Al-Fe 系磁性材料の特性におよぼすメカニカルアロイング処理と

メカニカルミリング処理の影響

日大生産工(院) ○渡邉 隆 日大生産工 久保田 正広

1. 緒言

近年,電子機器部品の高性能化および多機 能化により,電子機器部品の軽量化が強く求 められている.軽量化および高機能化を達成 するために,純アルミニウム粉末に,磁性材 料を添加することで磁気特性が付与されたア ルミニウム基複合材料の研究が行われている ¹⁾.これまでに,純アルミニウムにソフトフェ ライト(Ni-Cu-Zn フェライト)^{1),2)}やマグネタ イト (Fe₃O₄)³⁾を添加することで磁気特性を 付与させたアルミニウム基複合材料に関する 研究が報告されている.

粉末を撹拌混合するプロセスとして、メカ ニカルミリング(Mechanical Milling: MM)法 およびメカニカルアロイング(Mechanical Alloying: MA)法がある. MM 法は、単一元 素を粉砕混合するプロセスである. 一方, MA 法は、2 種類以上の粉末を固相状態のまま,攪 拌,混合し合金化する,固相合金化プロセス である. 特に、溶融の困難な高融点金属の合 金化および融点差や比重差が大きい金属の合 金化が可能である. これらの方法は、粉末に 大きなエネルギーを導入できるため、非晶質、 準結晶、過飽和固溶体、準安定相などの非平 衡状態が形成される. さらにナノレベルの組 織形成が可能である.

SPS 法は, 粉末間に放電現象を発生させて, 粉末表面の酸化膜などの破壊とジュール熱に よって粒子間結合をおこなう方法である.従 来のホットプレス(HP)法と比べて,短時間で 固化成形ができるため, MA 粉末の結晶粒組 日大生産工 新妻 清純 織や微細な分散粒子を粗大化させることな

く,バルク材に成形することができる.

純鉄は約1800Kの融点を有し,かつ約170 HVの高い硬さを示す.また,2.2wb/m²と高 い飽和磁束密度を有するため,アルミニウム と複合化できれば高強度かつ高飽和磁束密度 を兼備した材料を創製できる可能性がある.

本研究では、純アルミニウムに純鉄を添加 し、MA 処理を施した粉末(MA 粉末)およ び MM 処理を施した純アルミニウムに純鉄を 混合した粉末(MM 混合粉末)を作製し、こ れらの粉末を SPS 装置で固化成形した.粉末

(MA 粉末および MM 混合粉末) およびこれらのバルク材 (SPS 材)の機械的性質および磁気特性を調べることを目的とした.

2. 実験方法

2.1 供試材の作製

MA 処理, MM 処理および MM 粉末の混合 には振動型ボールミルを用いた. MA 処理お よび MM 処理は, アルゴン雰囲気中で工具鋼 製容器内に工具鋼製ボール 70 g および粉末 10 g, さらに潤滑助剤としてステアリン酸 0.25 gを装入した.装入した粉末は, MM 処理 の場合,純アルミニウムおよび純鉄の単一元 素粉末,そして MA 処理の場合,混合粉末で ある.混合粉末は,純アルミニウム粉末に対 して,純鉄粉末の添加量を 10,30 および 50 mass%と変化させた. MA 処理および MM 処 理は,それぞれの組成に対して 2,4 および 8 h 処理をした. MM 粉末の混合は,空気中で工 具鋼製容器内に MM 粉末のみを装入し, MA

Effect of Mechanical Alloying and Mechanical Milling Conditions on Properties of Al-Fe System Magnetic Materials Takashi WATANABE, Masahiro KUBOTA and Kiyozumi NIIZUMA 粉末と同様の組成で 0.5 h 混合処理を施した.

MA 粉末および MM 混合粉末を黒鉛ダイス に5g充填し, SPS 装置を使用して,真空中 で圧力 49 MPa を負荷し,焼結温度 673 K, 773 K および 873 K で1h 保持し固化成形し た.

2.2 材料特性の評価

SPS 材の硬さは、加圧面をエメリー紙で研 磨後、ビッカース硬さ試験機を用いて、荷重1 kg,保持時間15sで、7ポイント測定をし、 それぞれの最大値、最小値を除き平均値を求 めた.

