

平成 21 年 6 月 24 日現在

研究種目：特別研究促進費

研究期間：2008

課題番号：20900139

研究課題名（和文） パノスコピック構造制御による新しい希土類永久磁石材料の開発

研究課題名（英文） Development of new rare-earth permanent magnets  
by panoscopic assembling

研究代表者

齋藤 哲治 (SAITO TETSUJI)

千葉工業大学・工学部・教授

研究者番号：10296311

研究成果の概要：新しい希土類永久磁石材料の開発として希土類金属(R)と 3d 遷移金属の Fe との金属間化合物である  $R_5Fe_{17}$  相の磁気特性について検討していたところ、 $Sm_5Fe_{17}$  相が非常に高い保磁力を示すことがわかった。また、Nd-Fe-B 系焼結磁石に代わる新しい希土類金属間化合物として知られている Sm-Fe-N 磁石粉末は高温で分解するためバルク化できなかったが、放電プラズマ焼結法で固化成形できることがわかった。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	1,800,000	0	1,800,000
年度			
年度			
年度			
年度			
総計	1,800,000	0	1,800,000

研究分野：磁性材料

科研費の分科・細目：構造・機能材料

キーワード：希土類磁石、高保磁力、急冷凝固法、粉末冶金

## 1. 研究開始当初の背景

永久磁石材料は省エネルギー材料の代表であり、最近経済産業省の希少金属代替プロジェクトの研究課題として高性能な Nd-Fe-B 磁石(ネオジウム鉄ボロン磁石)の保磁力を高めるために添加されているディスプロシウム(Dy)を低減する「希土類磁石向けディスプロシウム使用量低減技術開発」が採択され、永久磁石材料の研究の重要性が見直されてきた。この永久磁石材料の最も大きな用途は産業用モータであり、現在我が国で使用されているモータ用の電力使用量は全電力使用量の半分以上を占めると推定されており、高性能永久磁石の開発によりモータの消費電

力を 1%改善するだけで原子力発電プラント一基分の節電になると言われている。

しかし、永久磁石の研究としては、新しい永久磁石開発に関する研究はほとんどなく、既存のネオジウム鉄ボロン磁石の省資源化およびナノコンポジット化の研究、Sm-Fe-N 磁石(サマリウム鉄窒素磁石)粉末の高性能化およびバルク化の研究が行われているだけに過ぎない。そこで、新しい永久磁石材料としてコバルトベースの材料(Co 合金系)と希土類金属ベースの材料(Nd-Fe 合金系)について研究開発を行ってきたが、Co 合金系の材料や Nd-Fe 合金系の材料ではあまり高い保磁力が得られなかった。

しかし最近、希土類金属ベースの材料として Sm-Fe 合金 (サマリウム鉄合金) 系の材料について研究を進めたところ、この Sm-Fe 合金で高い保磁力が得られることがわかってきた。

## 2. 研究の目的

高性能な Nd-Fe-B 系焼結磁石が開発されて以来、希土類金属間化合物の研究が盛んに行われ、 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$  相などの新しい希土類永久磁石が開発されてきたが、いまだに Nd-Fe-B 系焼結磁石を超える永久磁石材料は開発されていない。本研究課題では、パノスコピック形態制御により新しい希土類永久磁石材料を開発することを目的とした。具体的には、(1) 新しい希土類永久磁石である Sm-Fe 合金の保磁力の機構について調べ、その磁石化を図ること、(2) Nd-Fe-B 系磁石と並ぶ高い磁気特性を有する Sm-Fe-N 磁石粉末の磁石化を目的として研究を行った。

## 3. 研究の方法

### (1) 新しい希土類永久磁石の研究開発

最近、新しい希土類金属 (R) と 3d 遷移金属の Fe との金属間化合物として  $\text{R}_3\text{Fe}_{29}$  相、 $\text{R}_5\text{Fe}_{17}$  相などの金属間化合物があることがわかってきた。そこで、これらの  $\text{R}_3\text{Fe}_{29}$  相、 $\text{R}_5\text{Fe}_{17}$  相の磁気特性について検討していたところ、 $\text{Sm}_5\text{Fe}_{17}$  相だけが非常に高い保磁力を示すことがわかった。そこで、 $\text{Sm}_5\text{Fe}_{17}$  相の構造と磁気特性の関係を調べ、 $\text{Sm}_5\text{Fe}_{17}$  相の保磁力の機構と大きさについて検討した。また、 $\text{Sm}_5\text{Fe}_{17}$  相の一部を他元素で置換した合金でも  $\text{R}_5\text{Fe}_{17}$  相が得られるかを検討した。

