

(19)



Europäisches Patentamt

European Patent Office

Office européen des brevets



(11)

EP 0 931 322 B1

(12)

EUROPÄISCHE PATENTSCHRIFT

(45) Veröffentlichungstag und Bekanntmachung des
Hinweises auf die Patenterteilung:
21.05.2003 Patentblatt 2003/21

(51) Int Cl.7: **H01F 1/24**, H01F 1/26,
H01F 41/02

(21) Anmeldenummer: **98948761.6**

(86) Internationale Anmeldenummer:
PCT/DE98/02297

(22) Anmeldetag: **11.08.1998**

(87) Internationale Veröffentlichungsnummer:
WO 99/009565 (25.02.1999 Gazette 1999/08)

(54) **WEICHMAGNETISCHER, FORMBARER VERBUNDWERKSTOFF UND VERFAHREN ZU DESSEN
HERSTELLUNG**

SOFT MAGNETIC, DEFORMABLE COMPOSITE MATERIAL AND PROCESS FOR PRODUCING
THE SAME

MATERIAU COMPOSITE MAGNETIQUE DOUX DEFORMABLE ET PROCEDE PERMETTANT DE
LE PRODUIRE

(84) Benannte Vertragsstaaten:
DE FR GB IT

(73) Patentinhaber: **ROBERT BOSCH GMBH**
70442 Stuttgart (DE)

(30) Priorität: **14.08.1997 DE 19735271**

(72) Erfinder:
• **AICHELE, Wilfried**
D-71364 Winnenden (DE)
• **KOCH, Hans-Peter**
D-70435 Stuttgart (DE)

(43) Veröffentlichungstag der Anmeldung:
28.07.1999 Patentblatt 1999/30

(60) Teilanmeldung:
00119956.1 / 1 061 534

(56) Entgegenhaltungen:
EP-A- 0 406 580 **EP-A- 0 434 669**
WO-A-92/20522 **FR-A- 2 545 640**

EP 0 931 322 B1

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist. (Art. 99(1) Europäisches Patentübereinkommen).

Beschreibung

Stand der Technik

[0001] Die Erfindung betrifft einen weichmagnetischen, formbaren Verbundwerkstoff, der weichmagnetische Eigenschaften aufweisende Pulver enthält, die eine nichtmagnetische Beschichtung aufweisen, sowie ein Verfahren zu dessen Herstellung.

[0002] Weichmagnetischen Werkstoffe werden zur Herstellung von temperatur-, korrosions- und lösungsmittelbeständigen magnetischen Bauteilen im Elektroniksektor und insbesondere in der Elektromechanik benötigt. Dabei bedürfen diese weichmagnetischen Bauteile gewisser Eigenschaften: sie sollen eine hohe Permeabilität ($\mu_{\max}$), eine hohe magnetische Sättigung (B_s), eine geringe Koerzitivfeldstärke (H_c) und einen hohen spezifischen elektrischen Widerstand (ρ_{spez}) aufweisen. Die Kombination dieser magnetischen Eigenschaften mit einem hohen spezifischen elektrischen Widerstand ergibt eine hohe Schaltdynamik, das heißt, die magnetische Sättigung und die Entmagnetisierung eines derartigen Bauteiles erfolgen innerhalb kurzer Zeit.

[0003] Bislang werden beispielweise Weicheisenbleche zu Lamellenpaketen verklebt, um als Anker von Elektromotoren zu dienen. Die Lagenisolation wirkt jedoch nur in einer Richtung. Aus dem EP 0 540 504 B1 ist bekannt, weichmagnetische Pulvern mit einem Kunststoffbinder aufzubereiten und damit durch ein Spritzgußverfahren entsprechende Bauteile herzustellen. Um die für das Spritzgießen notwendige Fließfähigkeit zu gewährleisten, sind die Pulveranteile in spritzgießfähigen Verbundwerkstoffen auf maximal 65 Vol.-% begrenzt. Demgegenüber erfolgt beispielsweise bei axialem Verpressen die Verdichtung von rieselfähigen Pulvern nahezu ohne Materialfluß. Die Füllgrade dieser Verbundwerkstoffe liegen typischerweise bei 90-98 Vol.-%. Die durch axiales Verpressen von Pulvern geformten Bauteile zeichnen sich im Vergleich zu spritzgegossenen deshalb durch wesentlich höhere Permeabilitäten und höhere magnetische Feldstärken im Sättigungsbereich aus. Axiales Verpressen von Pulvern aus Reineisen oder Eisen-Nickel mit Duroplastharzen, beispielsweise Epoxiden oder Phenolharzen hat jedoch den Nachteil, daß die bislang verwendeten thermoplastischen und duroplastischen Bindemittel bei erhöhter Temperatur in organischen Lösungsmitteln, beispielsweise Kraftstoffen für Verbrennungsmotoren, löslich sind, beziehungsweise stark aufquellen. Die entsprechenden Verbundbauteile ändern unter diesen Bedingungen ihre Abmessungen, verlieren ihre Festigkeit und versagen gänzlich. Es war bislang nicht möglich, entsprechende Verbundwerkstoffe mit hoher Temperatur- und Medienbeständigkeit, beispielsweise in organischen Lösungsmitteln, insbesondere Kraftstoffen für Verbrennungsmotoren, herzustellen. Ein weiteres Problem stellten bislang diejenigen Einsatzbedingungen dieser Bauteile dar, unter denen sowohl Thermoplaste

