



PCT

(43) 国際公開日
2007年2月15日 (15.02.2007)(10) 国際公開番号
WO 2007/018123 A1

- (51) 国際特許分類:
H01F 1/08 (2006.01) H01F 1/053 (2006.01)
B22F 3/00 (2006.01) H01F 41/02 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2006/315409
- (22) 国際出願日: 2006年8月3日 (03.08.2006)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願2005-229555 2005年8月8日 (08.08.2005) JP
特願2005-321452 2005年11月4日 (04.11.2005) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社NEOMAX (NEOMAX CO., LTD.) [JP/JP]; 〒5410041 大阪府大阪市中央区北浜四丁目7番19号 Osaka (JP). 日本科学冶金株式会社 (NIPPON KAGAKU YAKIN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒5728558 大阪府寝屋川市大成町12番32号 Osaka (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 金清 裕和

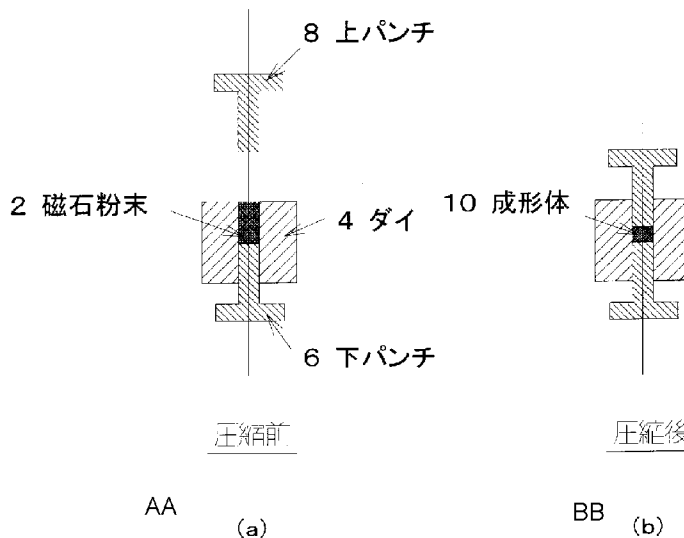
(KANEKIYO, Hirokazu) [JP/JP]; 〒6180013 大阪府三島郡島本町江川2-15-17 株式会社NEOMAX山崎製作所内 Osaka (JP). 三次 敏夫 (MIYOSHI, Toshio) [JP/JP]; 〒6180013 大阪府三島郡島本町江川2-15-17 株式会社NEOMAX山崎製作所内 Osaka (JP). 戸次 克典 (BEKKI, Katsunori) [JP/JP]; 〒6180013 大阪府三島郡島本町江川2-15-17 株式会社NEOMAX山崎製作所内 Osaka (JP). 上本 育男 (UEMOTO, Ikuo) [JP/JP]; 〒5728558 大阪府寝屋川市大成町12-32 日本科学冶金株式会社内 Osaka (JP). 石川 和男 (ISHIKAWA, Kazuo) [JP/JP]; 〒5190212 三重県亀山市能褒野町字大野2067-1 日本科学冶金株式会社三重工場内 Mie (JP).

- (74) 代理人: 奥田 誠司 (OKUDA, Seiji); 〒5410041 大阪府大阪市中央区北浜一丁目8番16号 大阪証券取引所ビル10階 奥田国際特許事務所 Osaka (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG,

[続葉有]

(54) Title: REAR EARTH ALLOY BINDERLESS MAGNET AND METHOD FOR MANUFACTURE THEREOF

(54) 発明の名称: 希土類合金系バインダレス磁石およびその製造方法



(57) Abstract: A method for manufacture of a rear earth alloy binderless magnet comprising the step (A) in which a rapidly quenched rear earth alloy magnet powder (2) is provided, and the step (B) in which the magnet powder (2) is molded by compression under cooling without using a resin binder to form a compression-molded material (10) having the content of the magnet powder (2) of 70% to 95% (inclusive) by volume relative to the total volume of the molded material (10).

(57) 要約: 本発明による希土類合金系バインダレス磁石の製造方法は、希土類系急冷合金磁石粉末2を用意する工程(A)と、樹脂バインダを用いずに希土類系急冷合金磁石粉末2を冷間にて圧縮して成形することにより、全体に占める希土類系急冷合金磁石粉末2の体積比率が70%以上95%以下の圧縮成形体10を形成する工程(B)とを含む。

- 2 MAGNET POWDER
4 DIE
6 LOWER PUNCH
8 UPPER PUNCH
10 MOLDED MATERIAL
AA BEFORE COMPRESSION
BB AFTER COMPRESSION



BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY,

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各*PCT*ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

希土類合金系バインダレス磁石およびその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、希土類合金系バインダレス磁石およびその製造方法に関し、希土類急冷合金磁石粉末を超高圧下で圧縮成形することによって作製された磁石に関する。

背景技術

[0002] 希土類系急冷合金磁石の粉末に樹脂からなるバインダを加えたボンド磁石は、寸法精度および形状の自由度に優れ、電子機器や電装部品などの用途に広く使用されている。しかしながら、このようなボンド磁石の耐熱温度は、使用される磁石粉末の磁気的な耐熱温度に加えて、磁石粉末の結合に使用される樹脂バインダの耐熱温度に制約される。例えば熱硬化性エポキシ樹脂を使用する圧縮ボンド磁石の場合、熱硬化性エポキシ樹脂の耐熱温度が低いため、磁石の常用が可能となる上限温度は最高でも100℃程度と低い。また、ボンド磁石は、絶縁性を有する樹脂バインダを含有するため、電気めっき処理や金属蒸着被膜処理などの表面処理を行うことも困難である。

[0003] 更に、通常のボンド磁石では、樹脂バインダを含むため、磁石粉末の体積比率を83%超に高めることができない。樹脂バインダは、磁石特性の発現に寄与しないため、焼結磁石に比べてボンド磁石の磁気特性は低くならざるを得ない。

[0004] なお、磁石粉末の体積比率が比較的高い圧縮ボンド磁石でも磁石粉末の体積比率は83%程度であり、その最大エネルギー積は $96\text{kJ}/\text{m}^3$ (12MGOe)程度が限界である。

[0005] 近年、小型のスピンドルモータやステッピングモータや各種の小型センサには、例えば直径が10mm以下の超小型リング状磁石が用いられる。このような用途では、優れた成形性を有し、かつ磁気特性を向上させた永久磁石の実現が強く望まれているが、ボンド磁石の磁気特性では不十分になりつつある。

[0006] ボンド磁石に比べて磁石粉末の体積比率が高い磁石として、フルデンス磁石が知られている。特許文献1は、ナノコンポジット急冷合金から作製したフルデンス磁石を

開示している。フルデンス磁石は、樹脂バインダを用いずに急冷合金磁石粉末を圧縮し、高密度化することにより製造される。

[0007] 特許文献2は、ナノコンポジット磁石粉末に対して550℃以上720℃以下の温度で20MPa以上80MPa以下の圧力を印加し、圧縮成形することを開示している。こうして作製されたフルデンス磁石の密度は、磁石真密度の92%以上を達成する。

[0008] 特許文献3は、包み材によって囲まれた磁粉純度99%のバインダレス磁石を開示し、特許文献4は、ナノ結晶磁性粉末から製造される圧粉磁心を開示している。

特許文献1:特開2004-14906号公報

特許文献2:特開2000-348919号公報

特許文献3:特開平10-270236号公報

特許文献4:特開2004-349585号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0009] 特許文献1に開示されているようなフルデンス磁石は、磁石粉末の体積比率が高いため、ボンド磁石より高特性が期待されるが、ホットプレス等の熱間プレス技術を用いるため、プレスサイクルが長く、量産性に劣る。その結果、磁石の製造コストが大きく上昇するため、実用化が難しい。

[0010] 特許文献2に開示されている磁石は、放電プラズマ焼結法などにより、磁石粉末を高温に加熱しながら圧縮して作製される。この技術も、ホットプレスと同様にプレスサイクルが長く、量産性に劣る。

[0011] 特許文献3は、具体的な製造方法を開示しておらず、どのようにして高い磁粉体積比率が実現されるか不明である。また、特許文献4に開示される圧粉磁心では、磁石粉末粒子同士がガラスによって結合されている。ガラスの体積比率は、従来のボンド磁石における樹脂バインダの体積比率と同程度であると考えられる。

[0012] このように樹脂バインダを用いることなく磁石粉末を成形する従来技術では、量産性が低いか、あるいはボンド磁石と同程度の磁粉体積比率しか実現できない。

[0013] 一方、実質的に磁粉が隙間無く結合した焼結磁石を製造するためには、1000～1200℃という高温の焼結工程が不可欠である。焼結過程では液相が形成され、希土

類リッチ相を含む粒界相が生じる。粒界相は、保磁力発現のために重要な働きを行うが、グリーン状態の粉末成形体は、焼結工程で大きく収縮するため、プレス工程後における形状変化が大きく、寸法精度や形状形成の自由度の点でボンド磁石に大きく劣る。

- [0014] 本発明は、上記問題を解決するためになされたものであり、その主たる目的は、寸法精度や形状自由度に優れ、かつ、ボンド磁石よりも耐熱性や磁気特性に優れた磁石を提供することにある。

