

異方性Nd-Fe-B系HDDR磁石粉末における微細構造の解析と制御

滝沢, 里奈

<https://hdl.handle.net/2324/1931944>

出版情報：九州大学, 2017, 博士（工学）, 課程博士
バージョン：
権利関係：やむを得ない事由により本文ファイル非公開（3）

氏 名 : 滝沢 里奈

論 文 名 : 異方性 Nd-Fe-B 系 HDDR 磁石粉末における微細構造の解析と制御

区 分 : 甲

博士論文要約データ

最近の各種デジタル機器には小型で複雑形状が可能なボンド磁石が多用されており、その原料となる Nd-Fe-B 系磁石粉の更なる高性能化が求められている。HDDR (Hydrogenation-Disproportionation-Desorption-Recombination) 処理は、Nd-Fe-B 系鑄造合金を水素雰囲気中で高温に保持した後で水素を取り除く簡便な熱処理により、高保磁力の異方性 Nd-Fe-B 系磁石粉を作製できる優れた製法である。これは HDDR 処理によって $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相が $\alpha\text{-Fe}+\text{NdH}_2+\text{Fe}_2\text{B}$ に一旦分解して再び $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相に戻る際に、結晶方位がある程度揃ったサブミクロン粒組織になるためである。サブミクロンレベルの微細粒を方位配向するのは容易ではないため、HDDR 処理法による配向メカニズムが注目を集め多くの研究がなされてきたが、未だ決定的な実験事実は得られていない。これは HDDR 処理過程における組織変化が非常に複雑かつ不均一なため、通常の走査電子顕微鏡 (SEM) や透過電子顕微鏡 (TEM) だけでは微細構造解析が困難なことが一因である。一方、Nd-Fe-B 系磁石が抱えている高温減磁の弱点を改善するために、組織制御による高保磁力化の研究にも注目が集まっている。本研究では、プリセッション電子回折 (PED) 法や電子線後方散乱回折 (EBSD) 法などの方位解析技術を適用し、長年未解決のまま残されている HDDR 処理による配向機構の解明を試みると共に、合金組成や HDDR 処理条件を改良して高保磁力化させた HDDR 磁石粉についても最新電子顕微鏡法を駆使した解析を行って、Nd-Fe-B 系磁石粉の更なる高性能化に向けた HDDR 処理による組織制御についての知見を得た。

第 1 章では、序論として Nd-Fe-B 磁石の概要および Nd-Fe-B 系 HDDR 磁石の特徴と研究の背景を示し、異方化機構と高保磁力化に着目して HDDR 処理による微細組織制御における課題をまとめ、本研究の目的を述べた。

第 2 章では、本研究を通して用いた SEM、TEM、および付随する組成分析と結晶方位解析の

手法、ならびに解析試料の作製方法を示した。

第 3 章では、配向機構に関する知見を得るために、HDDR 処理過程における微細組織変化を PED および EBSD 方位解析を中心とした微細構造解析により詳細に調査した。HDDR 処理後に生成した $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 再結合粒は強い二軸集合組織を有しており、処理後半の脱水素再結合 (DR) 初期に $\alpha\text{-Fe}$ と NdH_2 分解相の界面から二軸配向性をもって核生成してくることがわかった。また処理前半の水素化相分解 (HD) 過程における分解組織では、 $\alpha\text{-Fe}$ と NdH_2 に一軸集合性が見られ、この分解組織における配向性が $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 再結合粒の配向度に大きく寄与することを明確にした。

第 4 章では、Nd の一部を異方性磁界の高い Pr で置換し、さらに DR 条件を変えて作製した HDDR 磁石粉について微細組織解析を行った。Pr 添加による新たな化合物の生成などは認められず、 $(\text{Nd}, \text{Pr})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 再結合粒が形成されて高保磁力化すると共に、再結合粒間に生成する Nd-rich 粒界相において希土類(Nd+Pr)濃度が上昇して磁氣的相互作用を分断する能力が高まり保磁力が向上することが判明した。また DR 過程において水素圧を緩やかに減圧することで、DR 反応を止めたまま分解組織を粗大化でき、 $(\text{Nd}, \text{Pr})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 再結合粒の配向度を上昇させて磁化を向上できることを見出した。すなわち、脱水素速度の制御が HDDR 再結合粒の配向度向上に有効であることがわかった。

第 5 章では、HDDR 処理のうち DR 処理条件が微細組織に与える影響について調査し、磁気特性との関連を検討した。低温で DR 処理を行うほど $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 再結合粒が微細になり、Nd-rich 粒界相の分散性が向上すると共に、再結合粒間の Nd-rich 粒界相における希土類(Nd+Pr)濃度が上昇し、(Fe+Co)濃度が低下することがわかった。希土類濃度の高い Nd-rich 粒界相は $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 粒同士の磁氣的分断能を高め、保磁力向上に寄与する。ただし、脱水素温度が低温すぎると、一部に Nd-rich 粒界相が形成されない領域が残存してしまい、この領域では $\alpha\text{-Fe}$ 分解相の残存および $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 再結合粒の異常粒成長が生じるため、磁気特性を悪化させてしまうことが判明した。したがって、均一な Nd-rich 粒界相を形成できる温度域で、できるだけ低温で DR 処理を行うことが HDDR 磁石粉の高保磁力化に有効であることを明らかにした。

第 6 章では、本論文で得られた知見をまとめて総括とした。