原料とした純 Al,純 Fe 粉末および MA 処 理で得られた MA 粉末の粒子径を測定するた め,走査型電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope:SEM)を使用した.カーボン導電 テープ上にこれらの粉末を固定し,加速電圧 10 kV で観察した.MA 粉末の平均粒子径は, 無作為に 30 個の粉末を選び,それらの長軸を 測定し,最大値,最小値をそれぞれ 2 個ずつ 除いた 26 個の平均値から算出した.

MA 粉末および SPS 材の化合物は,X 線回 折装置を用いて同定した.測定は,CuKa線 (λ =1.54056 Å)を用いて管電流 60 mA,管電 圧 40 kV で回折速度 1.66×10⁻²°/s で回折角 度 2 θ が 20~80°の範囲で行った.粉末は Isoamyl と Corodion の混合液で試料ホルダー に固めて測定した.SPS 材は表面を研磨後, 測定に供した.

SPS 材の組織を観察するために, SPS 材表 面をケラー氏液で腐食後, 光学顕微鏡(optical microscopy: OM)で観察した.

SPS 材の磁気特性(飽和磁束密度,保磁力) を評価するために,振動試料型磁力計

(Vibrating Sample Magnetometer: VSM) を用い,800 kA/m または40 kA/mの磁界中 で,飽和磁束密度および保磁力を測定した. 試験片は,SPS 材を機械加工により6×4×1 mm とし,磁気測定に供した.

3. 実験結果および考察

Fig. 1 に純鉄の添加量ごとに MA および MM 処理時間を変化させたときの MA 粉末お よび MM 混合粉末の粒子径を示す. MA 粉末 の粒子径は, MA 処理時間の増加に伴い, 小 さくなった. これは, MA 処理時間の増加に よって, 粉砕されていくためである. 一方, MM 混合粉末は MM 処理時間を変化させたが, 約 22 µm 一定の値を示した. 混合した純アル ミニウムおよび純鉄の MM 粉末の粒子径は, それぞれ 12.3 µm および 11.3 µm であること から, 混合過程で MM 粉末同士が接合し, 粒 子径が大きくなったと考えられる.

Fig. 2 に純アルミニウム粉末に純鉄粉末を 30 mass%添加した MA 粉末および MM 混合 粉末の X 線回折結果を示す. MA 粉末および MM 混合粉末のどちらも構成相に変化は見ら れず,純アルミニウムおよび純鉄のみが同定 された.

Fig.3にMA 処理およびMM 処理を施した Al-30 mass%Fe 粉末を焼結温度を変化させて 固化成形した SPS 材の X 線回折結果を示す. MA 粉末および MM 混合粉末を固化成形する ことによって,アルミナイド化合物 (Al13Fe4, Al₅Fe₂)の生成を確認することができた. MA 粉末および MM 混合粉末のどちらも焼結温度 の上昇に伴い、アルミナイド化合物の回折強 度が増加していることから, アルミナイド化 合物の生成量が増加していると考えられる. このことから焼結温度の上昇によって固相反 応が促進すると考えられる.また,焼結温度 873 K において MM 混合粉末よりも MA 粉末 を固化成形した SPS 材の方が回折強度が高い ことから, MA 粉末の方がより活性なため, アルミナイド化合物の生成量が多いと考えら れる.

Fig.4に MA および MM 処理2h 施した粉 末を焼結温度873Kで固化成形したSPS 材の 組織を示す. MA 粉末および MM 混合粉末を 固化成形した SPS の組織を比較すると,MA 粉末を固化成形した SPS 材は,灰色の部分が 全体を占めていることが確認できた.一方, MM 混合粉末を固化成形した SPS 材は,灰色 および白色の部分が確認できた.焼結温度の 最も高い条件であることから,灰色の組織は アルミナイド化合物と考えられる.

Fig. 5 に MA 粉末および MM 混合粉末を焼 結温度を変化させて固化成形した SPS 材の硬 さを示す.なお,MM 混合粉末を固化成形し た SPS 材の硬さは,Fig. 4 で観察された白色 と灰色の組織をそれぞれ測定し,その平均値 を示した.焼結温度の上昇に伴い,硬さの向 上が確認できる.また,焼結温度 873 K で Al-30 mass% Fe (MA 粉末)および Al-10 mass% Fe (MM 混合粉末)を固化成形した



Fig. 1 Mean particle diameter of Al-X mass% Fe MA powder and MM mixed powder (X=10, 30, 50).



