

# 耐熱モーター用 高鉄濃度サマリウムコバルト磁石の製造技術

Manufacturing Technology for Samarium-Cobalt Magnets with High Iron Concentration for Heat-Resistant Motor Equipment

萩原 将也

桜田 新哉

前田 貴大

■ HAGIWARA Masaya

■ SAKURADA Shinya

■ MAEDA Takahiro

自動車や鉄道車両などの駆動モーターは、比較的高い温度で使用されており、そこで用いられる永久磁石には、高い耐熱性と高い最大磁気エネルギー積 ( $(BH)_{\max}$ ) を併せ持つことが求められている。

東芝は、高鉄濃度サマリウムコバルト (SmCo) 磁石を以前から開発してきたが、今回、量産化を図るための製造技術を東芝マテリアル(株)と共同で開発した。粉末粒径の制御と独自の熱処理を適用することで、課題であった焼結体の低酸素濃度化と高密度化を両立させ、室温で265～275 kJ/m<sup>3</sup>の高い  $(BH)_{\max}$  を実現した。開発したSmCo磁石では、高い耐熱性を持つとともに、140℃以上では、一般に採用されているジスプロシウム (Dy) を添加した耐熱型ネオジム磁石を上回る  $(BH)_{\max}$  を持つことが確認できており、高い温度で使用されるモーターに最適な永久磁石と考えられる。

Permanent magnets possessing both high heat-resistant demagnetization and a high maximum energy product ( $(BH)_{\max}$ ) are necessary for motors such as traction motors installed in automobiles and rolling stock, which operate at relatively high temperatures.

Toshiba has been engaged in the development of a samarium-cobalt (SmCo) magnet with high iron concentration as an alternative to heat-resistant neodymium magnets with added dysprosium (Dy), and has now developed a manufacturing technology for this magnet in cooperation with Toshiba Materials Co., Ltd. This technology realizes a balance between low oxygen concentration and high density of sintered magnets through control of the particle size of the pulverized alloy powder and the application of a proprietary heat treatment. We have confirmed that a SmCo magnet experimentally produced using the newly developed mass production process achieves a high  $(BH)_{\max}$  of 265-275 kJ/m<sup>3</sup> at room temperature. The SmCo magnet also has high resistance to demagnetization as well as a higher  $(BH)_{\max}$  at temperatures exceeding 140°C compared with heat-resistant neodymium magnets currently used in motors, thereby meeting the requirements for motors operating in high-temperature environments.

一般論文

## 1 まえがき

電気自動車や、ハイブリッド電気自動車、鉄道車両などに用いられる駆動モーターや、産業用モーター、風力発電機など、比較的高い温度で使用されるモーターや発電機には、一般に、高温時における保磁力維持を目的としてジスプロシウム (Dy) を添加した耐熱型ネオジム磁石<sup>(1)</sup>が使用されている。しかし、Dyの鉱山は地球上の一部地域に集中しているため、耐熱型ネオジム磁石を大量消費する時代に向けて供給不安や価格高騰が大きくなりリスクとなっている。このため、Dyを使用しなくても高温で高い残留磁束密度 ( $B_r$ ) と最大磁気エネルギー積 ( $(BH)_{\max}$ ) を持つ磁石の開発が望まれている。

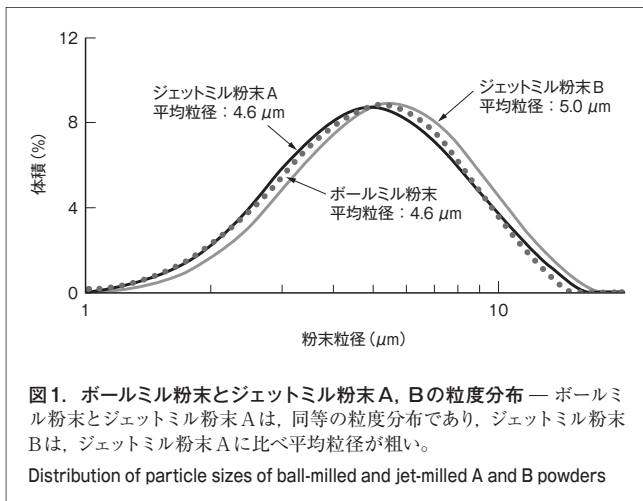
東芝は、Dyを使わなくても高い耐熱性を持つサマリウムコバルト (SmCo) 磁石に着目し、磁石が含有する鉄濃度を高めることで  $B_r$  と  $(BH)_{\max}$  の向上を追求してきた。その結果、Sm ( $\text{Co}_{\text{bal}}\text{Fe}_{0.35}\text{Cu}_{0.06}\text{Zr}_{0.02}$ )<sub>7.8</sub> 組成において、異相の析出を抑えて微細で均一なセル状組織が形成できる組織制御技術を開発し、SmCo磁石において、当社では過去最高の  $B_r=1.23$  T、 $(BH)_{\max}=280$  kJ/m<sup>3</sup> を実現した<sup>(2)-(4)</sup>。