als auch Duroplaste kein geeignetes Bindemittel mehr darstellen, da sie sich sonst vollständig zersetzen würden.

[0004] In dem Artikel von H. P. Baldus und M. Jansen in:

"Angewandte Chemie 1997, 109, Seite 338-394", werden moderne Hochleistungskeramiken beschrieben, die aus molekularen Vorläufern durch Pyrolyse gebildet werden und teilweise ebenfalls magnetische Eigenschaften aufweisen. Diese Keramiken sind äußerst temperatur- und lösungsmittelstabil.

[0005] Aus WO 92/04127 ist ein Werkstoff mit einem Eisenpulver bekannt, wobei die Eisenpulverteilchen mit einem thermoplastischen Material beschichtet sind. Weiter ist diesem Werkstoff auch ein Bornitridpulver zugesetzt. Der beschriebene Werkstoff weist weichmagnetische Eigenschaften auf und ist formbar.

Vorteile der Erfindung

[0006] Durch die Beschichtung von oberflächenphosphatisiertem Reineisenpulver mit Polyphthalamid ist es möglich, in vorteilhafter Weise den Anteil des Weichmagnetpulvers im Verbundwerkstoff zu erhöhen, eine gute Temperatur- und Lösemittelbeständigkeit des daraus hergestellten Formteiles zu erzielen.

[0007] In dem Verfahren zur Herstellung des weichmagnetischen Verbundwerkstoffes, wird das Polyphthalamid als thermoplastische Verbindung aus einer Lösung auf die Pulverkörner aufgebracht. Dabei werden die Pulverkörner in die Polymerlösung eingebracht und das Lösungsmittel unter ständiger Bewegung des Pulvers bei erhöhter Temperatur oder im Vakuum abgezogen. Dadurch erhalten die Pulverkörner auf einfache Weise einen dünnen Polymerüberzug ("coating"), so dass komplizierte Verfahrensprozesse entfallen.

[0008] Vorteilhafte Ausgestaltungen und Weiterbildungen der Erfindung sind in den Unteransprüchen aufgeführt.

Ausführungsbeispiele

[0009] Im folgenden werden nachstehende Abkürzungen verwendet:

PPA: Polyphthalamid

NMP: N-Methylpyrrolidon

Kraftstoffbeständige Thermoplaste mit hoher Wärmeformbeständigkeit:

[0010] Thermoplaste mit hoher Wärmeformbeständigkeit weisen im Vergleich zu niedrigschmelzenden Thermoplasten einen wesentlich geringeren kalten Fluß auf. Bei Verpressen eines Gemisches aus Magnetpulver mit geringen Anteilen an Thermoplastpulvern entsteht somit nur bei duktilen Thermoplastpulvern eine ausreichende Isolationsschicht um die Magnetteilchen.

Darüberhinaus sind hochschmelzende Thermoplaste nicht als Pulver mit der notwendigen geringen Korngröße von < 5 Mikrometer im Handel erhältlich. Beide Schwierigkeiten werden durch die Erfindung dadurch umgegangen, daß das Magnetpulver vor dem axialen Verpressen mit einer Polymerlösung ummantelt wird. Falls die Löslichkeit des Polymers nur bei höherer Temperatur gegeben ist, muß das Lösen des Polymers und das Beschichten des Magnetpulvers zur Vermeidung einer thermooxidativen Schädigung des Thermoplastmaterials unter Schutzgas stattfinden.