まずアルゴン中高周波溶解により  $\text{Sm}_{12.5+x}\text{Fe}_{87.5-x}$  ( $x=0-17.5$ ) 合金を作製した。次

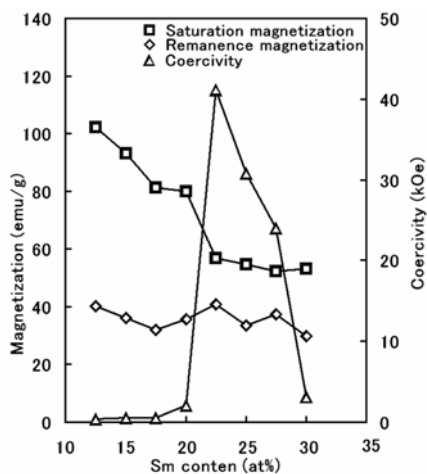


図1  $\text{Sm}_{12.5+x}\text{Fe}_{87.5-x}$  ( $x=0-17.5$ ) 合金急冷薄帯に熱処理を施した試料の磁気特性

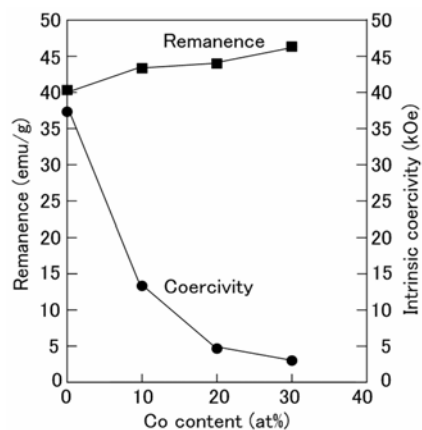


図2  $\text{Sm}_5(\text{Fe}, \text{Co})_{17}$  急冷薄帯に熱処理を施した試料の磁気特性

にアルゴン中急冷凝固法により Sm-Fe 系合金急冷薄帯を作製した。得られた急冷薄帯にアルゴン中で熱処理を施して  $\text{Sm}_5\text{Fe}_{17}$  相の作製を行った。また、Sm-Fe 合金の Fe の一部を Co に置換した Sm-Fe-Co 合金もアルゴン中高周波溶解により作製し、Sm-Fe 合金と同様に急冷凝固法および熱処理を行った。得られた試料の結晶構造と組織は X 線回折および透過型電子顕微鏡で、得られた試料の磁気特性は振動試料型磁力計および SQUID 磁束計で調べた。

急冷凝固法により作製した Sm-Fe 系合金急冷薄帯はほとんど保磁力を示さないことが、得られた Sm-Fe 系合金急冷薄帯に 973K で 1 時間熱処理を施すと高い保磁力を示すことがわかった。図 1 に  $\text{Sm}_{12.5+x}\text{Fe}_{87.5-x}$  ( $x=0-17.5$ ) 合金急冷薄帯に熱処理を施した試料の磁気特性を示す。Sm-Fe 合金急冷薄帯に熱処理を施した試料の飽和磁化は Sm 含有量が増えるにつれて減少していくことがわかった。しかし得られた試料の保磁力は Sm 含有量が 20at% までは小さいが、Sm 含有量が 22.5at% で 40kOe を非常に大きくなるが、Sm 含有量がさらに増えると減少していくことがわかった。

次に、Sm-Fe 系合金急冷薄帯の残留磁化の向上を目標に、 $\text{Sm}_5\text{Fe}_{17}$  急冷薄帯の一部を他の元素に置換した合金を作製し、同様に急冷凝固法と熱処理により  $\text{R}_5\text{Fe}_{17}$  相が得られるかを検討した。 $\text{Sm}_5\text{Fe}_{17}$  急冷薄帯の Fe の一部を Co に置換した  $\text{Sm}_5(\text{Fe}, \text{Co})_{17}$  急冷薄帯でも 30% 程度までは  $\text{R}_5\text{Fe}_{17}$  相が得られることがわかった。図 2 に  $\text{Sm}_5(\text{Fe}, \text{Co})_{17}$  急冷薄帯に熱処理を施した試料の磁気特性を示す。 $\text{Sm}_5(\text{Fe}, \text{Co})_{17}$  急冷薄帯に熱処理を施した試料の残留磁化は Co 置換量が増えるにつれて大きくなるが、Co 置換量が増えるにつれて保磁力が大きく減少していくことがわかった。