このような高い  $B_r$  及び  $(BH)_{\max}$  は、実験室でボールミルを用いて粉砕した粉末から作製した磁石によって得られたもの

であり、量産化を図るためには、ジェットミル粉砕への移行が重要と考えられる。そこで、以前からSmCo磁石の製造及び販売をしている東芝マテリアル(株)の量産プロセス(ジェットミル粉砕を含む)をベースに、高鉄濃度SmCo磁石の製造技術を同社と共同で開発した。

## 2 量産型ジェットミル粉砕の適用検討

一般のSmCo磁石は、所定組成の合金が、粉砕から磁界中プレス成形、焼結、溶体化熱処理、時効処理までの工程を経ることで製造される。高鉄濃度SmCo磁石では、組織制御のため、これらに加えて溶体化熱処理の前に中間熱処理を、時効処理の前に予備時効処理を追加する。1章で述べたように、量産プロセスでの粉砕工程には、通常、ジェットミル粉砕が用いられる。そこで、まず、ボールミル粉砕による粉末と同等の粒度分布が得られるように、東芝マテリアル(株)の量産型ジェットミルを用いて、ガス圧や原料投入速度などの粉砕条件を調整することを試みた。その結果、図1に示すように、ジェットミル粉末Aにおいて、ボールミル粉末とほぼ同等の粒度分布で、平均粉末粒径(メジアン径d(50))を採用もほぼ同じ4.6 μmが得られた。しかし、この粉末を用いて磁石を作製し



たところ、ボールミル粉末と同等の $8.25 \sim 8.30 \text{ g/cm}^3$ の焼結体密度が得られたにもかかわらず、 $B_r$ が $1.23 \text{ T}$ から $1.19 \text{ T}$ に低下し、 $(BH)_{\max}$ も $280 \text{ kJ/m}^3$ から $255 \text{ kJ/m}^3$ に低下することが明らかになった。

磁石焼結体の酸素濃度を調べた結果、ジェットミル粉末Aを用いて作製した磁石では $4,000 \text{ ppm}$ 程度であり、ボールミル粉末を用いた場合 ( $2,000 \sim 2,500 \text{ ppm}$ 程度)と比較してほぼ倍増していることが判明した。ボールミル粉砕が大气との接触を極力抑えられる湿式プロセスであるのに対し、ジェットミル粉砕は、溶媒を用いない乾式プロセスであるため粉末に吸着する酸素量が増え、焼結時にサマリウム (Sm) 酸化物が大量に生成して酸素濃度が増大したと考えられる。

