セミソリッドプロセスを行った。10T超電導マグネットの中央部に図1の様に試料をセッティングし、上からかぶせたカーボンヒーターにより試料を加熱、さらに両端に設置したカーボン電極に交流電流を印加する事により電磁振動力を試料に印加した。今回の実験における代表的な電磁振動プロセス条件としては、Arフロー下にて、

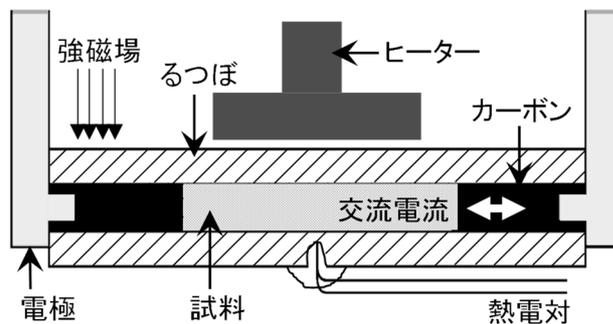


図1 試料セッティングの模式図

磁場を10Tまで上昇・試料温度を700℃まで加熱、  
 1段階目:250 Hz、90 Aの交流電流を120 s印加、  
 2段階目:1000 Hz、90 Aの交流電流を120 s印加、  
 400℃まで空冷(約200 s)、磁場を0Tまで降下  
 という2段階の電磁振動プロセスにて行った。試料温度700℃の場合、NdCu共晶非磁性相は液相、Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B磁石相は約1150℃が融点のため固相となっているセミソリッド状態である。

## 4. 研究成果

「(Nd-30at%Cu) + 30mass%Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B」合金において、母合金の組織は(Nd-30at%Cu)の組成を有する共晶組織と厚さ5μm程度の非常に粗大な板状結晶であるNd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B結晶から構成されていた。また、10T下で700℃まで加熱し、凝固のみを行った試料においては図2の(a)のように母合金の組織と同様の組織を有していた。このことから、半溶融状態において強磁場のみの印加では試料の組織に影響を全く与えないことが判明した。しかし、1段階目の250 Hzの電磁振動を印加すると粗大な板状結晶であったNd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B相は、50μm程度の大きさまで破碎され、「Ndリッチ相である(Nd-30at%Cu)共晶相内に微細状態で孤立する」ようになることが判明した。このNd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B相の微細化は、電磁振動力を利用した凝固組織微細化原理とは異なり、容器とNd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B板状結晶がぶつかることによる機械的な破碎により

微細・孤立化したものと推測された。そこで、電磁振動中の試料状態を2つのモデルでモデル化した。「破碎モデル」と「単振動モデル」である。「破碎モデル」は、試料がアルミナ管壁面に衝突・速度が0になり、その後反対向きのローレンツ力により反対のアルミナ管壁面に衝突・速度が0になるモデルである。もう一つの「単振動モデル」は、試料径がアルミナ管よりも小さいため、アルミナ管の壁面には衝突せずに単振動を行っているモデルである。この二つのモデルにより計算すると、確実に破碎モデルにて電磁振動する周波数は約 500Hz 以下であり、単振動モデルしかとらない周波数は約 2kHz 以上であることが判明した。また、破碎時のアルミナ管壁へぶつかる際のエネルギーは最大 1cJ と非常に小さいことが判明した。そこで、実際に周波数を変化させ実験を行ってみると、モデルにて導き出した周波数付近にて組織が変化していたことから、実際に破碎モデルの様にセミソリッド試料がアルミナ管壁へぶつかることにより破碎されていることが判明した。

また、2段階目のより高周波である電磁振動(1000 Hz)を印加すると、図2(b)に示すように無秩序に分散していた微細化  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  板状結晶が電磁振動方向に長辺を向けるように配向化することが判明した。図3に示すEBSD解析の結果、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  板状結晶は板厚方向がc軸方向となっており磁場方向に全ての  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  板状結晶の c 軸が配向していることが判明した。この事より、2段階の電磁振動プロセスを行うことにより、異方性ネオジム磁石の要件をすべて満たすようになり、図2(c)の様に異方性磁石の特性を得られることが判明した。この配向化は、強磁場下に起因する軸方向の磁化率が異なることによる配向化のみで達成されたものではないことも判明した。半溶融状態においては、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  板状結晶の方が(Nd-30at%Cu)液相よりも電気抵抗が高く、電磁振動下では  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  板状結晶の周りに共晶液相の振動流ができ、高周波においてはその振動流の振幅が小さいため、1段階目の電磁振動プロセスの様に容器にぶつかることによる撈拌なども起こさない。そのため、この液相の振動流への抵抗が少なくなるように  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  板状結晶が振動方向に対して長辺を向けることによる配向化が大きな原因であることが判明した。

さらに、カーボン電極から鉄電極に電極を変更することで、セミソリッド状態の液相に不要な相が晶出しなくなり、保磁力が向上する事が判明した。これらの実験より、重希土類金属不使用で「残留磁化:0.8T、保磁力:1.0T程度」と異方性ネオジムボンド磁石並みの磁石が実現可能であることを見出した。これらの成果は、焼結技術では実現できない複雑形状かつ高性能な異方性铸造ネオジム磁石を社会に提供するだけに留まらず、様々な機能性を有する複合材料において電磁振動プロセスを用いた配向技術による高性能化が実現できるようになる可能性を秘めている。