Ausführungsbeispiel

[0011] 17,5 g eines handelsüblichen Granulates aus unverstärktem PPA (Amodel 1000 GR der Firma Amoco) wird grob aufgemahlen und in einem Sigma-Knetter mit 2500g ABM 100.32 (oberflächenphosphatiertes Reineisenpulver der Firma Höganäs) trocken gemischt. Nach Zusatz von NMP wird so lange Stickstoff durch die Knetkammer geleitet, bis der Sauerstoff verdrängt ist. Anschließend wird der Stickstoffstrom abgestellt und die Kammer auf 200°C (Siedepunkt NMP: 204°C) aufgeheizt. Nach einer Knetdauer von ca. 1 h, welche abhängig von der Größe des Thermoplastmaterials ist, hat sich das PPA in NMP vollständig gelöst. Daraufhin wird das Lösungsmittel durch erneutes Durchleiten von Schutzgas durch die Knetkammer abgezogen und in einem Kühler wieder kondensiert, der Knetter abgekühlt und das mit PPA beschichtete Magnetpulver entnommen. Letzte Lösungsmittelreste lassen sich durch Vakuumtrocknen entfernen.

[0012] An das kalte Verpressen des gecoateten Magnetpulvers schließt sich eine Wärmebehandlung des Preßlings unter Schutzgas über den Schmelzpunkt des Polymers hinaus (PPA, 320°C) an. Die erhaltenen Proben weisen eine Festigkeit von ca. 80 N/mm^2 und einen spezifischen elektrischen Widerstand von mindestens $400\text{ }\mu\text{Ohm}\cdot\text{m}$ auf. Eine bessere Entformbarkeit der verpreßten Bauteile aus der Formpresse erreicht man durch eine Oberflächenbehandlung des beschichteten Pulvers mit einem Gleitmittel. Das Gleitmittel wird in einen wesentlich geringeren Anteil als die Thermoplastbeschichtung zugegeben, um die Dichte der verpreßten Teile möglichst wenig zu verringern und es sollte derart flüchtig sein, daß es sich vor dem Aufschmelzen des Polymers bei der anschließenden Wärmebehandlung verflüchtigt und mit dem Polymer nicht chemisch reagiert. Beispiele für geeignete Gleitmittel sind beispielsweise Stanzöle, wie sie beim Stanzen von Blechen eingesetzt werden, oder Rapsölmethylester und Stearinsäureamid in Zusätzen von etwa 0.2% bezogen auf das Gewicht des Magnetpulvers.

Patentansprüche

1. Weichmagnetischer, formbarer Verbundwerkstoff,

mit einem weichmagnetischen Eigenschaften aufweisenden Pulver und einer nichtmagnetischen thermoplastischen Verbindung, wobei die Körner des Pulvers mit der thermoplastischen Verbindung beschichtet sind, **dadurch gekennzeichnet, dass** die thermoplastische Verbindung Polyphthalamid und das weichmagnetischen Eigenschaften aufweisende Pulver oberflächenphosphatiertes Reineisenpulver ist.

2. Verbundwerkstoff nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, dass** der Anteil der thermoplastischen Verbindung 0,2 bis 1 Gew.-%, vorzugsweise 0,3 bis 0,8 Gew.-%, bezogen auf die Gesamteinwaage, beträgt.

3. Verbundwerkstoff nach Anspruch 1 oder 2, **dadurch gekennzeichnet, dass** dem Verbundwerkstoff ein Gleitmittel zugesetzt ist.

4. Verfahren zur Herstellung eines Verbundwerkstoffes nach Anspruch 1, 2 oder 3, **dadurch gekennzeichnet, dass** das oberflächenphosphatierte Reineisenpulver mit dem Polyphthalamid unter Zugabe eines Lösungsmittels beschichtet wird, und dass das Lösungsmittel danach abgezogen wird.

5. Verfahren nach Anspruch 4, **dadurch gekennzeichnet, dass** das Lösungsmittel N-Methylpyrrolidon ist.

6. Verfahren nach Anspruch 4 oder 5, **dadurch gekennzeichnet, dass** das Zugeben und das Abziehen des Lösungsmittels unter Schutzgas oder Stickstoff erfolgt.

7. Verfahren nach Anspruch 5, **dadurch gekennzeichnet, dass** das Beschichten des Pulvers durch Kneten bei einer Temperatur von 200°C erfolgt.

8. Verfahren nach einem der Ansprüche 4 bis 7, **dadurch gekennzeichnet, dass** das beschichtete Pulver kalt verpresst wird.