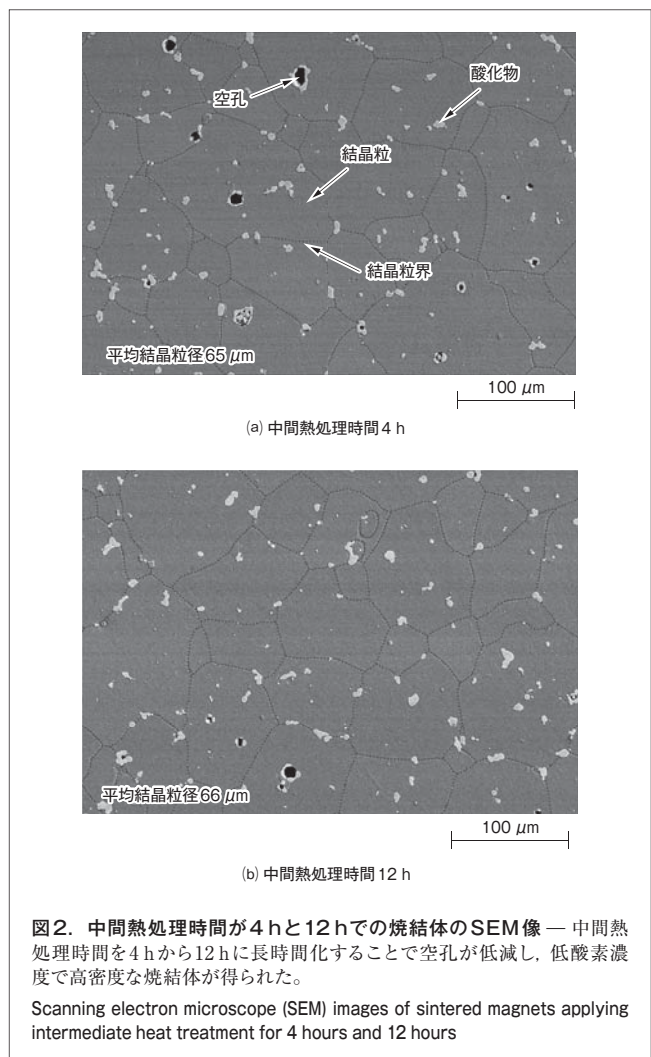
そこで、次に、粒度分布の形状をできるだけ維持したまま、平均粉末粒径を $5.0 \mu\text{m}$ まで粗大化し(図1のジェットミル粉末B)、粉末の比表面積を減らすことで焼結体の酸素濃度低減を試みた。その結果、焼結体の酸素濃度は $3,000 \sim 3,400 \text{ ppm}$ まで低減されたものの、焼結体内に空孔が多数残存して焼結体密度が $8.00 \text{ g/cm}^3$ と大幅に低下し、これを反映して $B_r$ が $1.16 \text{ T}$ 、 $(BH)_{\max}$ が $244 \text{ kJ/m}^3$ と低い特性にとどまった。ただし、焼結体密度を $8.30 \text{ g/cm}^3$ に換算した場合の $B_r$ の推定値は $1.21 \text{ T}$ と高いことから、この酸素濃度を維持したまま焼結体密度を高めることができれば、高い $B_r$ と $(BH)_{\max}$ を実現できると考えられる。つまり、酸化の影響が小さい粗めの粉末を用いて、いかにして密度の高い焼結体を実現できるかが課題であり、次の3章でその検討結果について述べる。

### 3 低酸素濃度・高密度焼結体の作製検討

一般に、焼結温度が高いほど緻密化が進行しやすいので、焼結温度を高めて高密度化する方法が考えられるが、焼結温度の上昇は、焼結体の部分熔融や、Smの揮発による組成ずれに伴う特性ばらつきが問題になる。また、焼結後に行われ

る熱処理工程(中間熱処理、溶体化熱処理、予備時効処理、及び時効処理)の温度上昇も、緻密化に有効と考えられるが、異相の析出により、特性を劣化させるリスクがある。そこで、今回は熱処理温度よりも熱処理時間に着目し、なかでも焼結後にもっとも高温で行われる中間熱処理の長時間化を試みた。中間熱処理は、従来のSmCo磁石の製造プロセスにはない当社独自の熱処理である。焼結温度と溶体化温度の間の温度で熱処理を行うもので、焼結体の結晶粒径を粗大化させる効果が見いだされている<sup>(4)</sup>。この結晶粒成長促進効果を利用して空孔を埋めるのが狙いである。

平均粉末粒径 $5.0 \mu\text{m}$ のジェットミル粉末Bを用いて作製した焼結体において、中間熱処理時間を $4 \text{ h}$ とした場合と $12 \text{ h}$ とした場合の焼結体断面のSEM(走査型電子顕微鏡)像を図2に示す。 $4 \text{ h}$ から $12 \text{ h}$ へと長時間化することで、空孔が減少していることが明らかであり、焼結体密度も $8.00 \text{ g/cm}^3$ から $8.27 \text{ g/cm}^3$ に向上することが確認された。焼結体の酸素濃度は $3,000 \sim 3,400 \text{ ppm}$ であり、狙いとした低酸素濃度で高密度の焼結体を実現できた。中間熱処理の長時間化に伴う明確



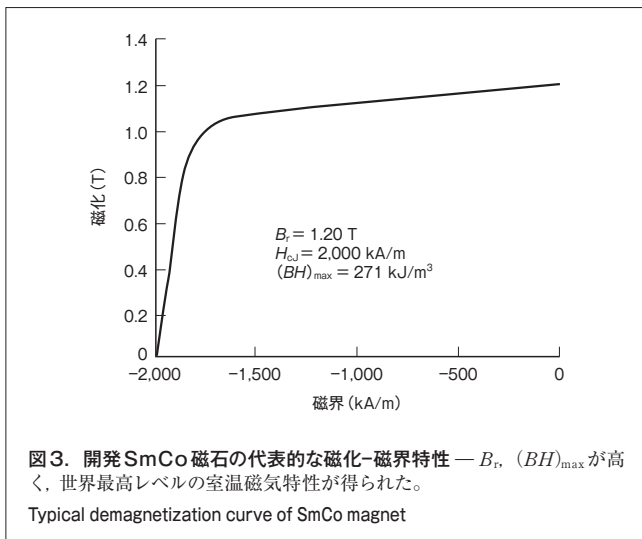


図3. 開発SmCo磁石の代表的な磁化-磁界特性 —  $B_r$ ,  $(BH)_{max}$  が高く、世界最高レベルの室温磁気特性が得られた。  
Typical demagnetization curve of SmCo magnet

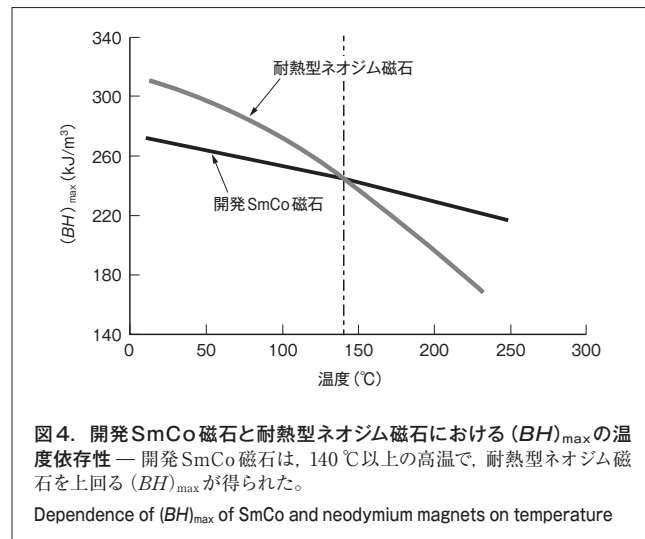


図4. 開発SmCo磁石と耐熱型ネオジム磁石における  $(BH)_{max}$  の温度依存性 — 開発SmCo磁石は、140℃以上の高温で、耐熱型ネオジム磁石を上回る  $(BH)_{max}$  が得られた。  
Dependence of  $(BH)_{max}$  of SmCo and neodymium magnets on temperature

な平均結晶粒径の増大は見られなかったが、今回の12 hまでの熱処理ではまだ空孔を埋める段階にあり、更なる長時間化で増大する可能性があると考えられる。

これまで実験室で開発してきた組織制御技術に加え、今回開発した低酸素濃度・高密度焼結体製造技術により、東芝マテリアル(株)の量産型ジェットミルで粉砕した粉末を用いた高鉄濃度SmCo磁石(以下、開発SmCo磁石と略記)において、室温で以下の磁気特性が得られた。代表的な磁化-磁界特性を図3に示す。

- (1)  $B_r = 1.20 \sim 1.21$  T
- (2) 固有保磁力 ( $H_{c_j}$ ) = 1,600 ~ 2,200 kA/m
- (3)  $(BH)_{max} = 265 \sim 275$  kJ/m<sup>3</sup>

市販のSmCo磁石の最高グレード品と比較して、同等以上の  $H_{c_j}$  を持ちながら  $B_r$  と  $(BH)_{max}$  が高く、世界最高レベル<sup>(注1)</sup>の室温磁気特性と言える。

各プロセスでの平均粉末粒径、焼結体密度、酸素濃度、及び室温磁気特性 ( $B_r$ ,  $(BH)_{max}$ , 及び  $H_{c_j}$ ) を表1に示す。