Fig. 2 X-ray diffraction patterns of Al-30 mass% Fe MA powders and MM mixed powder.

SPS 材の硬さは,それぞれ 405.5 HV および 360.6HV と大きく向上している.このときの MM 混合粉末を固化成形した SPS 材の灰色の 組織および白色の組織の硬さは,それぞれ 535.2 HV および 186 HV を示した.これはア ルミナイド化合物の生成が硬さの向上に寄与 したと考えられる.

Fig. 6 に MA 粉末および MM 混合粉末を焼 結温度 673 K で固化成形した SPS 材の純鉄添 加量ごとの磁気特性(飽和磁束密度および保 磁力)を示す.一般的に飽和磁束密度は材料 組成比に依存し,保磁力は結晶構造に依存し, 構造敏感の性質を示すことが知られている⁴⁾. また,試料として用いた純鉄の飽和磁束密度 は,2.2 Wb/m² である.純鉄添加量の増加に



Fig. 3 X-ray diffraction patterns of Al-30 mass% Fe SPS materials fabricated from MA(MM) 2 h powder as a function of sintering temperature.



Fig. 4 Optical micrographs of SPS materials fabricated from MAed 2 h powder at 873 K; (a)Pure Al, (b)Pure Fe, (c)Al-30 mass% Fe MA and (d) Al-30 mass% Fe MM.



Fig. 5 Vickers hardness of Al-X mass% Fe SPS materials fabricated at different sintering temperature(X=10,30,50).



Fig. 6 Change in the saturation magnetic flux density and coercive force for SPS materials fabricated from 673 K.

伴い, MA 粉末および MM 混合粉末の SPS 材 の飽和磁束密度は増加した.また, MM 混合 粉末を固化成形した SPS 材の方が高い飽和磁 束密度を示した.これは, Fig. 3 に示したよ うに, MA 粉末を固化成形した SPS 材の方が アルミナイド化合物の生成量が多いことが原 因だと考えられる.SPS 材の飽和磁束密度は, MA 粉末および MM 混合粉末にかかわらず, 純鉄添加量に対応した値を示した.

一方,保磁力は純鉄添加量の増加に伴い減少 し,MA粉末よりもMM混合粉末を固化成形 したSPS材の方が高い保磁力を示した.保磁 力の増加する理由として,転位や不純物のな どの存在が磁壁の移動を抑制することが挙げ られる.Fig.4に示したように,MA粉末を固 化成形したSPS材は,灰色の組織が全体を占 め, MM 混合粉末を固化成形した SPS 材は, 白色の組織と灰色の組織に分かれている.この組織の違いが磁壁の抑制に影響を与え,保 磁力に差が生じたと考えられる.

4. 結言

純アルミニウムと純鉄を MA 処理または MM処理によって得られた粉末を SPS 装置で 固化成形した.作製した粉末および SPS 材の 特性を評価し,以下の知見を得た.

- MA 粉末は MA 処理時間の増加により、次 第に微細化していくが、MM 混合粉末は、 一定の値で飽和した.
- 2) 粉末では、純アルミニウムおよび純鉄のみが同定されたが、SPS 材では固化成形する際の加熱により、アルミナイド化合物(Al₁₃Fe₄, Al₅Fe₂)が同定された.
- 3)MA 粉末および MM 混合粉末を固化成形した SPS の飽和磁束密度は、どちらも純鉄添加量に対応した値を示した.一方、保磁力は組織が異なるために、MM 混合粉末の方が高い保磁力を示した.

謝辞:磁気特性の測定および有益な助言を賜 りました本学電気電子工学科大学院生飯島達 也君および村田利明君に深く感謝申し上げま す.

参考文献

- 1)曽我部岳, 久米祐二, 小橋眞, 金武直幸: アルミニウム基磁性材料の磁気特性に及ぼ す圧縮ねじり加工条件の影響, 軽金属学会 第 122 回春期大会講演概要, (2012) p. 221-222.
- 2)青木翔,久保田正広:メカニカルアロイン グ法と放電プラズマ焼結法で作製したアル ミニウム基磁性材料の特性,軽金属,59, (2009) p. 666-671.
- 3)米本涼,有田誠,堀田善治:HPT加工によるAl/Fe₃O₄高強度磁性複合材の作製と特性評価,軽金属学会第121回秋期大会講演概要,(2011) p. 277-278.

4)小沼稔:磁性材料,工学図書,(1996) p. 73.