9. Verfahren nach Anspruch 8, **dadurch gekennzeichnet, dass** der Formpreßling thermisch behandelt wird.

10. Verfahren nach einem der Ansprüche 4 bis 9, **dadurch gekennzeichnet, dass** nach dem Verpressen eine Wärmebehandlung des Presslings oberhalb des Schmelzpunktes des Polyphthalamids erfolgt.

11. Verfahren nach einem der Ansprüche 4 bis 10, **dadurch gekennzeichnet, dass** dem mit dem Polyphthalamid beschichteten Pulver vor dem Verpressen ein Gleitmittel zugegeben wird.

Claims

1. Soft-magnetic, formable composite material, including a powder which has soft-magnetic properties and a nonmagnetic thermoplastic compound, the grains of the powder being coated with the thermoplastic compound, **characterized in that** the thermoplastic compound is polyphthalamide, and the powder which has soft-magnetic properties is surface-phosphated pure iron powder.
2. Composite material according to Claim 1, **characterized in that** the thermoplastic compound content is from 0.2 to 1% by weight, preferably 0.3 to 0.8% by weight, based on the total charge weight.
3. Composite material according to Claim 1 or 2, **characterized in that** a lubricant is added to the composite material.
4. Process for producing a composite material according to Claim 1, 2 or 3, **characterized in that** the surface-phosphated pure iron powder is coated with the polyphthalamide with the addition of a solvent, and **in that** the solvent is then extracted.
5. Process according to Claim 4, **characterized in that** the solvent is N-methylpyrrolidone.
6. Process according to Claim 4 or 5, **characterized in that** the solvent is added and extracted under inert gas or nitrogen.
7. Process according to Claim 5, **characterized in that** the coating of the powder takes place by kneading at a temperature of 200°C.
8. Process according to one of Claims 4 to 7, **characterized in that** the coated powder is cold-pressed.
9. Process according to Claim 8, **characterized in that** the shaped and pressed body is heat-treated.
10. Process according to one of Claims 4 to 9, **characterized in that** the pressing operation is followed by a heat treatment of the pressed body at above the melting point of the polyphthalamide.
11. Process according to one of Claims 4 to 10, **characterized in that** a lubricant is added to the polyphthalamide-coated powder before the pressing operation.

Revendications

1. Matériau composite déformable à aimantation douce contenant une poudre ayant des propriétés

d'aimantation douce et une composition thermoplastique non magnétique, les grains de la poudre étant revêtus de la composition thermoplastique, **caractérisée en ce que**

la composition thermoplastique est un polyphthalamide et la poudre ayant des caractéristiques d'aimantation douce est une poudre de fer pur phosphatée en surface.

2. Matériau composite selon la revendication 1, **caractérisé en ce que** la teneur en composition thermoplastique représente entre 0,2 et 1 % en poids, de préférence entre 0,3 et 0,8 % en poids par rapport au poids total.

3. Matériau composite selon l'une quelconque des revendications 1 ou 2, **caractérisé en ce qu'** on ajoute un agent lubrifiant à la matière composite.

4. Procédé de fabrication du matériau composite selon l'une quelconque des revendications 1, 2 ou 3, **caractérisé en ce qu'** on revêt la poudre de fer pur phosphatée en surface avec un polyphthalamide avec adjonction d'un solvant et ensuite on extrait le solvant.

5. Procédé selon la revendication 4, **caractérisée en ce que** le solvant est de la N-méthylpyrrolidone.

6. Procédé selon l'une quelconque des revendications 4 ou 5, **caractérisée en ce que** l'addition ou l'extraction de solvant se fait sous gaz protecteur ou sous atmosphère d'azote.

7. Procédé selon la revendication 5, **caractérisé en ce que** le revêtement de la poudre se fait par malaxage à une température de 200°C.

8. Procédé selon l'une quelconque des revendications 4 à 7, **caractérisé en ce que** la poudre munie de son revêtement est pressée à froid.

9. Procédé selon la revendication 8, **caractérisé en ce qu'** on effectue un traitement thermique sur l'ébauche de moulage.

10. Procédé selon l'une quelconque des revendications 4 à 9, **caractérisé en ce qu'** après compression on effectue un traitement thermique de l'ébauche de compression au-delà du

point de fusion du polyphthalamide.

11. Procédé selon l'une quelconque des revendications 4 à 10,
caractérisé en ce qu'
on ajoute un agent lubrifiant à la poudre revêtue de
polyphthalamide avant sa compression.

5

10

15

20

25

30

35

40

45

50

55