#### 4 開発SmCo磁石の高温磁気特性

開発SmCo磁石における  $(BH)_{max}$  の温度依存性を図4に示

す。図には比較のため、現在一般に採用されている、重希土類を添加した耐熱型ネオジム磁石の温度依存性についても併せて示している。図に示すように、開発SmCo磁石は、140℃以上の高温で耐熱型ネオジム磁石を上回る、もっとも  $(BH)_{max}$  の高い磁石である。

図5(a)は開発SmCo磁石について様々な温度で測定した磁束密度-磁界特性である。磁束密度-磁界特性は、磁石を用いる各種モーターを設計するうえで重要であり、屈曲のない直線的な磁束密度-磁界特性では、不可逆減磁が小さく、減磁耐性が高い。開発SmCo磁石では、図に示すように、200℃でわずかに屈曲が表れているが、それ以下の温度ではほぼ直線的な特性が得られている。これに対し、一般の耐熱型ネオジム磁石では、図5(b)に示すように、180℃では磁束密度-磁界特性に明確な屈曲が表れる。このことから、より高温まで直線的な特性を示す開発SmCo磁石は、耐熱型ネオジム磁石と比較して不可逆減磁が生じにくく、減磁耐性が高いと言える。

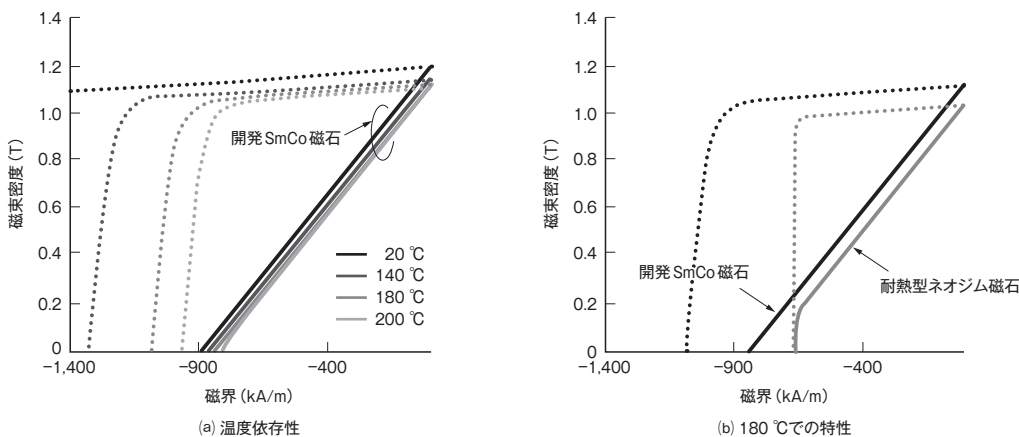
これらの高温での磁気特性から、開発SmCo磁石は、電気自動車や、ハイブリッド電気自動車、鉄道車両などに用いられる駆動モーターや、産業用モーター、風力発電機などの中で、140℃以上の高温環境で使用されるモーターや発電機に最適な磁石であると考えられる<sup>(5)</sup>。

表1. 各プロセスでの平均粉末粒径、中間熱処理時間、焼結体密度、酸素濃度、及び室温磁気特性 ( $B_r$ ,  $(BH)_{max}$ ,  $H_{c_j}$ )

Average particle size, intermediate heat treatment time, density, oxygen concentration, and magnetic properties of specimens in each process

粉碎工程	平均粉末粒径 (μm)	中間熱処理時間 (h)	密度 (g/cm <sup>3</sup> )	酸素濃度 (ppm)	$B_r$ (T)	$(BH)_{max}$ (kJ/m <sup>3</sup> )	$H_{c_j}$ (kA/m)
ボールミルプロセス	4~5	4	8.25~8.30	2,000~2,500	1.23~1.24	270~280	1,600~2,200
ジェットミルプロセス1	4~5	4	8.25~8.30	3,900~4,400	1.18~1.19	240~250	1,600~2,200
ジェットミルプロセス2	5~6	4	7.50~8.10	3,000~3,400	1.10~1.16	220~240	1,600~2,200
ジェットミルプロセス3	5~6	12	8.25~8.30	3,000~3,400	1.20~1.21	265~275	1,600~2,200

(注1) 2016年11月現在、室温でのSmCo磁石において、当社調べ。



\*点線は、わかりやすくするために併記した磁化-磁界特性

図5. 開発SmCo磁石と耐熱型ネオジウム磁石の磁束密度-磁界特性 — 開発SmCo磁石は、200℃付近まで磁束密度-磁界特性が直線的であり、重希土類を添加した耐熱型ネオジウム磁石よりも減磁耐性が高い。

Demagnetization curves of SmCo and neodymium magnets

## 5 あとがき

実験室で、 $280 \text{ kJ/m}^3$ の高い $(BH)_{\text{max}}$ を実証した高鉄濃度SmCo磁石において、量産化を図るための製造技術を、東芝マテリアル(株)の量産プロセスをベースに、同社と共同で開発した。特に、量産型ジェットミルを用いる場合に課題となっていた焼結体の低酸素濃度化と高密度化の両立については、平均粉末粒径の粗大化と中間熱処理時間の長時間化の組合せで克服し、 $265 \sim 275 \text{ kJ/m}^3$ の高い $(BH)_{\text{max}}$ を実現した。

更に、開発SmCo磁石は、高耐熱モーターの実使用温度域(140℃以上)において、現在一般に採用されている重希土類を添加した耐熱型ネオジウム磁石を上回る $(BH)_{\text{max}}$ を持つとともに、180℃でもほぼ屈曲のない直線的な磁束密度-磁界特性が得られ、耐熱型ネオジウム磁石と比較して不可逆減磁が生じにくく、減磁耐性が高いことが示された。これに加え、開発SmCo磁石では、モーターの冷却システムが不要又は簡素にできて省スペース化や低コスト化が可能となることや、薄型磁石が使用可能となりモーター設計の自由度が向上することなども期待できる。

開発SmCo磁石は、既に東芝マテリアル(株)でサンプル提供を開始しており、いくつかの応用先で適用可能性について検討が進められている。

今後、開発SmCo磁石は、耐熱型ネオジウム磁石と共存しながら、モーターや発電機の小型軽量化、高出力化、及び高効率化を通じて、省エネ社会の実現に貢献していくことが期待される。

## 文献

- (1) Sagawa, M. et al. New material for permanent magnets on a base of Nd and Fe (invited). *J. Appl. Phys.* **55**, 6, 1984, p.2083 - 2087.
- (2) Horiuchi, Y. et al. Effects of Solution Treated Temperature on the Structural and Magnetic Properties of Iron-Rich  $\text{Sm}(\text{CoFeCuZr})_z$  Sintered Magnet. *IEEE Trans. Magn.* **49**, 7, 2013, p.3221 - 3224.
- (3) Horiuchi, Y. et al. Effect of Pre-Aging Treatment on the Microstructure and Magnetic Properties of  $\text{Sm}(\text{Co}, \text{Fe}, \text{Cu}, \text{Zr})_{7.8}$  Sintered Magnets. *Mater. Trans.* **55**, 3, 2014, p.482 - 488.
- (4) Horiuchi, Y. et al. Influence of intermediate-heat treatment on the structure and magnetic properties of iron-rich  $\text{Sm}(\text{CoFeCuZr})_z$  sintered magnets. *J. Appl. Phys.* **117**, 17, 2015, 17C704.
- (5) 東芝. “プレスリリース”. 東芝. <[http://www.toshiba.co.jp/about/press/2016\\_11/pr\\_j1001.htm](http://www.toshiba.co.jp/about/press/2016_11/pr_j1001.htm)>. (参照 2017-02-14).



萩原 将也 HAGIWARA Masaya

技術統括部 研究開発センター 機能材料ラボラトリー。  
永久磁石材料など機能材料の研究・開発に従事。日本金属学会、粉体粉末冶金協会会員。  
Functional Materials Lab.



桜田 新哉 SAKURADA Shinya, Ph.D.

技術統括部 研究開発センター 機能材料ラボラトリー研究主幹、博士(工学)。永久磁石材料や熱電変換材料など機能材料の研究・開発に従事。電気学会、日本磁気学会、日本金属学会、粉体粉末冶金協会会員。  
Functional Materials Lab.



前田 貴大 MAEDA Takahiro

東芝マテリアル(株) 材料部品製造部 磁性部品技術担当。  
磁性材料の開発・製造に従事。  
Toshiba Materials Co., Ltd.