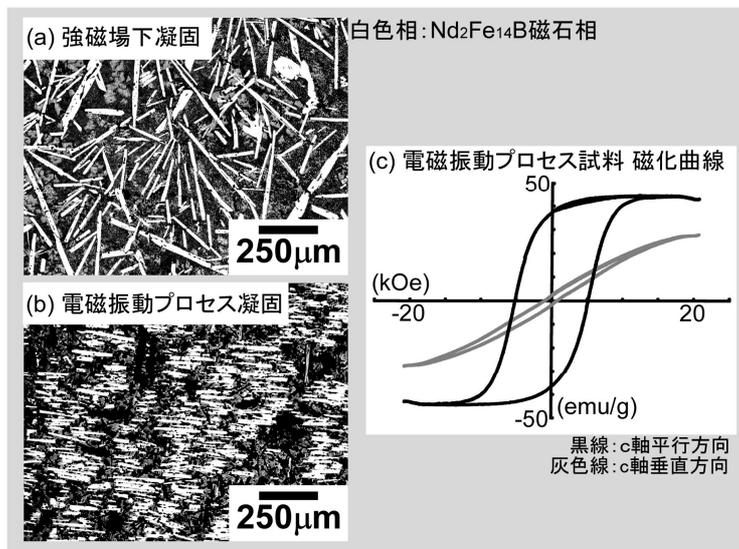


図2 「(Nd-30at%Cu) + 30mass% $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 」合金における電磁振動プロセスの効果



図3 「30mass% $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 」合金における電磁振動試料のEBSD結果 (測定された結晶格子を記載)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Li Mingjun、Tamura Takuya	4. 巻 883
2. 論文標題 On the optimization of solidification structures and magnetic properties of Nd70Cu30-50wt% Nd2Fe14B alloys by electromagnetic vibration	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Alloys and Compounds	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jallcom.2021.160915	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tamura Takuya、Li Mingjun	4. 巻 53
2. 論文標題 Quantitative Analysis of Breakdown Criteria of Nd2Fe14B Compounds During Electromagnetic Vibration and Their Frequency-Dependent Solidification Structures/Magnetic Properties	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Metallurgical and Materials Transactions A	6. 最初と最後の頁 1051 ~ 1068
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s11661-021-06576-z	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 田村 卓也、李 明軍	4. 巻 176
2. 論文標題 電磁振動セミソリッドプロセスを用いた異方性铸造ネオジム磁石の作製	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 铸造工学 全国講演大会講演概要集	6. 最初と最後の頁 214 ~ 217
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.11279/jfeskouen.176_214	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Li Mingjun、Tamura Takuya	4. 巻 9
2. 論文標題 Crystalline orientation control of the platelet Nd2Fe14B phase to produce magnetic anisotropy via electromagnetic vibration processing	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-019-42053-9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Li Mingjun、Tamura Takuya	4. 巻 51
2. 論文標題 Segmentation and Alignment of Nd2Fe14B Platelets in Nd-Cu Eutectic Alloys Using the Electromagnetic Vibration Technique	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Metallurgical and Materials Transactions A	6. 最初と最後の頁 2939-2956
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s11661-020-05725-0	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 田村卓也、李 明軍	4. 巻 58
2. 論文標題 電磁振動プロセスを用いた異方性鋳造ネオジム磁石の創製	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 あたりあ	6. 最初と最後の頁 520-521
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

[学会発表] 計7件(うち招待講演 0件/うち国際学会 1件)

1. 発表者名 李 明軍、田村卓也
2. 発表標題 Influence of processing temperature and electrode material on structures and magnetic properties of Nd70Cu30-50 wt% Nd2Fe14B alloys solidified by electromagnetic vibration
3. 学会等名 日本金属学会2021年秋期(第169回)講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 田村卓也、李 明軍
2. 発表標題 電磁振動プロセスにおける異方性鋳造ネオジム磁石の組織に及ぼす振動モードと周波数の影響
3. 学会等名 日本鋳造工学会第178回全国講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 田村 卓也、李 明軍
2. 発表標題 電磁振動セミソリッドプロセスを用いた異方性鋳造ネオジム磁石の作製
3. 学会等名 日本鋳造工学会第176回全国講演大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 田村 卓也
2. 発表標題 鋳造だけで強力ネオジム磁石を作る – 低価格強力磁石を作る –
3. 学会等名 テクノブリッジフェア in 中部
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 M. Li, T. Tamura
2. 発表標題 Production of an anisotropic Nd <sub>2</sub> Fe <sub>14</sub> B magnet via electromagnetic vibration processing
3. 学会等名 The 10th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (PRICM10) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 田村卓也、李 明軍
2. 発表標題 Nd-Fe-Cu-B合金を用いた電磁振動プロセスによる異方性鋳造ネオジム磁石の作製
3. 学会等名 日本金属学会2019年秋期(第165回)講演大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 田村卓也
2. 発表標題 セミアリッドプロセスによる強力ネオジム磁石作製の可能性
3. 学会等名 日本鑄造工学会東海支部 第9回鑄造先端プロセス研究部会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	李 明軍  (Li Mingjun)  (50392808)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・材料・化学領域・主任研究員    (82626)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------