(2) Sm-Fe-N 磁石粉末の磁石化技術の研究

Sm-Fe-N 磁石粉末は Nd-Fe-B 系磁石と並ぶ高い磁気特性を有することが報告されて久しいが、その主相である  $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$  相が 873K 以上の高温で分解するため Nd-Fe-B 系磁石のように粉末冶金法では磁石化できない。本研究では、この Sm-Fe-N 磁石粉末の固化成形技術の開発を目的とした。なお、Sm-Fe-N 磁石粉末の固化成形法として、新しい固化成形法として注目されている冷間圧縮せん断法および放電プラズマ焼結法を採用した。図 3 に室温で固化成形できる冷間圧縮せん断法の概略を示す。この冷間圧縮せん断法は試料粉末に圧縮せん断力を付与することにより室温で固化成形できることが特徴である。図 4 に冷間圧縮せん断法および放電プラズマ焼結法で作製した Sm-Fe-N 磁石の外観写真を示す。Sm-Fe-N 磁石粉末は冷間圧縮せん断法により  $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$  相を分解することなく室温で固化成形できることがわかったが、得られた Sm-Fe-N 磁石の形状が薄い板状であるという制約がある。そこで、放電プラズマ焼結法で Sm-Fe-N 磁石粉末の固化成形を試みた。

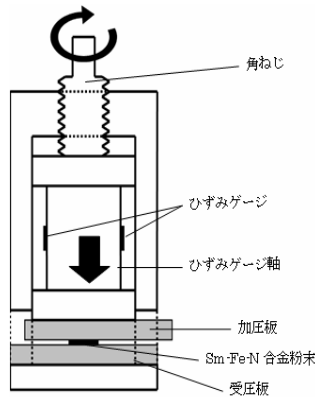


図 3 冷間圧縮せん断法の概略図

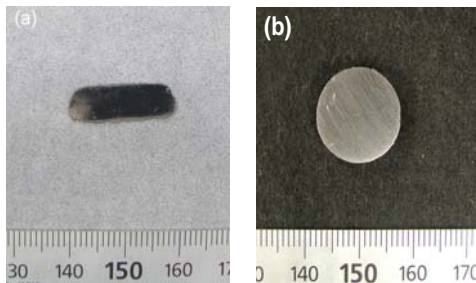


図 4 (a) 冷間圧縮せん断法および (b) 放電プラズマ焼結法で作製した Sm-Fe-N 磁石の外観写真

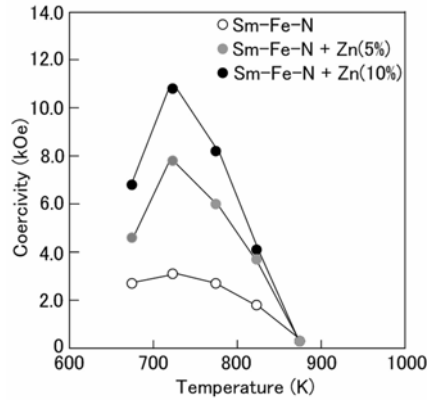


図 5 放電プラズマ焼結法により作製した Sm-Fe-N 磁石および Sm-Fe-N 粉末に Zn を 5%、10% 添加した混合粉末より作製した磁石の保磁力

Sm-Fe-N 磁石粉末は分解温度である 600 度以下という比較的低温で焼結にしたにもかかわらず、放電プラズマ焼結法で固化成形できることがわかった。

図 5 に放電プラズマ焼結法により作製した Sm-Fe-N 磁石の保磁力を示す。 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$  相は 873K 以上の高温で分解するとされているが、673K ですでに  $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$  相は一部分解して  $\alpha$ -Fe 相が析出しているため、3kOe 程度の保磁力しか示さないことがわかった。そこで、Sm-Fe-N 磁石粉末に Zn を 5%、10% 添加して放電プラズマ焼結中の  $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$  相の分解を抑えることを試みたところ、723K では非常に効率よく分解が抑えられ、高い保磁力を示すことがわかった。

上記の Sm-Fe-N 磁石は Sm-Fe-N 磁石粉末を固化成形して作製した磁石であるため磁氣的に等方性であり、その残留磁化は 5-6kG 程

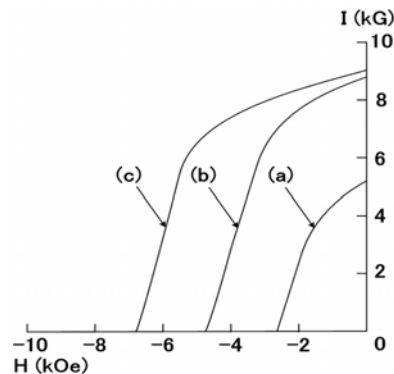


図 6 磁界中で配向した後、放電プラズマ焼結法により作製した Sm-Fe-N 異方性磁石および Sm-Fe-N 粉末に Zn を 5%、10% 添加した混合粉末より作製した異方性磁石の減磁曲線