課題を解決するための手段

- [0015] 本発明の希土類合金系バインダレス磁石は、希土類系急冷合金磁石粉末の粒子が樹脂バインダを介さずに結合した磁石であって、全体に占める前記希土類系急冷合金磁石粉末の体積比率が70%以上95%以下である。
- [0016] 好ましい実施形態において、前記急冷合金磁石粉末の粒子は、前記急冷合金磁石粉末粒子からの析出物によって結合している。
- [0017] 好ましい実施形態において、前記急冷合金磁石粉末の粒子は、ホウ素を含有する鉄基希土類合金から形成されており、前記析出物は、鉄、希土類、およびホウ素からなる群から選択された少なくとも1種類の元素から構成されている。
- [0018] 好ましい実施形態において、前記急冷合金磁石粉末の粒子にはクラックが形成されており、前記析出物の少なくとも一部は前記クラック内に存在している。
- [0019] 好ましい実施形態において、全体に占める前記希土類系急冷合金磁石粉末の体積比率が70%超92%未満である。
- [0020] 好ましい実施形態において、前記希土類系急冷合金磁石粉末の粒子は固相焼結によって相互に結合している。
- [0021] 好ましい実施形態において、前記希土類系急冷合金磁石粉末の粒子は、1種以上の強磁性結晶相を含有し、その平均結晶粒径が10nm以上300nm以下の範囲にある。
- [0022] 好ましい実施形態において、前記希土類系急冷合金磁石粉末の粒子は、硬磁性相および軟磁性相を含有するナノコンポジット磁石組織を有している。
- [0023] 好ましい実施形態において、密度は $5.5\text{g}/\text{cm}^3 \sim 7.0\text{g}/\text{cm}^3$ である。

- [0024] 好ましい実施形態において、組成式 $T_{100-x-y-z} Q_x R_y M_z$ (TはFe、または、CoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素とFeとを含む遷移金属元素、QはBおよびCからなる群から選択された少なくとも1種の元素、RはLaおよびCeを実質的に含まない少なくとも1種の希土類元素、Mは、Ti、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、およびPbからなる群から選択された少なくとも1種の金属元素)で表現され、組成比率x、y、およびzが、それぞれ、 $10 < x \leq 35$ 原子%、 $2 \leq y \leq 10$ 原子%、および $0 \leq z \leq 10$ 原子%を満足する組成を有している。
- [0025] 好ましい実施形態において、組成式 $T_{100-x-y-z} Q_x R_y M_z$ (TはFe、または、CoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素とFeとを含む遷移金属元素、QはBおよびCからなる群から選択された少なくとも1種の元素、RはLaおよびCeを実質的に含まない少なくとも1種の希土類元素、Mは、Ti、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、およびPbからなる群から選択された少なくとも1種の金属元素)で表現され、組成比率x、y、およびzが、それぞれ、 $4 < x \leq 10$ 原子%、 $6 \leq y < 12$ 原子%、および $0 \leq z \leq 10$ 原子%を満足する組成を有している。
- [0026] 本発明による希土類合金系バインダレス磁石の製造方法は、希土類系急冷合金磁石粉末を用意する工程(A)と、樹脂バインダを用いずに前記希土類系急冷合金磁石粉末を冷間にて圧縮して成形することにより、全体に占める前記希土類系急冷合金磁石粉末の体積比率が70%以上95%以下の圧縮成形体を形成する工程(B)と、前記工程(B)の後に350℃以上800℃以下の温度で前記圧縮成形体に対して熱処理を施す工程(C)とを含む。
- [0027] 好ましい実施形態において、前記工程(B)では、500MPa以上2500MPa以下の圧力で前記希土類系急冷磁石用急冷合金磁石粉末を圧縮する。
- [0028] 好ましい実施形態において、前記工程(C)の熱処理は、圧力が 1×10^{-2} Pa以下の不活性ガス雰囲気中で実行する。
- [0029] 好ましい実施形態において、前記工程(C)の熱処理は、露点が-40℃以下の不活性ガス雰囲気中で実行する。
- [0030] 本発明の磁気回路部品は、上記いずれかの希土類合金系バインダレス磁石と、軟磁性材料粉末が樹脂バインダを介さずに結合した無樹脂圧粉磁心とを備え、前記バ

インダレス磁石と前記無樹脂圧粉磁心とが一体化されている。

[0031] 好ましい実施形態において、前記無樹脂圧粉磁心における軟磁性粉末の粒子は焼結によって相互に結合している。

[0032] 好ましい実施形態において、前記バインダレス磁石と前記無樹脂圧粉磁心とは、焼結によって相互に結合している。

[0033] 本発明による磁気回路部品の製造方法は、上記磁気回路部品の製造方法であって、希土類系急冷合金粉末および軟磁性材料粉末を用意する工程(A)と、前記希土類系急冷合金粉末および前記軟磁性材料粉末を冷間にて500MPa以上2500MPa以下の圧力で圧縮して一体化する工程(B)と、前記一体化圧縮成形体に対して350℃以上800℃以下の温度で熱処理を施す工程(C)とを含む。

[0034] 好ましい実施形態において、前記工程(A)は、前記希土類系急冷合金粉末および前記軟磁性材料粉末の少なくとも一方の仮成形体を形成する工程を含み、前記工程(B)では、前記仮成形体を少なくとも一部に含む前記希土類系急冷合金粉末および前記軟磁性材料粉末を圧縮する。

[0035] なお、本願明細書において、「圧縮成形体」とは、希土類系急冷合金磁石粉末および／または軟磁性粉末を冷間にて圧縮して成形した圧粉体のことを意味する。また、「バインダレス磁石」および「無樹脂圧粉磁心」は、それぞれ、磁石粉末および軟磁性粉末の圧縮成形体に熱処理を施すことにより、粉末粒子が樹脂バインダを介さずに結合した成形体を指す。更に、「仮成形体」とは、その密度にかかわらず、冷間にて圧縮成形を行う前の粉末の集合体を意味することとし、冷間における圧縮成形を行う前の粉末は、仮成形体の態様を含む場合がある。

発明の効果

[0036] 本発明によれば、樹脂バインダを用いないため、磁石の耐熱温度が樹脂バインダの耐熱温度に制限されず、優れた耐熱性を発揮することができる。また、磁石粉末を樹脂バインダと混合して混練する工程が不要となるため、製造コストを低減することも可能になる。

[0037] 更に、本発明によれば、磁石粉末の体積比率がボンド磁石よりも高いため、ボンド磁石に比べて磁石特性が向上する。従って、ボンド磁石では十分な磁石特性を得る

ことが困難であった直径4mm以下の小型磁石でも、本発明によれば優れた磁石特性を発揮することができる。

図面の簡単な説明

[0038] [図1](a)および(b)は、本発明によるバインダレス磁石の製造に好適に用いられる圧縮成形装置の構成例を示す図である。

[図2]本発明の実施形態で好適に使用される超高压粉末プレス装置の構成例を示す図である。

[図3](a)から(e)は、本発明による磁気回路部品の製造方法の実施形態を示す工程断面図である。

[図4]本発明の実施例4における粉末粒子内部を示す断面SEM写真である。

[図5]本発明の実施例4における粉末粒子間を示す断面SEM写真である。

符号の説明

- [0039]
- 2 磁石粉末(希土類系急冷合金磁石粉末)
 - 4 ダイ
 - 6 下パンチ
 - 8 上パンチ
 - 10 成形体(圧縮成形体)
 - 14 固定ダイプレート
 - 16 下部ラム
 - 18 上部ラム
 - 28 上パンチ外径補強ガイド
 - 30a リニアガイドレール
 - 30b リニアガイドレール
 - 32 フィーダカップ
 - 42a 下パンチ
 - 42b 下パンチ
 - 44a 上パンチ
 - 44b 上パンチ

発明を実施するための最良の形態

- [0040] 本発明の希土類合金系バインダレス磁石は、希土類系急冷合金磁石粉末の粒子が樹脂バインダを介さずに結合した磁石であって、全体に占める希土類系急冷合金磁石粉末の体積比率が70%以上95%以下である。この希土類系急冷合金磁石粉末の粒子は、通常の高温焼結やホットプレスによってではなく、超高压下での冷間プレス(冷間圧縮)によって結合している。なお、本発明における冷間プレスとは、プレス装置のダイやパンチに熱を加えない状態で圧縮成形を行うことを意味し、具体的には、熱間成形とはなり得ない温度(例えば500℃以下、典型的には100℃以下)で粉末を圧縮成形することを意味するものとする。
- [0041] このように樹脂バインダを用いることなく希土類系急冷合金磁石粉末粒子を強固に結合し、バルク状に成形するためには、従来、前述したようにホットプレスなどの熱間成形や高温焼結が必要であると考えられてきた。特にNd-Fe-B系急冷磁石のように硬度が極めて高い粉末粒子を対象とする場合は、圧縮成形時に800℃を超える高温に加熱することにより、液相を形成する焼結過程を進行させながら成形することが不可欠であるとの技術常識が存在した。
- [0042] しかしながら、本発明者らは、このような技術常識にとらわれることなく、希土類系急冷合金磁石粉末に対する冷間での圧縮成形を種々試みた結果、圧縮に用いる金型の材質を適切に選択した上で、加工精度を高めれば、硬度の高い希土類系急冷合金磁石粉末であっても、500～2500MPaの超高压下で冷間圧縮成形を行うことが可能であり、これにより、その後、350℃以上800℃以下の低温で焼結を進行させることができ、バインダレス磁石を形成できること、しかも形成したバインダレス磁石は優れた磁石特性を発揮することを見出して、本発明を完成した。この温度範囲は、従来のセラミックスなどの粉末成形体を固相焼結する場合に必要な温度(典型的には1000℃以上の高温)や、従来の希土類系焼結磁石を液相焼結する場合に必要な温度に比べて格段に低い。このような低温焼結を行うことにより、結晶粒の粗大化を抑制しつつ、バインダレス磁石を形成することができる。
- [0043] 本発明者らは、このように従来成しえなかった超高压下の冷間圧縮成形により従来成しえなかった低温での焼結を進行させることができるようになった理由を調べたとこ

ろ、バインダレス磁石を形成する急冷合金磁石粉末の個々の粒子間に、急冷合金磁石粉末に由来する成分が析出しており、この析出物により、各粒子が相互に結合していることを見出した。また、急冷合金磁石粉末の粒子内には超高压下の冷間圧縮成形によってクラックが発生し、そのクラックも同様の析出物により再結合していることが観察された。

[0044] 本発明では、急冷合金磁石粉末粒子の表面および内部が超高压下の冷間圧縮により割れ、それによって急冷合金磁石粉末粒子の表面および内部に非常に活性な新生破面が現れる。そのままでは、機械的強度は不十分なものとなるが、本発明では、超高压圧縮を行った後に比較的低い温度で熱処理を行うことにより、急冷合金磁石粉末に由来する成分を新生破面から析出させる。こうして形成された析出物が粒子間にあって結合に大きく寄与しているものと推定される。このような析出物の成分は、急冷合金磁石の組成によって異なると考えられるが、発明者らの実験結果によると、少なくともFe、硼素、希土類元素の少なくとも1種類を含んでいる。

[0045] このような超高压圧縮および熱処理によって結合した粒子の間には、微小な空隙が残存しており、そのような空隙の体積比率は、成形された磁石全体の体積に対して5%以上30%以下の範囲にある。圧縮成形後に、このような空隙の一部が封孔などを目的として樹脂や低融点金属(例えば、亜鉛、スズ、Al-Mn)などによって埋められても良い。ただし、そのような樹脂や低融点金属の量は、磁石体全体の15wt%未満に抑えられることが好ましく、10wt%未満にすることがより好ましく、8wt%未満にすることが更に好ましい。このように微量の樹脂や低融点金属は、主たるバインダとしては機能しない。本願発明の磁石体を形成する急冷合金磁石粉末の粒子間は、主として上記析出物によって結合される。

[0046] 高温焼結によって作製された従来の希土類焼結磁石では、主相として機能する結晶粒(グレイン)は、ハード磁性を有するNd-Fe-B系化合物から形成されている。一方、結晶粒の間には、非磁性材料からなる粒界相が存在しているため、希土類焼結磁石中に空隙はほとんど存在していない。この希土類焼結磁石では、主相結晶粒が粒界相によって仕切られた核発生型の磁気特性発現機構を有することにより、高い保磁力を発現する上で極めて重要であることが知られている。

- [0047] これに対して、本発明の希土類合金系バインダレス磁石では、相互に結合した個々の粉末粒子の間には粒界相として機能する合金は存在していない。それでも高い保磁力を発現することができる理由は、バインダレス磁石に用いられる磁石粉末を構成する微細金属組織の平均結晶粒径が「単磁区結晶粒径」以下の大きさに調整されているからである。平均結晶粒径が単磁区結晶粒径以下であれば、各結晶粒は単磁区構造となりNd-Fe-B系希土類焼結磁石に見られるような多磁区構造を前提とする核発生型の固有保磁力発現ではなく、単磁区の各結晶粒が交換相互作用により結びつき固有保磁力を発現する微細結晶型の磁気特性発現機構を有することになり、従来の希土類焼結磁石のように液相焼結温度以上の高温で焼結工程を行わなくとも、液相焼結によって形成される粒界相が不要であるため、高い固有保磁力と優れた減磁曲線の角形性を実現することができる。
- [0048] 本発明では、平均結晶粒径がナノメートルオーダーであるナノコンポジット磁石の粉末や、結晶化熱処理によってナノメートルオーダーの微細結晶組織が形成される非晶質急冷合金磁石の粉末を好適に用いることができる。
- [0049] MQI社から販売されている磁石粉末（いわゆるMQ粉）も本発明の磁石粉末として採用できるが、これらは希土類リッチ相を含有しているため、焼結時に希土類の酸化物が形成し、磁石粉末同士が結合しにくい可能性がある。このため、これらの磁石粉末を焼結する場合は、焼結工程を 10^{-2} Pa以下の真空中で実行することが望ましい。
- [0050] これに対し、硬磁性相および軟磁性相を含むナノコンポジット磁石であれば、希土類リッチ相が存在しないことから、冷間、超高压下で圧縮成形した後、不活性雰囲気中でも希土類の酸化を進行させることなく熱処理工程を行うことができる。圧縮成形後の熱処理は不可欠ではないが、このような熱処理を行うことにより、冷間、超高压下で圧縮成形された磁石体の機械的強度を更に高めることができる。このため、本発明の希土類バインダレス磁石には、希土類含有量の少ないナノコンポジット磁石粉末を用いることが好ましい。
- [0051] このようなナノコンポジット磁石粉末としては、組成式が $T_{100-x-y-z} Q_x R_y M_z$ で表現される希土類系ナノコンポジット磁石粉末を好適に用いることができる。ここで、TはFe、または、CoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素とFeとを含む遷移金属

元素、QはBおよびCからなる群から選択された少なくとも1種の元素、RはLaおよびCeを実質的に含まない少なくとも1種の希土類元素、Mは、Ti、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、およびPbからなる群から選択された少なくとも1種の金属元素である。組成比率x、y、およびzが、それぞれ、 $10 < x \leq 35$ 原子%、 $2 \leq y \leq 10$ 原子%、および $0 \leq z \leq 10$ 原子%を満足する。

[0052] このような組成のナノコンポジット磁石粉末では、磁石を構成する硬磁性相が $R_2Fe_{14}B$ 型化合物の結晶粒から形成され、軟磁性相が鉄基硼化物または $\alpha-Fe$ の結晶粒から形成される。このコンポジット磁石粉末は、上記組成を有する合金の溶湯を液体急冷法によって急冷凝固させることによって作製される。

[0053] また本発明は、主たる軟磁性相として $\alpha-Fe$ 相を含有するナノコンポジット磁石や粒界に存在する希土類リッチ相が少ない $R_2Fe_{14}B$ 単相系磁石を用いることもできる。このようなナノコンポジット磁石としては、組成式が $T_{100-x-y-z}Q_xR_yM_z$ で表現される希土類系ナノコンポジット磁石粉末を好適に用いることができる。ここでTはFe、または、CoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素とFeとを含む遷移金属元素、QはBおよびCからなる群から選択された少なくとも1種の元素、RはLaおよびCeを実質的に含まない少なくとも1種の希土類元素、Mは、Ti、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、およびPbからなる群から選択された少なくとも1種の金属元素)で表現され、組成比率x、y、およびzが、それぞれ、 $4 < x \leq 10$ 原子%、 $6 \leq y < 12$ 原子%、および $0 \leq z \leq 10$ 原子%を満足する。

[0054] 本発明によるバインダレス磁石では、磁石粉末の体積比率が全体の70%以上95%以下の範囲内にあるが、従来のボンド磁石よりも優れた永久磁石特性を発揮させるには、この体積比率の下限を75%以上に設定することが好ましい。磁石粉末の体積比率が上昇するほど磁石特性が向上するため、この体積比率の下限は85%以上に設定することが、より好ましい。しかし、バインダレス磁石の強度や、金型の耐久性、量産性を考慮すれば磁石粉末の体積比率の上限は92%が好ましく、90%が更に好ましい。

[0055] $R_2Fe_{14}B$ 型化合物を主相として含有する磁石粉末を用いる場合、最終的に得られるバインダレス磁石の密度は $5.5g/cm^3$ 以上 $7.0g/cm^3$ 以下の範囲にある。バイ

ンダレス磁石の密度の好ましい範囲は、 $6.3\text{g}/\text{cm}^3$ 以上 $6.7\text{g}/\text{cm}^3$ 以下であり、更に好ましい範囲は、 $6.5\text{g}/\text{cm}^3$ 以上 $6.7\text{g}/\text{cm}^3$ 以下である。従来の樹脂バイндаを用いた圧縮ボンド磁石では、磁石体全体の密度は、 $5.5\text{g}/\text{cm}^3\sim 6.2\text{g}/\text{cm}^3$ 程度の範囲にある。両者を比較するとわかるように、本発明のバイндаレス磁石の方が相対的に高い密度が得られ、その結果、磁気特性も優れたものとなる。

[0056] バイндаレス磁石の密度は、用いる磁石粉末の粒子形状の影響を受けやすいことが知られている。粉末粒子の形状が等軸形状に近く、粗い粒子の隙間に細かい粒子が詰まった状態が理想的な充填状態であり、その状態で高い密度を達成することができると考えられている。従って、粒径の大きな粒子と相対的に粒径の小さな粒子とが多く存在する双峰性の粒度分布が好ましいが、このような粒度分布を有する粉末を作製することは難しい。また、粒径の小さな粒子は、粉碎工程中に酸化されて磁気特性の劣化を引き起こしやすいため、充填密度を高める目的で、微細な粉末粒子の比率を高めると、最終的な磁石特性が劣化する可能性がある。

[0057] 一方、本発明のバイндаレス磁石は、超高压下の圧縮成形によって作製されるため、用いる磁石粉末の粒度分布が双峰性を有する理想的なものからずれていてもよい。本発明では、圧縮成形時に磁石粉末が割れ、割れた細かい磁石粉末が粒子間の空隙を埋めて成形密度を高める可能性がある。このため、本発明では、割れやすい磁石粉末を用いることが有効である。磁石粉末の粒子は、等軸的な形状を有する場合よりも、扁平な形状を有している場合の方が割れやすい。本発明では、扁平な粒子からなる磁石粉末を用いることが、バイндаレス磁石の密度を高める上で好ましい。具体的には、個々の粉末粒子のアスペクト比（磁石粉末の短軸方向のサイズ／磁石粉末の長軸方向のサイズ）が0.3以下となる磁石粉末を用いることが好ましい。扁平形状の粉末粒子は、その厚さ方向が圧縮方向に揃いやすくなるため、粒子間に空隙ができにくく、充填密度が向上しやすいという利点もある。

[0058] 本発明のバイндаレス磁石では、使用される磁石粉末を構成する微細金属組織の平均結晶粒径が10nm以上300nm以下の範囲にあることが好ましい。平均結晶粒径が、この範囲の加減よりも小さいと、固有保磁力が低下し、この範囲の上限よりも大きいと、各結晶粒間に働く交換相互作用が低下する。ただし、上記の平均結晶粒径

が単磁区結晶粒径を超えていても、平均結晶粒径が $5\mu\text{m}$ 以下であれば、特定の使用環境下(磁石の動作点が高い場合)で使用する事が可能である。

[0059] (製造方法)

以下、本発明による希土類合金系バインダレス磁石の製造方法の好ましい実施形態を説明する。

[0060] まず、本発明のバインダレス磁石の製造に使用する希土類系急冷合金磁石粉末を用意する。この粉末は、上述した組成を有する合金の溶湯をメルトスピニング法やストリップキャスト法などのロール急冷法によって急冷した後、粉砕工程を経て製造される。このようなロール急冷法を用いる代わりに、合金の溶湯をアトマイズ法によって急冷しても製造することができる。希土類系急冷合金磁石粉末の平均粒径は $300\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。粉末の平均粒径は $30\mu\text{m}$ 以上 $250\mu\text{m}$ 以下の範囲にあることがより好ましく、 $50\mu\text{m}$ 以上 $200\mu\text{m}$ 以下の範囲にあることが更に好ましい。また、圧縮成形後における粒子間の隙間空間を減少させ、磁石体の密度を高めるという観点からは、粒度分布が2つのピークを有することが好ましい。

[0061] 次に、こうして得られた希土類系急冷合金磁石粉末を冷間、超高压で圧縮して成形する。本発明の好ましい実施形態では、 500°C 以下、典型的には 100°C 以下の温度環境で冷間圧縮成形を実行するため、圧縮成形中に粉末粒子の結晶化は進行しない。本発明では、圧縮成形前における粉末粒子は、全体がほぼ結晶化された状態にあってもよいし、また、非晶質部分を多く有していても良い。粉末粒子が非晶質相を多く含む場合は、超高压成形の後に、結晶化のための熱処理を行うことが好ましいが、超高压成形の後に焼結工程で、結晶化のための熱処理を兼ねてもよい。

[0062] 超高压下での冷間圧縮成形時における金型の損傷を低減するためには、希土類系急冷合金磁石粉末に対して成形前にステアリン酸カルシウムなどの滑材などを添加・混合しておくことが好ましい。

[0063] 図1は、本発明の実施に好適に使用することができる超高压粉末プレス装置の概略構成を示す断面図である。図1の装置は、キャビティ内に充填された粉末材料2を高い圧力で一軸プレスすることのできる装置であって、キャビティの側面を規定する内面が形成されたダイ4と、キャビティの底面を規定する下側加圧面を有する下パン

チ6と、下側加圧面と対向する上側加圧面を有する上パンチ8とを備えている。ダイ4、下パンチ6および／または上パンチ8は、不図示の駆動装置によって上下移動する。

[0064] 図1(a)に示す状態では、キャビティの上方は開放されており、キャビティの内部に磁石粉末2が充填される。この後、図1(b)に示すように、上パンチ8が下降するか、あるいは、ダイ4および下パンチ6が相対的に上昇することにより、キャビティ内の磁石粉末2が圧縮成形される。

[0065] ダイ4および上下パンチ6、8は、例えば超硬合金や粉末ハイスから形成されている。ダイ4および上下パンチ6、8は、上記のものに限定されず、SKS、SKD、SKHなどの高強度材料を使用することもできる。

[0066] これらの高強度材料は、硬い反面、脆い性質を有しているため、加圧方向が僅かでもずれると、容易に破損する。したがって、本発明で実施するような超高压成形を可能にするには、ダイ4および上下パンチ6、8の中心軸のずれおよび傾きの精度を0.01mm以下にする必要がある。この軸ずれや軸傾きが大きいと、超高压印加時に上下パンチ6、8が座屈し、破損してしまう。この問題は、圧縮成形体のサイズが小さくなるほど、上下パンチ6、8の軸径が小さくなるため、顕著に発生する。

[0067] 本実施形態で使用する超高压粉末プレス装置は、上下パンチ6、8の破損を防止し、従来は困難であったような超高压プレスを安定して実施するため、図2に示す構成を備えることが望ましい。以下、図2に示す高压粉末プレス装置の構成を説明する。

[0068] 図2の装置では、固定ダイプレート14がダイ4を固定し、このダイ4の貫通孔に下パンチ6が挿入される。下パンチ6は下部ラム16によって上下するが、上パンチ8は、上パンチ外径補強ガイド28によって補強されており、上部ラム18によって上下動する。上部ラム18が降下し、外径補強ガイド28の下端がダイ4の上面に接触した後は、上パンチ補強ガイド28の降下は停止するが、上パンチ8は更に降下し、ダイ4の貫通孔の内部に侵入する。上パンチ外径補強ガイド28を設けることにより、超高压下における上パンチ8の耐久性を向上させることができる。

[0069] このプレス装置は、固定ダイプレート14の中心を基準軸として対称に配置された一対のリニアガイドレール30a、30bを備えている。上部ラム18および下部ラム16は、リ

ニアガイドレール30a、30bによって連通し、上下に摺動する。また、図2に示すプレス装置では、直進(強振)式フィーダを採用しているので、フィーダカップ32の厚さHを薄くすることができる。このことにより、上パンチ8が上方に退避しているときの上パンチ8とダイ4との間隙を狭くすることができる。この間隙が狭いほど、上パンチ8の上下移動量が低減するため、上下動に伴って生じやすい軸ずれや軸傾きを低減できる。

[0070] 従来の粉末プレス装置では、上部ラムの上下摺動軸と下部ラムの上下摺動軸とが分離していたため、軸ずれや軸の傾きが生じやすく、その精度は0.04mm程度であった。これに対して、図2の構成を備える超高压粉末プレス装置では、上部ラム18および下部ラム16の上下動がリニアガイドレール30a、30bによって規制されるため、軸ずれおよび軸傾きの精度を0.01mm以下に抑えることができる。

[0071] 本発明者の実験によると、磁石粉末2に対する圧縮成形は、500MPa以上2500MPa以下の圧力を印加して行うことが好ましい。バインダレス磁石における磁石粉末の体積比率を大きくし、磁気特性を向上させるという観点からは圧力を1300MPa以上、さらには1500MPa以上、さらには1700MPa以上とすることが好ましく、また、金型の耐久性および量産性を考慮した場合は、圧力を2000MPa以下に設定することが望ましい。圧力が上記の下限值よりも低い場合は、粉末粒子同士の結合力が低下するため、成形後の機械的強度が不十分なものとなり、ハンドリング時に磁石の割れや欠けなどが発生し得る。一方、圧縮成形時の圧力が上記の上限値を超えて大きくなると、金型への負荷が大きくなりすぎるため、量産技術として採用することが難しくなる。

[0072] こうして得られた圧縮成形体10に対しては、成形後に熱処理を施す。この熱処理により、磁石粉末粒子の表面および内部のクラック部分に、急冷合金磁石粉末を由来とする成分が析出し、この析出物により各々の粒子が結合することにより、圧縮成形体はバインダレス磁石となる。熱処理温度が350℃よりも低くなると、急冷合金磁石粉末を由来とする成分が析出し、この析出物により各々の粒子が結合する効果が得られず、逆に800℃を超える高温になると、バインダレス磁石を形成する磁石粉末内の結晶粒が粗大化して磁気特性の低下を招く可能性がある。このため、熱処理温度

は350℃以上800℃以下の範囲内に設定することが好ましく、400℃以上600℃以下の範囲に設定することが更に好ましい。熱処理時間は、熱処理温度にも依存するが、5分以上6時間以下の範囲内に設定され得る。

[0073] なお、圧縮成形時点で磁石粉末の粒子が非晶質相を有している場合、上記の熱処理により結晶化を進行させることができる。結晶化による発熱を利用して、低温でも焼結を進行させることも可能である。

[0074] 熱処理中に圧縮成形体10が酸化することを抑制するためには、上記熱処理を不活性ガス雰囲気中で行うことが好ましい。ただし、不活性ガス中に微量でも酸素や水蒸気が含まれていると、圧縮成形体の酸化が避けられないため、酸素や水蒸気の分圧を可能な限り低減することが好ましい。このため、熱処理雰囲気ガスの圧力は、 1×10^{-2} Pa以下に低下させることが望ましく、露点が-40℃以下のドライガスを用いることが更に望ましい。

[0075] 上述の熱処理により、粉末粒子間で焼結プロセスと同様のプロセスが進行するが、希土類焼結磁石のように液相化は生じず、粒子間には隙間が継続して存在する。また、このように圧縮成形後に行う熱処理によると、粉末粒子間の結合程度が高まり、バインダレス磁石としての機械的強度が向上する。熱処理温度が800℃に近い高温である場合、粉末粒子間で焼結プロセスと同様のプロセスが進行するが、希土類焼結磁石のように液相化は生じず、粒子間には隙間が継続して存在する。磁石特性を高めるという観点から、上記の熱処理は不可欠ではないが、バインダレス磁石の機械的強度を実用レベルに高めるためには、圧縮成形後に熱処理を行うことが好ましい。このように圧縮成形後に行う熱処理は、ホットプレス工程において圧縮成形とともに行う熱処理と異なり、多数の圧縮成形体に対してまとめて施すことができる。従来のホットプレスでは、熱間圧縮成形工程毎に昇温・降温サイクルを実行することが必要になるため、個々の成形体を得るための長時間(例えば10～60分)を要していたが、本発明では、圧縮成形工程に要する時間が例えば0.01～0.1分という短い時間に短縮することが可能になる。このことは、1分あたりの生産数量が10～100個に達することを意味する。このため、熱処理工程を付加しても、単位量あたりのバインダレス磁石を製造するために要する時間はほとんど増加せず、高い量産性を実現すること

が可能になる。

[0076] 圧縮成形前の希土類急冷合金磁石の粉末に対し、低融点金属の粉末を添加し混合してもよい。この場合、添加する低融点金属の粉末粒径は $10\mu\text{m}$ 以上 $50\mu\text{m}$ 程度以下の範囲内にあることが好ましい。低融点金属粉末は、低温焼結時に磁石粉末粒子間で溶け、磁石粉末合金から析出した物質にて磁石粉末相互に結合する固相焼結時において粉末同士の結合をより強固にする。または、希土類急冷合金磁石の粉末粒子間における空隙に入り込んで封孔する効果をもたらす。また、圧縮成形体に含まれる低融点金属粉末が熱処理によって溶解すると、磁石粉末粒子間を接着する役割を果たすため、バインダレス磁石の機械的強度が向上する効果も得られる。低融点金属粉末の混合割合は15wt%未満に調節することが好ましい。低融点金属粉末の割合が、15wt%以上になると、磁石粒子間の結合力を低下させる可能性がある。

[0077] 本発明のバインダレス磁石は、厚さ0.5～3mmの薄物磁石もしくは薄肉リング磁石、または直径 $\phi 2\sim\phi 5\text{mm}$ の小径磁石(リング磁石も含む)に成形されたものであることが好ましい。このような形状およびサイズを有する磁石であれば、圧縮成形体の内部において密度を均一化することができるため、バインダレス磁石の部位によって磁気特性が変動することを抑制しやすい。

[0078] 本発明の製造方法によれば、超高压下での圧縮成形によって磁石粉末粒子表面および内部に新生破面が発生する。圧縮成形後に熱処理を行うと、その温度が 800°C 以下でも、急冷合金磁石粉末を由来とする成分が新生破面から析出し、この析出物により各々の粒子が結合する。このような低温の固相焼結が可能であるため、高温焼結にともなう収縮や熱間塑性変形を避けることができ、ボンド磁石と同様に優れた形状自由度と寸法精度を有するネットシェイプ成形が可能になる。また、ヨーク、シャフト等との一体成形も可能になる。

[0079] (磁気回路部品)

以下、本発明による希土類合金系バインダレス磁石と、無樹脂圧粉磁心とが一体的に成形された磁気回路部品の実施形態を説明する。軟磁性材料粉末の無樹脂圧粉磁心は、ヨークやシャフト等の軟磁性部材として機能し得るため、この磁気回路部品

は、モータ回転子などのコア材として好適に用いられる。

[0080] このような磁気回路部品を製造するため、本実施形態では、上述の希土類合金系バインダレス磁石と無樹脂圧粉磁心とを別々に完成してから両者を組み立てるのではなく、上述した超高压の圧縮成形技術を利用して一体化成形することにより完成品を得る。この方法によれば、軟磁性粉末の粒子も樹脂などのバインダを介することなく焼結によって相互に結合され、同時に希土類合金系バインダレス磁石と無樹脂圧粉磁心との結合も焼結によって行われることになる。

[0081] 超高压で行う一体化成形(本成形)は、希土類急冷合金磁石粉末の仮成形体および軟磁性材料粉末の仮成形体の両方を作製してから、それらの仮成形体をプレス装置内に隣接配置して行っても良いが、一方の仮成形体のみを作製し、他方は粉末のまま本成形を行ってもよい。

[0082] 以下、本実施形態における磁気回路部品の製造方法を説明する。

[0083] まず、希土類急冷合金磁石の粉末と、軟磁性材料粉末とを用意する。希土類急冷合金磁石の粉末は、前述した方法と同一の方法によって作製され、軟磁性材料粉末は、アトマイズ法、還元法、カルボニル法によって、あるいは鉄や鉄合金を粉砕することによって作製される。軟磁性材料粉末の平均粒度は、例えば、1～200 μm である。

[0084] 次に、希土類急冷合金磁石粉末の仮成形体および軟磁性材料粉末の仮成形体の少なくとも一方を作製する。本願明細書において仮成形体は本成形を行う前の粉末の集合体を意味し、そのハンドリングが可能な程度の強度を有しておれば良く、例えば、100～1000MPa程度の圧力で粉末を圧縮成形すればよい。

[0085] 本成形は、以下の3種類の方法のいずれかを採用して行うことができる。

[0086] (1) 希土類急冷合金磁石粉末の仮成形体および軟磁性材料粉末の仮成形体の両方を作製し、それらを組み立ててプレス装置の金型内に配置する。この場合、本成形の金型と仮成形の金型とを別にし、本成形の金型内で仮成形体を組み立ててから本成形を行っても良いし、いずれか一方の仮成形の金型に、他の仮成形体を装入して、仮成形と同じ金型で本成形を行っても良い。

[0087] (2) 希土類急冷合金磁石粉末の仮成形体および軟磁性材料粉末の仮成形体の一

方のみを作製し、その仮成形体をプレス装置の金型内に配置する。キャビティ空間には、隙間が形成されるため、その隙間には、仮成形体を作製しなかった粉末を入れ、その後に本成形を行う。この場合も、仮成形と本成形の金型は同じであっても良いし、異なってもよい。

[0088] (3)複雑な形状を有する磁気回路部品を作製する場合、上記(1)、(2)の方法を複合して行っても良い。

[0089] 以下、図3を参照しながら、本実施形態で行える本成形工程の一例を説明する。

[0090] 図3(a)に示す多軸プレス装置は、基本的には、図2に示す高圧粉末プレス装置と同様の構成を備えている。ただし、本実施形態では、パンチが二重構造を備えている点で、図2のプレス装置と異なっている。具体的には、図3の装置は、所定形状のキャビティを形成する孔を有するダイ32と、ダイ32の孔内に挿入されて上下に動作し得る円筒状の下パンチ42a、42bおよび上パンチ44a、44bと、センターシャフト42cとを備えている。下パンチ42aおよび上パンチ44aは、磁石部分を加圧成形し、下パンチ42bおよび上パンチ44bは、鉄芯部分を加圧成形する。

[0091] 本実施形態では、希土類急冷合金磁石粉末としてナノコンポジット磁石粉末(平均粉末粒径 $50\sim 200\mu\text{m}$)を用意し、軟磁性材料粉末として鉄粉末(平均粉末粒径 $150\mu\text{m}$)を用意する。これらの磁石粉末および鉄粉末に対して、 $0.05\sim 2.0\text{wt}\%$ のステアリン酸カルシウムを添加し、混合する。

[0092] 次に、図3(a)に示すように、下パンチ42aを下げ、円筒状のキャビティ空間を形成した後、このキャビティ内に磁石粉末を供給する。この後、図3(b)に示すように、上パンチ44a、44bを降下させ、その後、上パンチ44aをキャビティ内に挿入し、磁石粉末を圧力 $100\sim 1000\text{MPa}$ で加圧し、磁石粉末の仮成形体を作製する。

[0093] 次に、図3(c)に示すように、上パンチ44a、44bを上昇させるとともに、下パンチ42bを降下させることにより、円筒状のキャビティ空間を形成する。このキャビティ空間内には鉄粉末を供給する。この後、図3(d)に示すように、上パンチ44aおよび44bを降下させ、磁石仮成形体および鉄粉末の両方を圧力 $500\sim 2500\text{MPa}$ にて加圧する。このようにして、磁石粉末の仮成形体と鉄粉末とを圧縮することにより、磁石体部分と軟磁性部材とが一体化した圧縮成形体を作製する。このとき、下パンチ42a、42bの

位置を調整することにより、一体化圧縮成形体の形状を整えることができる。

- [0094] 次に、図3(e)に示すように、下パンチ42a、42bおよび上パンチ44aおよび44bを駆動し、一体化した圧縮成形体をダイ32から取り出す。取り出した圧縮成形体に対し、例えば露点が -40°C の窒素雰囲気中において 500°C で40分間の熱処理を行う。この熱処理により、粉末粒子相互の結合強度が向上する。
- [0095] こうして得られた一体化成形体は、磁石粉末がバインダを介することなく結合したバインダレス磁石体部分と、軟磁材料粉末がバインダを介することなく結合した軟磁性部材(無樹脂圧粉磁心)と備え、これらの磁石体部分と軟磁性部材とが接着層などを介さずに結合した構造を有している。このうち、軟磁性部材の密度は例えば $7.6\text{g}/\text{cm}^3$ (真密度の98%)であり、磁石体部分の密度は例えば $6.5\text{g}/\text{cm}^3$ (真密度の87%)である。
- [0096] 上記の例では、最初に磁石粉末の仮成形体を形成し、その後に鉄粉末を加えて超高压圧縮を行っているが、前述したように、他の種々の態様で本成形を行うことが可能である。
- [0097] このようにして作製された磁気回路部品は、本発明によるバインダレス磁石の特徴点の他、以下に示す特徴点を有している。
- [0098] (1)バインダレス磁石および軟磁性部材がいずれも粉末成形によって作製されたものであるため、複雑な形状の磁気回路部品を作製することが可能である。
- [0099] (2)本発明による磁界回路部品の寸法精度は、金型の精度によって規定されるため、一般的な切削加工および接着によって作製された磁気回路部品の寸法精度よりも高い。
- [0100] (3)バインダレス磁石と軟磁性部材とを接着する工程が不要になるため、製造工程数を削減できる。
- [0101] (4)圧縮時に軟磁性材料に導入された歪みが一体化成形後の熱処理で緩和されるため、歪みに起因する保磁力を減少させることができる。本発明の磁気回路部品をモータの回転子として使用する場合、保磁力によるヒステリシス損が減少すると、モータの効率を高めることができる。このことは、軟磁性部材のリラクタンس・トルクを活用するIPM型回転子を作製する場合に特に有効である。なお、樹脂バインダが介在する

と、歪み除去に必要な高温熱処理を行うことができず、歪みが残留してしまう。

[0102] (5) 熱処理後の焼結体強度が強い鉄粉あるいは鉄合金粉を軟磁性材料として選択し、その軟磁性材料が磁石を囲む構造を採用する場合、磁石単体のときよりも機械強度を高めることができる。

[0103] なお、本発明の希土類合金系バインダレス磁石に対する表面処理としては、公知のボンド磁石に対して行われている樹脂塗装はもちろん、特許3572040号などに記載の珪酸塩と樹脂を主成分とする被膜処理や、特開2005-109421号などに記載の金属微粒子分散アルキルシリケート被膜、公知の化成処理、公知の電気めっきや金属蒸着被膜コーティングなども可能である。なお、電気めっきは、絶縁性のバインダを含有するボンド磁石に対して行うことが困難であり、また、金属蒸着被膜コーティングも、その成膜温度がバインダ樹脂の融点以上になるため、ボンド磁石に対してはほとんど適用されていない。

実施例

[0104] まず、磁石粉末として、株式会社NEOMAX製の希土類鉄硼素系等方性ナノコンポジット磁石粉末 (SPRAX-XB、-XC、-XD) および $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相の単相からなる希土類鉄硼素系磁石粉末 (N1) と硬磁性の $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ に加え軟磁性相に $\alpha\text{-Fe}$ を配した希土類鉄硼素系等方性ナノコンポジット磁石粉末 (N2、N3) を用意した。表1は、これら6種類の磁石粉末の合金組成を示しており、表2は、磁石粉末自体の磁石特性および平均粉末粒径を示している。

[0105] [表1]

磁石粉末	合金組成 (at%)							
	Nd	Pr	Fe	Co	B	C	Ti	M
SPRAX -XB	6.0	1.0	76.0	—	12.0	1.0	4.0	—
SPRAX -XC	9.0	—	73.0	—	12.6	1.4	3.0	Nb1.0
SPRAX -XD	8.0	—	71.0	4.0	11.0	1.0	5.0	—
N1	11.5	—	75.5	5.5	5.5	—	—	Zr2.0
N2	9.0	—	76.0	8.0	5.5	0.5	1.0	—
N3	—	8.3	73.7	8.0	5.5	0.5	4.0	—

[0106] [表2]

磁石粉末	残留磁束密度 B_r (mT)	固有保磁力 H_{cJ} (kA/m)	最大エネルギー積 $(BH)_{max}$ (kJ/m ³)	平均粉末 粒径 (μ m)
SPRAX -XB	831	653	101	90
SPRAX -XC	794	1035	103	90
SPRAX -XD	877	783	115	90
N1	928	925	132	90
N2	973	593	132	90
N3	1007	541	136	90

[0107] 次に、これらの磁石粉末に対し、0.5outwt%のステアリン酸カルシウムを添加し、混合した。その後、上記磁石粉末に対する成形を行い、各磁石粉末から圧縮成形体を作製した。なお、圧縮成形体の寸法は内径7.7mm、外径12.8mm、高さ4.8mmである。以下の表3は、実施例1～7および比較例1～4の成形条件を示している。

[0108] [表3]

	磁石粉末の種類	成形方法	樹脂バインダ	成形圧力 (MPa)
実施例1	SPRAX-XB	圧縮成形	無	1900
実施例2	SPRAX-XB	圧縮成形	無	580
実施例3	SPRAX-XC	圧縮成形	無	700
実施例4	SPRAX-XD	圧縮成形	無	1900
実施例5	N1	圧縮成形	無	1900
実施例6	N2	圧縮成形	無	1900
実施例7	N3	圧縮成形	無	1900
比較例1	SPRAX-XD	圧縮成形	エポキシ樹脂	900
比較例2	SPRAX-XD	圧縮成形	エポキシ樹脂	900
比較例3	SPRAX-XD	射出成形	PPS	220
比較例4	SPRAX-XB	射出成形	PA12	210

[0109] 実施例1～7の成形は、圧縮成形時の圧力が異なる点を除いて、同一の装置および方法で、成形装置を加熱することなく冷間にて行った。各実施例の圧縮成形体に対しては、成形工程の後、露点が-40℃の窒素雰囲気中で、実施例1～3および5、6、7は500℃の温度で、実施例4は800℃の温度で10分間の熱処理を施し、バインダレス磁石を作製した。

[0110] (比較例1)

SPRAX-XDの磁石粉末を用意した後、98wt%の磁石粉末と2wt%のエポキシ樹脂とに対してニーダー処理(攪拌処理)を施すことにより、磁石粉末とエポキシ樹脂との混合物を得た。この混合物に対し、0.5wt%のステアリン酸カルシウムを添加した後、900MPaの圧力で圧縮成形を行うことにより、成形体を作製した。

[0111] 次に、こうして得た成形体に対し、露点が -40°C の窒素雰囲気炉にて 180°C の温度で30分間の熱処理を施し、ボンド磁石を作製した。

[0112] (比較例2)

比較例1では、98wt%の磁石粉末と2wt%のエポキシ樹脂とを混合したが、比較例2では、97wt%の磁石粉末と3wt%のエポキシ樹脂とを混合した。これ以外の点では、比較例1と比較例2との間に作製方法の差異はない。

[0113] (比較例3)

SPRAX-XDの磁石粉末を用意した後、90wt%の磁石粉末と10wt%のPPS(ポリフェニレンサルファイド: Polyphenylene Sulfide)とを二軸押し出し機にて押し出した。この後、適切な長さにカットすることにより、 $\phi 3\text{mm} \times 4\text{mm}$ のペレット原料を作製した。このペレットを用いて、樹脂温度 340°C 、金型温度 180°C 、射出圧220MPaの条件で射出成形を行い、比較例3の成形体(ボンド磁石)を作製した。

[0114] (比較例4)

SPRAX-XBの磁石粉末を用意した後、95wt%の磁石粉末と5wt%のポリアミド(PA12)とを二軸押し出し機にて押し出した。この後、適切な長さにカットすることにより、 $\phi 3\text{mm} \times 4\text{mm}$ のペレット原料を作製した。このペレットを用いて、樹脂温度 290°C 、金型温度 120°C 、射出圧210MPaの条件で射出成形を行い、比較例4の成形体(ボンド磁石)を作製した。

[0115] 必要に応じて熱処理を行った実施例および比較例について、磁石粉末の体積比率および成形体密度を測定した。測定結果を以下の表4に示す。

[0116] [表4]

	磁石粉末 体積比率 (%)	成形体 密度 (Mg/m ³)
実施例1	87	6.5
実施例2	78	5.8
実施例3	78	5.8
実施例4	87	6.5
実施例5	87	6.5
実施例6	87	6.5
実施例7	87	6.5
比較例1	73	5.8
比較例2	74	5.8
比較例3	62	5.1
比較例4	70	5.5

[0117] 次に、各成形体(バインダレス磁石およびボンド磁石)について、磁石特性および耐熱性を評価した。評価結果を以下の表5に示す。耐熱性の評価は各成形体を大気中150℃にて24時間放置したときの形状の変化の有無により行った。

[0118] [表5]

	残留磁束密度 B _r (mT)	固有保磁力 H _{cJ} (kA/m)	最大エネルギー積 (BH) _{max} (kJ/m ³)	耐熱性 (形状変化有無)
実施例1	725	644	80	○
実施例2	628	622	60	○
実施例3	613	1017	62.5	○
実施例4	741	751	80	○
実施例5	788	898	92	○
実施例6	827	569	90	○
実施例7	856	519	95	○
比較例1	623	762	61.6	×
比較例2	624	757	63	×
比較例3	530	711	45	○
比較例4	575	573	50	×

[0119] 表5の最右欄における「○」は、形状変化無し(耐熱性良好)を意味し、「×」は、形状変化有り(耐熱性低い)を意味している。

[0120] 上記の結果からわかるように、最も高い圧力で圧縮成形を行った実施例1および実施例4、5、6、7における磁石粉末の体積比率は最も高く、実施例1および実施例4、5、6、7が最も優れた磁気特性を発揮した。また、いずれの実施例も、バインダが介在しないにもかかわらず、十分に高い機械的強度を有し、優れた磁石特性を発揮し

た。

[0121] 実施例4の磁石について、焼結状態の観察を行った。図4および図5に磁粉内部のクラック部および磁石粉末粒子間SEM写真を示す。図4に示されるように、粉末粒子の内部にクラックが形成され、クラックに多数の析出部(図中、明度の高い部分)が形成されている。また粉末粒子間にも、図5に示すように析出物が観察される。EDS (Energy dispersive X-ray spectroscopy) による成分分析によれば、この析出物はFeを主成分としていた。

[0122] (実施例8)

表1のN2の合金組成を有する急冷合金鋳片(平均厚さ:25 μ m)から作製した磁石粉末を用意し、実施例1、4~7と同一装置および方法で圧縮成形体を作製した(実施例8)。圧縮成形体の寸法は内径7.7mm、外径12.8mm、高さ4.8mmであった。以下の表6は、実施例8および実施例6について、急冷合金平均鋳片厚、粉碎後の平均粉末粒径、成形条件、および圧縮成形体に熱処理を行った後のバインダレス磁石の密度を示している。

[0123] [表6]

	磁石粉末	急冷合金 平均鋳片厚 (μ m)	平均粉末粒径 (μ m)	成形方法	樹脂 バインダ	成形圧力 (MPa)	磁石密度 (Mg/ m^3)
実施例8	N2	25	90	圧縮成形	無	1900	6.7
実施例6	N2	80	90	圧縮成形	無	1900	6.5

[0124] 平均粉末粒径が同じ場合、急冷合金の平均鋳片厚が小さいほど、粉末粒子のアスペクト比は小さくなり、扁平度が高くなる。実施例8では、粉末粒子のアスペクト比は0.3以下の扁平な形状を有していた。表6からわかるように、実施例8のバインダレス磁石は、実施例6のバインダレス磁石に比べて高い密度を達成している。

産業上の利用可能性

[0125] 本発明のバインダレス磁石は、樹脂バインダを含有せず、耐熱性に優れ、また、ボンド磁石に比べて高い磁粉体積率を実現し得るため、従来のボンド磁石の代替物として各種分野に広く用いられる。

[0126] また、本発明のバインダレス磁石は、樹脂を含有しないため、めっきなどの表面処理を施しやすく、耐腐食性に優れた磁石を得ることができる。更に、内部に樹脂などの非磁性体材料をほとんど含まないため、廃品や不良品などから磁粉だけを抽出しやすく、リサイクル性にも富んでいる。

請求の範囲

- [1] 希土類系急冷合金磁石粉末の粒子が樹脂バインダを介さずに結合した磁石であって、
全体に占める前記希土類系急冷合金磁石粉末の体積比率が70%以上95%以下である、希土類合金系バインダレス磁石。
- [2] 前記急冷合金磁石粉末の粒子は、前記急冷合金磁石粉末粒子からの析出物によって結合している、請求項1に記載の希土類合金系バインダレス磁石。
- [3] 前記急冷合金磁石粉末の粒子は、ホウ素を含有する鉄基希土類合金から形成されており、前記析出物は、鉄、希土類、およびホウ素からなる群から選択された少なくとも1種類の元素から構成されている、請求項2に記載の希土類合金系バインダレス磁石。
- [4] 前記急冷合金磁石粉末の粒子にはクラックが形成されており、前記析出部の少なくとも一部は前記クラック内に存在している、請求項2または3に記載の希土類合金系バインダレス磁石。
- [5] 全体に占める前記希土類系急冷合金磁石粉末の体積比率が70%超92%未満である、請求項1に記載の希土類合金系バインダレス磁石。
- [6] 前記希土類系急冷合金磁石粉末の粒子は固相焼結によって相互に結合している、請求項1に記載の希土類合金系バインダレス磁石。
- [7] 前記希土類系急冷合金磁石粉末の粒子は、1種以上の強磁性結晶相を含有し、その平均結晶粒径が10nm以上300nm以下の範囲にある、請求項1に記載の希土類合金系バインダレス磁石。
- [8] 前記希土類系急冷合金磁石粉末の粒子は、硬磁性相および軟磁性相を含有するナノコンポジット磁石組織を有している、請求項1に記載の希土類合金系バインダレス磁石。
- [9] 密度が $5.5\text{g}/\text{cm}^3 \sim 7.0\text{g}/\text{cm}^3$ である請求項1に記載の希土類合金系バインダレス磁石。
- [10] 組成式 $T_{100-x-y-z} Q_x R_y M_z$ (TはFe、または、CoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素とFeとを含む遷移金属元素、QはBおよびCからなる群から選択された

少なくとも1種の元素、RはLaおよびCeを実質的に含まない少なくとも1種の希土類元素、Mは、Ti、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、およびPbからなる群から選択された少なくとも1種の金属元素)で表現され、組成比率x、y、およびzが、それぞれ、

$$10 < x \leq 35 \text{ 原子\%},$$

$$2 \leq y \leq 10 \text{ 原子\%}, \text{ および}$$

$$0 \leq z \leq 10 \text{ 原子\%}$$

を満足する組成を有している、請求項1に記載の希土類合金系バインダレス磁石。

- [11] 組成式 $T_{100-x-y-z} Q_x R_y M_z$ (TはFe、または、CoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素とFeとを含む遷移金属元素、QはBおよびCからなる群から選択された少なくとも1種の元素、RはLaおよびCeを実質的に含まない少なくとも1種の希土類元素、Mは、Ti、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、およびPbからなる群から選択された少なくとも1種の金属元素)で表現され、組成比率x、y、およびzが、それぞれ、

$$4 < x \leq 10 \text{ 原子\%},$$

$$6 \leq y < 12 \text{ 原子\%}, \text{ および}$$

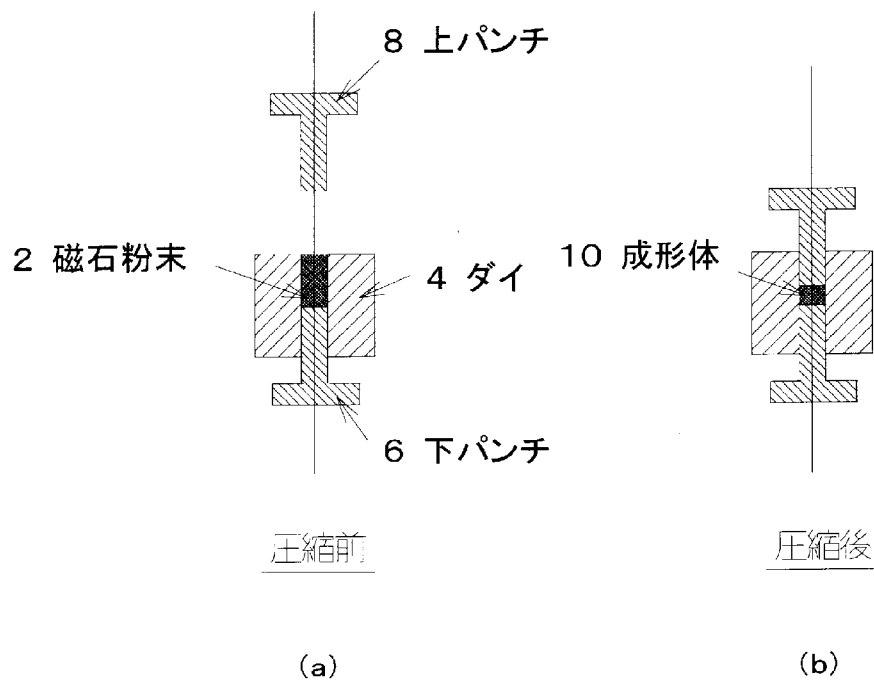
$$0 \leq z \leq 10 \text{ 原子\%}$$

を満足する組成を有している、請求項1に記載の希土類合金系バインダレス磁石。

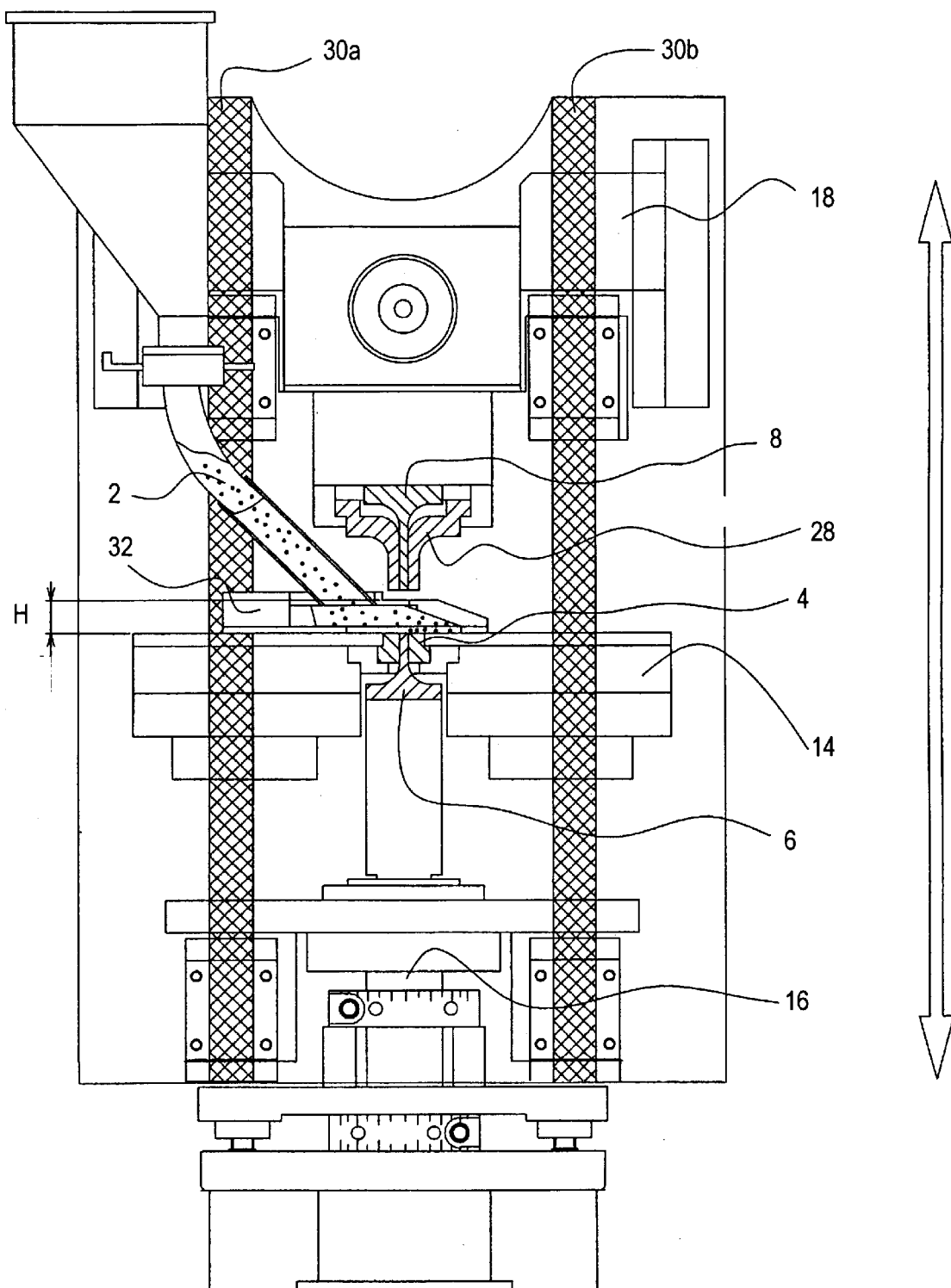
- [12] 希土類系急冷合金磁石粉末を用意する工程(A)と、
樹脂バインダを用いずに前記希土類系急冷合金磁石粉末を冷間にて圧縮して成形することにより、全体に占める前記希土類系急冷合金磁石粉末の体積比率が70%以上95%以下の圧縮成形体を形成する工程(B)と、
前記工程(B)の後に350℃以上800℃以下の温度で前記圧縮成形体に対して熱処理を施す工程(C)と、
を含む希土類合金系バインダレス磁石の製造方法。
- [13] 前記工程(B)では、500MPa以上2500MPa以下の圧力で前記希土類系急冷磁石用急冷合金磁石粉末を圧縮する、請求項12に記載の希土類合金系バインダレス磁石の製造方法。

- [14] 前記工程(C)の熱処理は、圧力が 1×10^{-2} Pa以下の不活性ガス雰囲気中で実行する請求項13に記載の希土類合金系バインダレス磁石の製造方法。
- [15] 前記工程(C)の熱処理は、露点が -40°C 以下の不活性ガス雰囲気中で実行する請求項13または14に記載の希土類合金系バインダレス磁石の製造方法。
- [16] 請求項1に記載の希土類合金系バインダレス磁石と、
軟磁性材料粉末が樹脂バインダを介さずに結合した無樹脂圧粉磁心と、を備え、
前記バインダレス磁石と前記無樹脂圧粉磁心とが一体化された磁気回路部品。
- [17] 前記無樹脂圧粉磁心における軟磁性粉末の粒子は焼結によって相互に結合している、請求項16に記載の磁気回路部品。
- [18] 前記バインダレス磁石と前記無樹脂圧粉磁心とは、焼結によって相互に結合している請求項16または17に記載の磁気回路部品。
- [19] 請求項16に記載の磁気回路部品の製造方法であって、
希土類系急冷合金粉末および軟磁性材料粉末を用意する工程(A)と、
前記希土類系急冷合金粉末および前記軟磁性材料粉末を冷間にて500MPa以上2500MPa以下の圧力で圧縮して一体化する工程(B)と、
前記一体化圧縮成形体に対して 350°C 以上 800°C 以下の温度で熱処理を施す工程(C)と、
を含む、磁気回路部品の製造方法。
- [20] 前記工程(A)は、前記希土類系急冷合金粉末および前記軟磁性材料粉末の少なくとも一方の仮成形体を形成する工程を含み、
前記工程(B)では、前記仮成形体を少なくとも一部に含む前記希土類系急冷合金粉末および前記軟磁性材料粉末を圧縮する、請求項19に記載の磁気回路部品の製造方法。

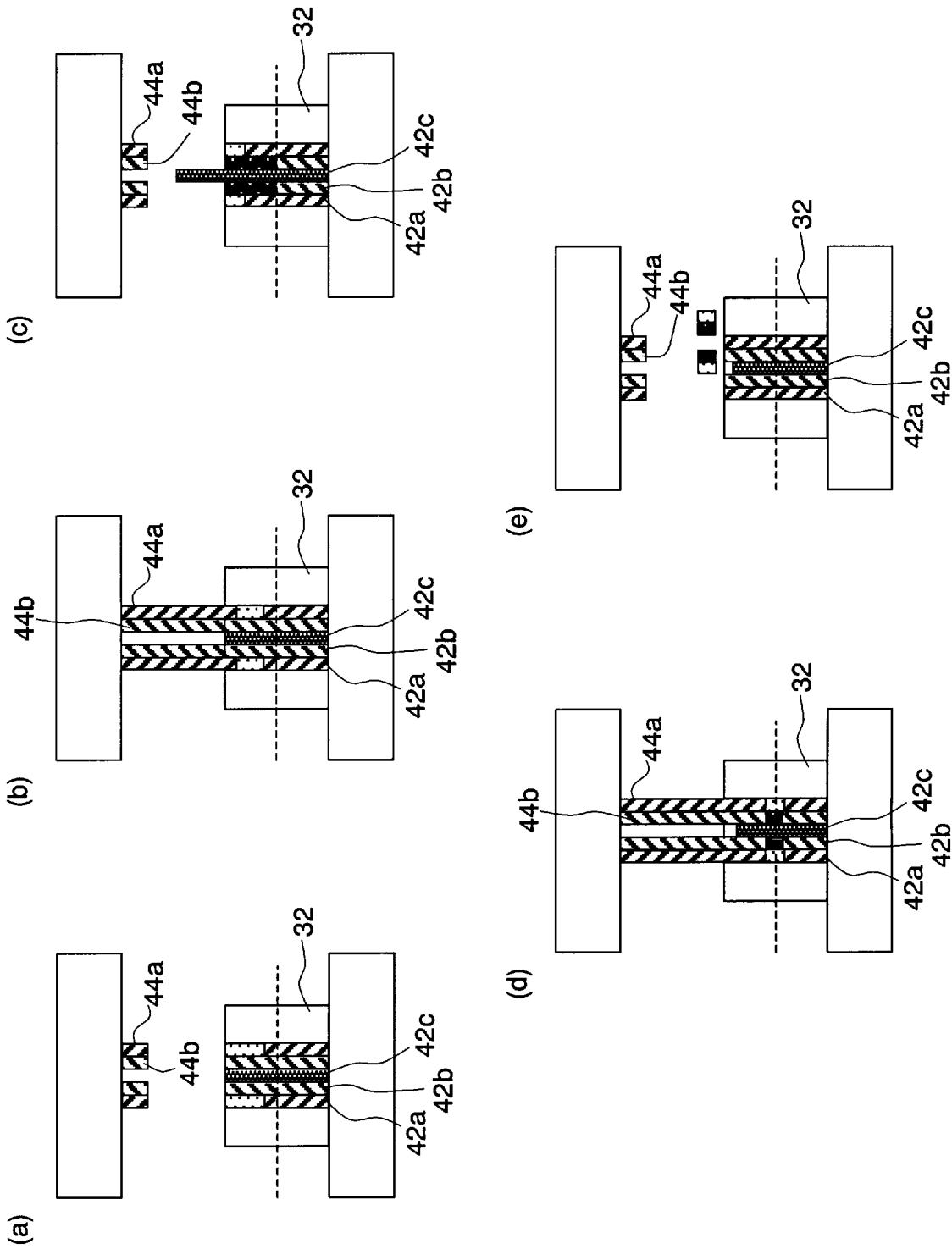
[図1]



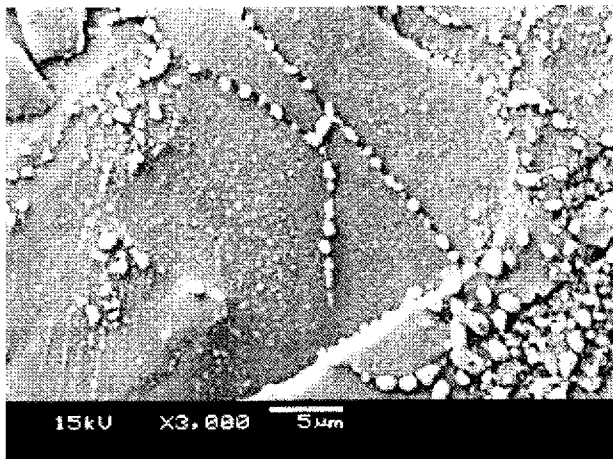
[図2]



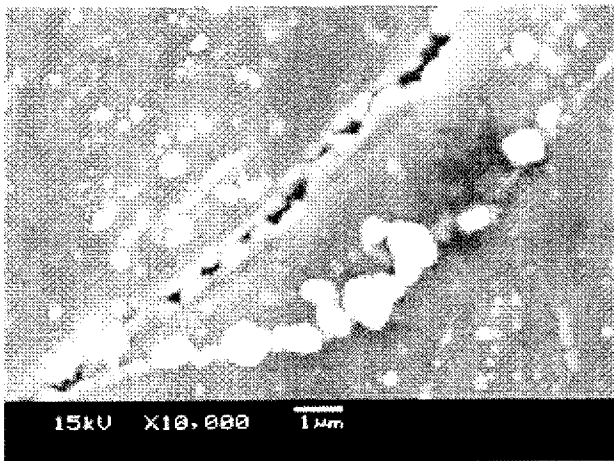
[図3]



[図4]



[図5]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/315409

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01F1/08(2006.01)i, B22F3/00(2006.01)i, H01F1/053(2006.01)i, H01F41/02(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H01F1/08, B22F3/00, H01F1/053, H01F41/02

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2006
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2006	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2006

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2004-014906 A (Sumitomo Special Metals Co., Ltd.),	1, 5, 7, 8, 10, 11
Y	15 January, 2004 (15.01.04), Par. Nos. [0021], [0024], [0026], [0046], [0047] (Family: none)	2-4, 6, 9, 12-20
Y	JP 2005-171264 A (Daido Steel Co., Ltd., National Institute of Advanced Industrial Science and Technology), 30 June, 2005 (30.06.05), Par. Nos. [0015], [0025] (Family: none)	2-4, 6, 9, 12-20

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
16 October, 2006 (16.10.06)

Date of mailing of the international search report
24 October, 2006 (24.10.06)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C）） Int.Cl. H01F1/08(2006.01)i, B22F3/00(2006.01)i, H01F1/053(2006.01)i, H01F41/02(2006.01)i			
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C）） Int.Cl. H01F1/08, B22F3/00, H01F1/053, H01F41/02			
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの <div style="display: flex; justify-content: space-between;"> <div> 日本国実用新案公報 日本国公開実用新案公報 日本国実用新案登録公報 日本国登録実用新案公報 </div> <div> 1 9 2 2－1 9 9 6 年 1 9 7 1－2 0 0 6 年 1 9 9 6－2 0 0 6 年 1 9 9 4－2 0 0 6 年 </div> </div>			
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）			
C. 関連すると認められる文献			
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号	
X	J P 2 0 0 4－0 1 4 9 0 6 A（住友特殊金属株式会社） 2 0 0 4. 0 1. 1 5, 段落【0 0 2 1】，【0 0 2 4】，【0 0 2 6】，	1, 5, 7, 8, 1 0, 1 1	
Y	【0 0 4 6】，【0 0 4 7】 （ファミリーなし）	2－4, 6, 9, 1 2－2 0	
Y	J P 2 0 0 5－1 7 1 2 6 4 A（大同特殊鋼株式会社, 独立行政法人産業技術 総合研究所） 2 0 0 5. 0 6. 3 0, 段落【0 0 1 5】，【0 0 2 5】 （ファミリーなし）	2－4, 6, 9, 1 2－2 0	
☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。 ☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。			
* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」同一パテントファミリー文献			
国際調査を完了した日 1 6. 1 0. 2 0 0 6		国際調査報告の発送日 2 4. 1 0. 2 0 0 6	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（I S A / J P） 郵便番号1 0 0－8 9 1 5 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官（権限のある職員） 山田 正文 電話番号 0 3－3 5 8 1－1 1 0 1 内線 3 5 6 5	5 R 3 6 6 2