度とそれほど大きくない。そこで、放電プラズマ焼結法の前に磁界中で原料粉末を配向して高い残留磁化を有する高性能な異方性磁石の作製を試みた。図6に得られた異方性磁石の減磁曲線を示す。放電プラズマ焼結法により作製したSm-Fe-N磁石の減磁曲線を示す。得られた試料の残留磁化は等方性磁石に比べて、9kG程度まで大きく向上した。

#### 4. 研究成果

新しい希土類永久磁石であるSm-Fe系合金急冷薄帯は適当な熱処理を施すと40kOeを超える大きな保磁力を示すことがわかった。このSm-Fe系合金急冷薄帯のFeの一部をCoに置換すると保磁力は低下するが、残留磁化が少し向上することがわかった。

また、高温で分解するためバルク化できなかったSm-Fe-N磁石粉末が冷間圧縮せん断法および放電プラズマ焼結法で固化成形できることがわかった。また、放電プラズマ焼結法では磁氣的に異方性の磁石の作製も可能であることがわかった。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計7件)

- ① T. Saito and T. Furutani, "High coercivity Sm-Fe melt-spun ribbon", J. Appl. Phys., vol.105, pp. 07A716-1-3 (2009). (査読: 有)
- ② T. Saito and T. Furutani, "Magnetic properties of Sm<sub>5</sub>Fe<sub>17</sub>-based magnets produced by spark plasma sintering method", IOP Conf. Series :Mater. Sci. Eng., vol.1, pp. 012032-1-6 (2009). (査読: 有)
- ③ T. Saito and Y. Kamagata, "Synthesis and magnetic properties of Sm<sub>3</sub>(Fe,Ti)<sub>29</sub> compound", J. Alloys Compd., vol.454, pp. 210-213 (2008). (査読: 有)
- ④ T. Saito, "Consolidation of Sm<sub>5</sub>Fe<sub>17</sub> powder by spark plasma sintering method", Mat. Sci. Eng. B, vol.150, pp.38-42 (2008). (査読: 有)
- ⑤ T. Saito, "Magnetic properties of Sm<sub>5</sub>(Fe,Co)<sub>17</sub> melt-spun ribbons", J. Appl. Phys., vol.103, pp. 07E118-1-3 (2008). (査読: 有)
- ⑥ T. Saito, "Annealing of amorphous

Sm<sub>5</sub>Fe<sub>17</sub> melt-spun ribbon", Mater. Trans., vol. 49, pp. 1446-1450 (2008). (査読: 有)

- ⑦ T. Saito, "Magnetic properties of anisotropic Sm-Fe-N bulk magnets produced by spark plasma sintering method", J. Magn. Mater., vol.320, pp.1893-1897 (2008). (査読: 有)

[学会発表] (計7件)

- ① 齋藤哲治、古谷朋一、放電プラズマ焼結法で作製したSm-Fe系磁石の磁気特性、平成21年度電気学会全国大会、2009.3、北海道大学
- ② Tetsuji Saito and Tomokazu Furutani, Magnetic properties of Sm<sub>5</sub>Fe<sub>17</sub>-based magnets produced by spark plasma sintering method, IUMRS-ICA2008, 2008.12, 名古屋国際会議場
- ③ 齋藤哲治、Sm-Fe-N系異方性磁石の磁気特性、電気学会マグネティックス研究会、2008.12、日本電気計器検定所
- ④ Tetsuji Saito and Tomokazu Furutani, High coercivity Sm-Fe melt-spun ribbon, 53rd Conference on Magnetism and Magnetic Materials, 2008.11, Austin, Texas, USA
- ⑤ 齋藤哲治、古谷朋一、Sm-Fe系合金急冷薄帯の構造と磁気特性、日本金属学会第143回大会、2008.9、熊本大学
- ⑥ 古谷朋一、齋藤哲治、急冷凝固法で作製したSm-Fe二元系合金の磁気特性、平成20年度電気学会基礎・材料・共通部門大会、2008.8、千葉工業大学
- ⑦ 齋藤哲治、Sm-Fe系合金のハード磁気特性、第25回希土類討論会、2008.5、タワーホール船堀

[その他]  
特になし

#### 6. 研究組織

(1) 研究代表者

齋藤 哲治 (SAITO TETSUJI)  
千葉工業大学・工学部・教授  
研究者番号: 10296311

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし