

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号

特許第7087465号

(P7087465)

(45)発行日 令和4年6月21日(2022.6.21)

(24)登録日 令和4年6月13日(2022.6.13)

(51)国際特許分類

F I

H 0 1 F 41/02 (2006.01)

H 0 1 F 41/02

G

H 0 1 F 1/10 (2006.01)

H 0 1 F 1/10

H 0 1 F 1/113(2006.01)

H 0 1 F 1/113

C 0 1 B 35/12 (2006.01)

C 0 1 B 35/12

D

請求項の数 5 (全22頁)

(21)出願番号 特願2018-40880(P2018-40880)
 (22)出願日 平成30年3月7日(2018.3.7)
 (65)公開番号 特開2019-160838(P2019-160838
 A)
 (43)公開日 令和1年9月19日(2019.9.19)
 審査請求日 令和2年10月9日(2020.10.9)

(73)特許権者 000003067
 T D K 株式会社
 東京都中央区日本橋二丁目5番1号
 (74)代理人 100088155
 弁理士 長谷川 芳樹
 (74)代理人 100113435
 弁理士 黒木 義樹
 (74)代理人 100124062
 弁理士 三上 敬史
 (72)発明者 村川 喜堂
 東京都港区芝浦三丁目9番1号 T D K
 株式会社内
 (72)発明者 森田 啓之
 東京都港区芝浦三丁目9番1号 T D K
 株式会社内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 フェライト焼結磁石の製造方法、フェライト粒子の製造方法、及びボンド磁石の製造方法

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

マグネトプランバイト型の結晶構造を有するフェライト相を含むフェライト焼結磁石の製造方法であって、

前記フェライト相の原材料とホウ素化合物と二酸化ケイ素とを含む混合物を仮焼きして、フェライト粒子を作製する仮焼工程と、

前記フェライト粒子から、成形体を作製する成形工程と、

前記成形体を焼結させる焼成工程と、

を備え、

前記フェライト焼結磁石の製造に用いる前記フェライト相の原材料、前記ホウ素化合物及び前記二酸化ケイ素の全量が、前記仮焼工程前に混合され、

前記フェライト相の原材料が、希土類元素Rの化合物、アルカリ土類金属元素Aの化合物、鉄の化合物、及びコバルトの化合物であり、

Rが、希土類元素から選択される少なくとも一種の元素であり、

Aが、カルシウム以外の少なくとも一種のアルカリ土類金属元素とカルシウムとの組合せ、又はカルシウムのみであり、

前記混合物全体の質量に対する前記Rの化合物の割合が、Rの酸化物の質量換算で、5.5質量%以上19.9質量%以下であり、

前記混合物全体の質量に対する前記Aの化合物の割合が、Aの酸化物の質量換算で、1.7質量%以上7.6質量%以下であり、

前記混合物全体の質量に対する前記鉄の化合物の割合が、鉄の酸化物の質量換算で、45.3質量%以上87.4質量%以下であり、

前記混合物全体の質量に対する前記コバルトの化合物の割合が、コバルトの酸化物の質量換算で、0.9質量%以上18.9質量%以下であり、

前記混合物全体の質量に対する前記ホウ素化合物の割合が、ホウ酸の質量換算で、0.3質量%よりも大きく2.5質量%以下であり、

前記混合物全体の質量に対する前記二酸化ケイ素の割合が、0質量%よりも大きく0.19質量%以下であり、

前記フェライト相に含まれる金属成分が、 $R_{1-x}A_xFe_{m-y}Co_y$ と表され、

x が $0.2 \leq x \leq 0.8$ を満たし、

y が $0.1 \leq y \leq 0.65$ を満たし、

m が $3 \leq m < 14$ を満たし、

前記フェライト焼結磁石におけるホウ素の含有量が、 B_2O_3 の質量換算で、0.1質量%以上0.6質量%以下である、

フェライト焼結磁石の製造方法。

【請求項2】

前記ホウ素化合物が、ホウ酸を含む、

請求項1に記載のフェライト焼結磁石の製造方法。

【請求項3】

マグネトプランバイト型の結晶構造を有するフェライト相を含むフェライト粒子の製造方法であって、

前記フェライト相の原材料とホウ素化合物と二酸化ケイ素とを含む混合物を加熱して、フェライト粒子を作製する加熱工程を備え、

前記フェライト粒子の製造に用いる前記フェライト相の原材料、前記ホウ素化合物及び前記二酸化ケイ素の全量が、前記加熱工程前に混合され、

前記フェライト相の原材料が、希土類元素Rの化合物、アルカリ土類金属元素Aの化合物、鉄の化合物、及びコバルトの化合物であり、

Rが、希土類元素から選択される少なくとも一種の元素であり、

Aが、カルシウム以外の少なくとも一種のアルカリ土類金属元素とカルシウムとの組合せ、又はカルシウムのみであり、

前記混合物全体の質量に対する前記Rの化合物の割合が、Rの酸化物の質量換算で、5.5質量%以上19.9質量%以下であり、

前記混合物全体の質量に対する前記Aの化合物の割合が、Aの酸化物の質量換算で、1.7質量%以上7.6質量%以下であり、

前記混合物全体の質量に対する前記鉄の化合物の割合が、鉄の酸化物の質量換算で、45.3質量%以上87.4質量%以下であり、

前記混合物全体の質量に対する前記コバルトの化合物の割合が、コバルトの酸化物の質量換算で、0.9質量%以上18.9質量%以下であり、

前記混合物全体の質量に対する前記ホウ素化合物の割合が、ホウ酸の質量換算で、0.3質量%よりも大きく2.5質量%以下であり、

前記混合物全体の質量に対する前記二酸化ケイ素の割合が、0質量%よりも大きく0.19質量%以下であり、

前記フェライト相に含まれる金属成分が、 $R_{1-x}A_xFe_{m-y}Co_y$ と表され、

x が $0.2 \leq x \leq 0.8$ を満たし、

y が $0.1 \leq y \leq 0.65$ を満たし、

m が $3 \leq m < 14$ を満たし、

前記フェライト粒子におけるホウ素の含有量が、 B_2O_3 の質量換算で、0.1質量%以上0.6質量%以下である、

フェライト粒子の製造方法。

【請求項4】

10

20

30

40

50

前記ホウ素化合物が、ホウ酸を含む、
請求項 3 に記載のフェライト粒子の製造方法。

【請求項 5】

フェライト粒子を製造する工程と、

前記フェライト粒子と樹脂とを含む成形体を作製する工程と、

前記成形体中の樹脂を硬化する工程と、

を備え、

前記フェライト粒子が、請求項 3 又は 4 に記載の製造方法によって製造される、

ボンド磁石の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、フェライト焼結磁石の製造方法、フェライト粒子の製造方法、及びボンド磁石の製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

フェライト焼結磁石に用いられる磁性材料として、六方晶系の結晶構造を有する Ba フェライト、Sr フェライト及び Ca フェライトが知られている。このようなフェライトの結晶構造としては、マグネトプランバイト型（M 型）、及び W 型等が知られている。これらの中でも、モータ用等の磁石材料として、主に M 型フェライトが採用されている。M 型フェライトは、通常 $\text{AFe}_{12}\text{O}_{19}$ の一般式で表される。

【0003】

フェライト焼結磁石の磁気特性の指標としては、一般に、残留磁束密度（Br）及び保磁力（HcJ）及び角形比（Hk/HcJ）が用いられる。従来、Br 及び HcJ を向上させる観点から、フェライトの構成元素とは異なる種々の元素をフェライトに添加することが試みられている。例えば、特許文献 1 では、A サイトの元素の一部を Ca 及び希土類元素（R）で置換し、Fe の一部を Co で置換することによって、磁気特性を改善することが試みられている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0004】

【文献】国際公開第 2008/146712 号

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

フェライト焼結磁石の主な用途であるモータ及び発電機等は、各技術分野において小型化が図られつつある。このため、内部構造が複雑化し、磁石の設置スペースも小さくなりつつある。したがって、設置スペースを低減するために厚みを小さくすることが考えられる。しかしながら、厚みを小さくすると、反磁界によってフェライト焼結磁石が減磁することが懸念される。

【0006】

本発明の目的は、磁気特性に優れたフェライト焼結磁石の製造方法、磁気特性に優れたフェライト粒子の製造方法、及び当該フェライト粒子を用いたボンド磁石の製造方法を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0007】

（フェライト焼結磁石の製造方法）

本発明の一側面に係るフェライト焼結磁石の製造方法は、マグネトプランバイト型の結晶構造を有するフェライト相を含むフェライト焼結磁石の製造方法であって、フェライト相の原材料とホウ素化合物とを含む混合物を仮焼きして、フェライト粒子を作製する仮焼工

10

20

30

40

50

程と、フェライト粒子から、成形体を作製する成形工程と、成形体を焼結させる焼成工程と、を備え、フェライト焼結磁石の製造に用いるフェライト相の原材料及びホウ素化合物の全量が、仮焼工程前に混合され、フェライト相の原材料が、希土類元素Rの化合物、アルカリ土類金属元素Aの化合物、鉄の化合物、及びコバルトの化合物であり、Rが、希土類元素から選択される少なくとも一種の元素であり、Aが、カルシウム以外の少なくとも一種のアルカリ土類金属元素とカルシウムとの組合せ、又はカルシウムのみであり、混合物全体の質量に対するRの化合物の割合が、Rの酸化物の質量換算で、5.5質量%以上19.9質量%以下であり、混合物全体の質量に対するAの化合物の割合が、Aの酸化物の質量換算で、1.7質量%以上7.6質量%以下であり、混合物全体の質量に対する鉄の化合物の割合が、鉄の酸化物の質量換算で、45.3質量%以上87.4質量%以下であり、混合物全体の質量に対するコバルトの化合物の割合が、コバルトの酸化物の質量換算で、0.9質量%以上18.9質量%以下であり、混合物全体の質量に対するホウ素化合物の割合が、ホウ酸の質量換算で、0.3質量%よりも大きく2.5質量%以下であり、フェライト相に含まれる金属成分が、 $R_{1-x}A_xFe_m-yCo_y$ と表され、xが $0.2 \leq x \leq 0.8$ を満たし、yが $0.1 \leq y \leq 0.65$ を満たし、mが $3 \leq m < 14$ を満たし、フェライト焼結磁石におけるホウ素の含有量が、 B_2O_3 の質量換算で、0.1質量%以上0.6質量%以下である。

【0008】

ホウ素化合物は、ホウ酸を含んでよい。

【0009】

(フェライト粒子の製造方法)

本発明の一側面に係るフェライト粒子の製造方法は、マグネトプランバイト型の結晶構造を有するフェライト相を含むフェライト粒子の製造方法であって、フェライト相の原材料とホウ素化合物とを含む混合物を加熱して、フェライト粒子を作製する加熱工程を備え、フェライト粒子の製造に用いるフェライト相の原材料及びホウ素化合物の全量が、加熱工程前に混合され、フェライト相の原材料が、希土類元素Rの化合物、アルカリ土類金属元素Aの化合物、鉄の化合物、及びコバルトの化合物であり、Rが、希土類元素から選択される少なくとも一種の元素であり、Aが、カルシウム以外の少なくとも一種のアルカリ土類金属元素とカルシウムとの組合せ、又はカルシウムのみであり、混合物全体の質量に対するRの化合物の割合が、Rの酸化物の質量換算で、5.5質量%以上19.9質量%以下であり、混合物全体の質量に対するAの化合物の割合が、Aの酸化物の質量換算で、1.7質量%以上7.6質量%以下であり、混合物全体の質量に対する鉄の化合物の割合が、鉄の酸化物の質量換算で、45.3質量%以上87.4質量%以下であり、混合物全体の質量に対するコバルトの化合物の割合が、コバルトの酸化物の質量換算で、0.9質量%以上18.9質量%以下であり、混合物全体の質量に対するホウ素化合物の割合が、ホウ酸の質量換算で、0.3質量%よりも大きく2.5質量%以下であり、フェライト相に含まれる金属成分が、 $R_{1-x}A_xFe_m-yCo_y$ と表され、xが $0.2 \leq x \leq 0.8$ を満たし、yが $0.1 \leq y \leq 0.65$ を満たし、mが $3 \leq m < 14$ を満たし、フェライト粒子におけるホウ素の含有量が、 B_2O_3 の質量換算で、0.1質量%以上0.6質量%以下である。

【0010】

ホウ素化合物は、ホウ酸を含んでよい。

【0011】

(ボンド磁石の製造方法)

本発明の一側面に係るボンド磁石の製造方法は、フェライト粒子と樹脂とを含む成形体を作製する工程と、成形体中の樹脂を硬化する工程と、を備え、フェライト粒子が、上記の製造方法によって製造される。

【発明の効果】

【0012】

本発明によれば、磁気特性に優れたフェライト焼結磁石の製造方法、磁気特性に優れたフ

ェライト粒子の製造方法、及び当該フェライト粒子を用いたボンド磁石の製造方法を提供することができる。

【発明を実施するための形態】

【0013】

以下では、本発明の好適な実施形態を説明する。本発明は下記実施形態に限定されるものではない。

【0014】

（フェライト粒子の製造方法、及びフェライト焼結磁石の製造方法）

本実施形態に係るフェライト焼結磁石の製造方法は、マグネトプランバイト型の結晶構造を有するフェライト相を含むフェライト焼結磁石の製造方法である。本実施形態に係るフェライト粒子の製造方法は、マグネトプランバイト型の結晶構造を有するフェライト相を含むフェライト粒子の製造方法ある。

【0015】

フェライト焼結磁石の製造方法は、少なくとも、混合工程、仮焼工程、成形工程及焼成工程を備える。混合工程では、フェライト相の原材料とホウ素化合物とを混合して、混合物を調製する。仮焼工程では、混合工程で得られた混合物を仮焼きして、フェライト粒子（仮焼粉）を作製する。成形工程では、フェライト粒子を含む中間材料を成形して、成形体を作製する。焼成工程では、成形体を焼結させる。

【0016】

フェライト粒子の製造方法は、少なくとも、混合工程及び加熱工程を備える。混合工程では、フェライト相の原材料とホウ素化合物とを混合して、混合物を調製する。加熱工程では、混合物を加熱して、フェライト粒子を作製する。フェライト粒子の製造方法における加熱工程は、フェライト焼結磁石の製造方法における仮焼工程に等しい。つまり、フェライト粒子の製造方法は、フェライト焼結磁石の製造方法における混合工程及び仮焼工程と実質的に同じである。つまり、フェライト粒子の製造方法は、フェライト焼結磁石の製造方法の一部である。

【0017】

フェライト相の原材料は、希土類元素Rの化合物、アルカリ土類金属元素Aの化合物、鉄（Fe）の化合物、及びコバルト（Co）の化合物である。ホウ素化合物は、ホウ酸、酸化ホウ素及びホウ酸カルシウムからなる群より選ばれる少なくとも一種であってよい。仮焼きされる前の原料混合物は、水を含んでよい。混合工程では、ホウ素化合物の水溶液を、フェライト相の原材料と混合してもよい。

【0018】

混合工程では、フェライト焼結磁石及びフェライト粒子の製造に用いるフェライト相の原材料及びホウ素化合物の全量が、混合される。つまり、フェライト焼結磁石及びフェライト粒子の製造に用いるフェライト相の原材料及びホウ素化合物の全量が、仮焼工程前に一括して混合される。一方、仮焼工程で得られる仮焼粉（粗いフェライト粒子）に対しては、フェライト相の原材料及びホウ素化合物のいずれも全く添加されない。以下では、フェライト相の原材料及びホウ素化合物を含む混合物が、「原料混合物」と表記される場合がある。

【0019】

原料混合物は、フェライト相の原材料及びホウ素化合物を除く他の添加成分を含んでよい。仮焼粉（フェライト粒子）を含む中間材料も、フェライト相の原材料及びホウ素化合物を除く他の添加成分を含んでよい。他の添加成分は、例えば、二酸化ケイ素（SiO₂）であってよい。混合工程では、フェライト相の原材料、ホウ素化合物及び添加成分の全量が、混合されてよい。フェライト焼結磁石及びフェライト粒子の製造に用いる添加成分の全量が、仮焼粉（フェライト粒子）へ添加されてもよい。添加成分の一部が仮焼きされる前の原料混合物へ添加されてもよく、添加成分の残部が仮焼粉（フェライト粒子）へ添加されてもよい。

【0020】

フェライト相の原材料及びホウ素化合物の全量が、仮焼工程前に混合されることにより、磁気特性に優れたフェライト粒子及びフェライト焼結磁石を得ることができる。優れた磁気特性とは、残留磁束密度 (B_r)、保磁力 ($H_c J$) 及び角形比 ($H_k / H_c J$) がバランスよく高いことを意味する。 H_k とは、 B_r の 90% に相当する磁場である。磁気特性に優れたフェライト粒子及びフェライト焼結磁石が得られる理由は、以下の通りである。

【0021】

フェライト相の原材料及びホウ素化合物の全量を仮焼工程前に混合することで、原料混合物の仮焼時に、フェライト相の均一な微細組織が形成されたフェライト粒子を得ることができる。フェライト粒子中に形成された微細構造は、仮焼工程後に実施される粉碎工程（微粉碎）においても失われ難い。したがって、焼成工程においても、緻密化された理想的な微細組織が形成された焼結体（フェライト焼結磁石）を得ることができる。

10

【0022】

ホウ素は、フェライト相の原材料を構成する金属元素（希土類元素 R 、アルカリ土類金属元素 A 、 Fe 及び Co ）よりも軽い元素であるため、原料混合物又はフェライト粒子に含まれるホウ素は、他の元素に比べて、加熱又は水への溶解によって減少し易い。したがって、仮焼粉（フェライト粒子）へ添加されたホウ素化合物は、仮焼工程後の諸工程においてフェライト粒子から分離され易い。しかし、フェライト相の原材料及びホウ素化合物の全量を仮焼工程前に混合することで、仮焼工程においてホウ素化合物の全量がフェライト相の原材料と反応して、いち早くガラス成分を形成する。ガラス成分中のホウ素は、加熱によって減少し難く、水へ溶出し難いので、仮焼工程後の諸工程に伴うフェライト粒子中のホウ素の減少が抑制される。その結果、フェライト粒子におけるホウ素の均一な分布が維持され易い。そして、ホウ素が成形体全体に均一に分布した状態で成形体を焼成することにより、フェライト相の微細組織が焼結体（フェライト焼結磁石）全体において均一に形成される。

20

【0023】

以上の理由により、優れた磁気特性を有するフェライト粒子及びフェライト焼結磁石を得ることが可能となる。また、フェライト相の原材料及びホウ素化合物の全量を仮焼工程前に混合することで、仮焼工程において原材料及びホウ素化合物が互いに焼結し易いため、フェライト粒子自体の機械的強度が向上し易い。そして機械的強度に優れたフェライト粒子同士が焼成工程において焼結することにより、機械的強度に優れたフェライト焼結磁石が得られる。

30

【0024】

原料混合物全体の質量に対するホウ素化合物の割合は、ホウ酸の質量換算で、0.3 質量% よりも大きく 2.5 質量% 以下である。その結果、フェライト粒子又はフェライト焼結磁石におけるホウ素の含有量が、 B_2O_3 の質量換算で、0.1 質量% 以上 0.6 質量% 以下に調整され易く、フェライト粒子及びフェライト焼結磁石其々の磁気特性が向上し易い。フェライト粒子及びフェライト焼結磁石の磁気特性が高まり易いことから、原料混合物全体の質量に対するホウ素化合物の割合は、ホウ酸の質量換算で、0.6 質量% 以上 1.5 質量% 以下、又は 0.7 質量% 以上 1.2 質量% 以下であってもよい。同様の理由から、フェライト粒子を含む中間材料全体の質量に対するホウ素化合物の割合が、ホウ酸の質量換算で、0.3 質量% よりも大きく 2.5 質量% 以下であってよい。

40

【0025】

ホウ素化合物は、ホウ酸を含むことが好ましい。ホウ素化合物は、ホウ酸のみからなっていてよい。原料混合物がホウ酸を含むことにより、フェライト粒子及びフェライト焼結磁石其々の磁気特性（特に保磁力）が向上し易い。原料混合物へのホウ酸の添加がフェライト粒子及びフェライト焼結磁石其々の磁気特性（特に保磁力）を向上させる理由は、以下の通りである。

【0026】

水に対するホウ酸の溶解度は、水に対する酸化ホウ素の溶解度よりも高い。例えば、25℃ の水に対するホウ酸の溶解度は、5.7 g / 100 ml 程度であり、25℃ の水に対す

50

る酸化ホウ素の溶解度は、 $3.6 \text{ g} / 100 \text{ ml}$ 程度である。したがって、フェライト相の原材料及びホウ酸を水と共に混合することにより、ホウ酸は酸化ホウ素よりも原料混合物中において均一に分子レベルで分散することができる。またホウ酸の比重 ($1.5 \text{ g} / \text{cm}^3$) は、酸化ホウ素の比重 ($1.9 \text{ g} / \text{cm}^3$ 以上) よりも小さいことから、ホウ酸は酸化ホウ素に比べて攪拌混合によって容易に分散する。さらに、ホウ酸は酸化ホウ素に比べて比較的低温においても分解する。例えば、ホウ酸は 171°C で分解するが、酸化ホウ素は 450°C で分解する。したがって、未溶解のホウ酸が原料混合物中に残存していたとしても、仮焼き工程においてホウ酸は容易に分解して、ホウ素がフェライト粒子中に均一に分散し易い。

【0027】

上記のようなホウ酸と酸化ホウ素との違いがあるため、ホウ酸を用いて作製されたフェライト粒子の粒子径のばらつきが抑制される。そして、粒子径がほぼ均一であるフェライト粒子が焼結することにより、均一な微細組織がフェライト焼結磁石内に形成され易い。

【0028】

以上の理由により、原料混合物へのホウ酸の添加がフェライト粒子及びフェライト焼結磁石其々の磁気特性（特に保磁力）を向上させ易い。

【0029】

原料混合物が二酸化ケイ素を含む場合、原料混合物全体の質量に対する二酸化ケイ素の割合は、0 質量% よりも大きく 5 質量% 以下、又は 0 質量% よりも大きく 0.2 質量% 未満であってよい。原料混合物が二酸化ケイ素を含むことにより、仮焼工程においてフェライト相の原材料が焼結し易く、磁気特性に優れたフェライト粒子が得られ易い。つまり、二酸化ケイ素は焼結助剤として機能する。またはフェライト粒子を含む中間材料が二酸化ケイ素を含むことにより、焼成工程において成形体中のフェライト粒子が互いに焼結し易く、磁気特性に優れたフェライト焼結磁石が得られ易い。

【0030】

仮焼きされる前の原料混合物における二酸化ケイ素の割合が、上記の範囲内に調整されている場合、仮焼工程で得られるフェライト粒子（成形前の中間材料）に対して二酸化ケイ素は添加されなくてよい。仮焼きされる前の混合物における二酸化ケイ素の割合が、上記の範囲を外れる場合、成形される前の中間材料における二酸化ケイ素の割合が、上記の範囲内に調整されてよい。例えば、仮焼工程前の混合物へ添加された二酸化ケイ素の割合が小さすぎる場合、成形される前の中間材料に対して二酸化ケイ素を更に添加することにより、中間材料における二酸化ケイ素の割合が上記の範囲内に調整されてよい。

【0031】

各工程の詳細は以下の通りである。

【0032】

上述の通り、フェライト焼結磁石の製造方法は、混合工程、仮焼工程（加熱工程）、粉碎工程、成形工程及び焼成工程を備えてよい。上述の通り、フェライト焼結磁石の製造方法における混合工程及び仮焼工程は、フェライト粒子の製造方法に相当する。

【0033】

混合工程では、フェライト相を形成するための複数の原材料及びホウ素化合物を混合して、原料混合物を得る。

【0034】

上述の通り、フェライト相の原材料は、希土類元素 R の化合物、アルカリ土類金属元素 A の化合物、鉄 (Fe) の化合物、及びコバルト (Co) の化合物である。R は、希土類元素から選択される少なくとも一種の元素である。つまり R は、スカンジウム (Sc)、イットリウム (Y)、ランタン (La)、セリウム (Ce)、プラセオジウム (Pr)、ネオジム (Nd)、サマリウム (Sm)、ユーロピウム (Eu)、ガドリニウム (Gd)、テルビウム (Tb)、ジスプロシウム (Dy)、ホルミウム (Ho)、エルビウム (Er)、ツリウム (Tm)、イッテルビウム (Yb)、及びルテチウム (Lu) からなる群より選ばれる少なくとも一種である。A は、カルシウム以外の少なくとも一種のアルカリ土類

10

20

30

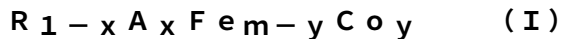
40

50

金属元素とカルシウムとの組合せ、又はカルシウムのみである。カルシウム以外のアルカリ土類金属元素は、S r 及び B a のうち少なくともいずれかであってよい。原材料は、例えば、R、A、F e 及び C o 其々の酸化物、又は焼成によりこれらの酸化物となる化合物（炭酸塩、水酸化物、又は硝酸塩等）であってよい。具体的な原材料としては、例えば S r C O₃、L a (O H)₃、F e₂ O₃、B a C O₃、C a C O₃ 及び C o₃ O₄ 等が例示される。原材料は、例えば粉末であることが好ましい。原材料の粉末の平均粒径は、例えば、原材料の配合を容易にする観点から、例えば 0.1 ~ 2.0 μm 程度であってよい。

【0035】

上記の原材料から形成されるフェライト相（マグネトプランバイト型フェライト）に含まれる金属成分は、下記一般式（I）で表される。一般式（I）中の原子比率 x（モル比）は、下記式（1）を満たす。一般式（I）中の原子比率 y（モル比）は、下記式（2）を満たす。一般式（I）中の原子比率 m（モル比）は、下記式（3）を満たす。



$$0.2 \leq x \leq 0.8 \quad (1)$$

$$0.1 \leq y \leq 0.65 \quad (2)$$

$$3 \leq m < 14 \quad (3)$$

【0036】

フェライト相（マグネトプランバイト型フェライト）は、 $R_{1-x} A_x F e_{m-y} C o_y$ の酸化物である。例えば、マグネトプランバイト型フェライトは下記式（I a）で表されてよい。下記式（I a）の x、y 及び m 其々は、上記式（I）の x、y 及び m と同じである。マグネトプランバイト型フェライトの六方晶構造が成り立つ限りにおいて、下記式（I a）における O の原子比率 z（モル比）は限定されない。z は、例えば、 $11 < z < 27$ を満たしてよい。z は 19 であってもよい。フェライト粒子又はフェライト焼結磁石の一部分において、z が 19 の近傍でばらついてよい。



【0037】

原料混合物全体の質量に対する希土類元素 R の化合物の割合は、R の酸化物の質量換算で、5.5 質量%以上 19.9 質量%以下である。R の化合物の割合が 5.5 質量%以上 19.9 質量%以下であることにより、上記一般式（I）及び（I a）中における R の原子比率（1-x）が、 $0.2 \leq 1-x \leq 0.8$ の範囲に調整され易い。

【0038】

原料混合物全体の質量に対するアルカリ土類金属元素 A の化合物の割合は、A の酸化物の質量換算で、1.7 質量%以上 7.6 質量%以下である。A の化合物の割合が 1.7 質量%以上 7.6 質量%以下であることにより、上記一般式（I）及び（I a）中における A の原子比率 x が、 $0.2 \leq x \leq 0.8$ の範囲に調整され易く、R の原子比率（1-x）が、 $0.2 \leq 1-x \leq 0.8$ の範囲に調整され易い。

【0039】

原料混合物全体の質量に対する鉄の化合物の割合は、鉄の酸化物の質量換算で、45.3 質量%以上 87.4 質量%以下である。鉄の酸化物の割合が 45.3 質量%以上 87.4 質量%以下であることにより、上記一般式（I）及び（I a）中における F e の原子比率（m-y）が、 $2.35 \leq m-y < 13.9$ の範囲に調整され易い。

【0040】

原料混合物全体の質量に対するコバルトの化合物の割合は、コバルトの酸化物の質量換算で、0.9 質量%以上 18.9 質量%以下である。コバルトの酸化物の割合が 0.9 質量%以上 18.9 質量%以下であることにより、上記一般式（I）及び（I a）中における C o の原子比率 y が $0.1 \leq y \leq 0.65$ の範囲に調整され易く、F e の原子比率（m-y）が、 $2.35 \leq m-y < 13.9$ の範囲に調整され易い。

【0041】

混合工程では、フェライト相の各原材料の配合比（質量比）が、一般式（I）で表される組成に一致するように、各原材料及びホウ素化合物が混合される。また混合工程では、原

10

20

30

40

50

料混合物全体の質量に対するホウ素化合物の割合が、ホウ酸の質量換算で、0.3質量%よりも大きく2.5質量%以下に調整される。混合された各原材料及びホウ素化合物が、湿式アトライタ、ボールミル等を用いて、0.1～20時間程度、混合・粉碎されることにより、原料混合物が得られる。混合工程では、必要に応じて、副成分の原料（元素単体又は酸化物等）が原料混合物へ配合してもよい。湿式の方法で、各原材料、ホウ素化合物及び水を混合・粉碎することより、ホウ素化合物が均一に分散した原料混合物が得られ易い。

【0042】

仮焼工程（加熱工程）では、混合工程で得られた原料混合物を仮焼する。仮焼工程により、顆粒状又は塊状の仮焼粉（粗大なフェライト粒子）が得られる。仮焼は、例えば、空気等の酸化性雰囲気中で行うことが好ましい。仮焼の温度は、1100～1400℃、1100～1300℃、又は1100～1250℃であってよい。仮焼の時間は、1秒間～10時間、又は1秒間～3時間であってよい。仮焼により得られる仮焼粉（フェライト粒子）におけるフェライト相（M相）の比率は、例えば70体積%以上であってよく、75体積%以上であってよい。このフェライト相の比率は、フェライト焼結磁石におけるフェライト相の比率と同様の方法で求められる。必要に応じて、以下の粉碎工程を実施することにより、フェライト粒子が完成される。

10

【0043】

粉碎工程では、仮焼粉（粗大なフェライト粒子）を粉碎する。粉碎工程は、例えば、仮焼粉を粗く粉碎する粗粉碎工程と、粗粉碎工程に続いて仮焼粉を更に微細に粉碎する微粉碎工程と、を有してよい。つまり、粉碎工程を2段階で行ってもよい。

20

【0044】

粗粉碎工程では、例えば、振動ミル等を用いてよい。仮焼粉の粗粉碎によって得られる粉末（粗粉碎材）の平均粒径は、0.5～5.0μmであってよい。微粉碎工程では、粗粉碎材が、さらに湿式アトライタ、ボールミル、ジェットミル等によって粉碎される。微粉碎によって得られる微粉碎材の平均粒径は、0.08～2.0μm、0.1～1.0μm、又は0.2～0.8μm程度であってよい。微粉碎材の比表面積（BET比表面積）は、7～12m²/g程度であってよい。好適な粉碎時間は、粉碎方法によって異なる。例えば湿式アトライタの場合、粉碎時間は30分間～10時間であってよい。ボールミルによる湿式粉碎の時間は10～50時間程度であってよい。

30

【0045】

フェライト粒子からフェライト焼結磁石を形成する場合、更に以下の工程が実施される。

【0046】

フェライト粒子からフェライト焼結磁石を形成する場合、粉碎工程に先立って、二酸化珪素が仮焼粉へ添加されてよい。粗粉碎工程と微粉碎工程との間の時点において、二酸化珪素が仮焼粉へ添加されてよい。

【0047】

微粉碎工程では、焼成工程で得られる焼結体（フェライト焼結磁石）の磁氣的配向度を高めるため、例えば一般式C_n(OH)_nH_{n+2}で示される多価アルコールが粗粉碎材へ添加されてよい。多価アルコール一般式中のnは、4～100、4～30、4～20又は4～12であってよい。多価アルコールとしては、例えばソルビトールが挙げられる。また、2種類以上の多価アルコールを併用してもよい。さらに、多価アルコールに加えて、他の分散剤を併用してもよい。

40

【0048】

多価アルコールの添加量は、添加の対象物（例えばフェライト粒子）に対して、0.05～5.0質量%、0.1～3.0質量%、又は0.2～2.0質量%であってよい。なお、微粉碎工程で添加した多価アルコールは、後述する焼成工程で熱分解により除去される。

【0049】

以上の工程により、フェライト粒子を含む中間材料が得られる。中間材料は、フェライト粒子に加えて、焼結助剤（二酸化珪素等）、水、多価アルコール、及び分散剤からなる群

50

より選ばれる少なくとも一種を含有してよい。中間材料は、水を含むスラリーであってもよい。

【0050】

成形工程では、フェライト粒子を含む中間材料を、磁場中で成形して、成形体を得る。成形は、乾式成形及び湿式成形のいずれの方法でも行うことができる。磁氣的配向度を高める観点からは、湿式成形が好ましい。

【0051】

湿式成形の場合、例えば上述の微粉碎工程を湿式で行うことで、フェライト粒子を含む中間材料のスラリーを得た後、このスラリーを濃縮して、湿式成形用スラリーを得る。この湿式成形用スラリーが成形される。スラリーの濃縮は、遠心分離やフィルタープレス等によって行うことができる。湿式成形用スラリーにおけるフェライト粒子（微粉碎材）の含有量は30～80質量％であってよい。スラリーにおいて、フェライト粒子を分散する分散媒としては水が好ましい。この場合、スラリーには、グルコン酸、グルコン酸塩、ソルビトール等の界面活性剤をスラリーへ添加してもよい。また、分散媒としては非水系溶媒を使用してもよい。非水系溶媒としては、トルエンやキシレン等の有機溶媒を使用することができる。この場合には、オレイン酸等の界面活性剤を非水系溶媒へ添加することが好ましい。乾燥されたフェライト粒子に分散媒等を添加することによって、湿式成形用スラリーが調製されてもよい。

【0052】

湿式成形用スラリーを磁場中で成形する場合、成形圧力は、 $9.8 \sim 49 \text{ MPa}$ ($0.1 \sim 0.5 \text{ ton/cm}^2$) 程度であってよく、印加する磁場は $398 \sim 1194 \text{ kA/m}$ ($5 \sim 15 \text{ kOe}$) 程度であってよい。

【0053】

焼成工程では、成形工程で得られた成形体を焼結させて、焼結体（フェライト焼結磁石）を得る。つまり、成形体を構成する無数のフェライト粒子（微粉碎材）が互いに焼結することにより、フェライト焼結磁石が形成される。

【0054】

焼成は、大気等の酸化性雰囲気中で行うことができる。焼成温度は、 $1050 \sim 1270^\circ\text{C}$ 、又は $1080 \sim 1240^\circ\text{C}$ であってよい。焼成時間（焼成温度を維持する時間）は、 $0.5 \sim 3$ 時間程度であってよい。

【0055】

湿式成形によって作製された成形体を十分に乾燥させずに焼成した場合、急激な加熱により、成形体中の分散媒等が激しく揮発して成形体にクラックが発生する可能性がある。クラックを抑制する観点から、成形体を上記の焼成温度で加熱する前に、例えば室温から 100°C 程度まで、 0.5°C/分 程度の昇温速度で加熱して成形体を十分に乾燥させてよい。成形体が界面活性剤（分散剤）等を含む場合、例えば、 $100 \sim 500^\circ\text{C}$ 程度の温度範囲において、 2.5°C/分 程度の昇温速度で成形体を加熱して、界面活性剤（分散剤）等を除去してよい（脱脂処理）。これらの加熱処理は、焼成工程の開始時に実施されてよく、焼成工程よりも前に別工程として実施されてもよい。

【0056】

以上の工程により、フェライト焼結磁石が完成される。

【0057】

上述の成形工程及び焼成工程は、以下の手順で行われてもよい。

【0058】

成形工程は、CIM（Ceramic Injection Molding（セラミック射出成形）成形法、又は、PIM（Powder Injection Molding、粉末射出成形の一種）で行ってもよい。CIM成形法では、まず、乾燥させた中間材料（フェライト粒子）をバインダ樹脂とともに加熱混練してペレットを形成する。このペレットを、磁場が印加された金型内で射出成形して予備成形体を得る。この予備成形体を脱バインダ処理することによって成形体を得られる。より詳細な手順を以下に説明する。

【0059】

湿式粉碎で得られた中間材料のスラリー（フェライト粒子を含むスラリー）を乾燥させる。乾燥温度は、好ましくは80～150℃、より好ましくは100～120℃である。乾燥時間は、好ましくは1～40時間、より好ましくは5～25時間である。乾燥後の中間材料（フェライト粒子）の一次粒子の平均粒径は、好ましくは0.08～2μm、より好ましくは0.1～1μmである。

【0060】

乾燥後の中間材料を、バインダ樹脂、ワックス類、滑剤、可塑剤、及び昇華性化合物等の有機成分と共に混練し、ペレタイザなどで、ペレットに成形する。成形体中の有機成分の割合は、好ましくは35～60体積%、より好ましくは40～55体積%である。混練は、例えば、ニーダーなどで行えばよい。ペレタイザとしては、例えば、2軸1軸押出機が用いられる。混練及びペレット成形は、使用する有機成分の熔融温度に応じて、加熱しながら実施してもよい。

10

【0061】

バインダ樹脂としては、熱可塑性樹脂などの高分子化合物が用いられる。熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン酢酸ビニル共重合体、アタクチックポリプロピレン、アクリルポリマー、ポリスチレン、及びポリアセタール等が挙げられる。

【0062】

ワックス類としては、カルナバワックス、モンタンワックス、蜜蝋などの天然ワックス以外に、パラフィンワックス、ウレタン化ワックス、及びポリエチレングリコール等の合成ワックスが用いられる。

20

【0063】

滑剤としては、例えば、脂肪酸エステル等が挙げられる。可塑剤としては、例えば、フタル酸エステルが挙げられる。

【0064】

バインダ樹脂の添加量は、フェライト粒子100質量%に対して、好ましくは3～20質量%である。ワックス類の添加量は、フェライト粒子100質量%に対して、好ましくは3～20質量%である。滑剤の添加量は、フェライト粒子100質量%に対して、好ましくは0.1～5質量%である。可塑剤の添加量は、バインダ樹脂100質量%に対して、好ましくは0.1～5質量%である。

30

【0065】

次に、磁場射出成形装置を用いて、ペレットを金型内に射出して成形する。ペレットが金型への射出前に、金型は閉じられ、金型の内部にキャビティが形成された状態で磁場が金型へ印加される。押出機の内部で、ペレットは160～230℃に加熱熔融され、スクリーンにより金型のキャビティ内に射出される。金型の温度は、20～80℃であってよい。金型へ印加される磁場は398～1592kA/m（5～20kOe）であってよい。このような射出成形により、予備成形体を得られる。

【0066】

得られた予備成形体を、大気中又は窒素中において100～600℃の温度で熱処理して、脱バインダ処理を行って成形体を得る。複数種の有機成分を使用している場合、脱バインダ処理を複数回に分けて実施してもよい。

40

【0067】

焼成工程では、脱バインダ処理を経た成形体を大気中で焼結して、フェライト焼結磁石を得る。焼成温度は、好ましくは1100～1250℃、より好ましくは1160～1230℃の温度であってよく、焼成時間は0.2～3時間程度であってよい。

【0068】

（ボンド磁石の製造方法）

本実施形態におけるボンド磁石の製造方法は、上述の方法で製造されたフェライト粒子と樹脂とを含む成形体を作製する工程と、成形体中の樹脂を硬化して、ボンド磁石を得る工

50

程と、を備える。例えば、上記の成形工程によって作製された成形体に熱硬化性樹脂を含浸させ、成形体中の熱硬化性樹脂を加熱により硬化することにより、ボンド磁石が得られる。ボンド磁石の製造方法の詳細は、以下の通りである。

【0069】

成形体を、容器内の樹脂含有溶液へ浸漬する。成形体及び樹脂含有溶液が容れられた容器を密閉する。密閉された容器内の減圧によって、成形体を脱泡して、樹脂含有溶液を成形体内の空隙内へ浸透させる。脱泡後の成形体を樹脂含有溶液中から取り出し、成形体の表面に付着した余剰の樹脂含有溶液を取り除く。余剰の樹脂含有溶液を取り除くには遠心分離機などを用いればよい。

【0070】

成形体を樹脂含有溶液に浸漬する前に、成形体及び溶剤（トルエン等）を密閉容器中に入れて、容器内を減圧しながら、成形体を溶剤に浸漬することによって、成形体の脱泡が促進される。その結果、樹脂が成形体へ浸透し易く、成形体中の空隙が減り易い。

【0071】

ボンド磁石の製造方法は、上述の例に限定されない。例えば、フェライト粒子と樹脂とを混合してコンパウンドを作製し、コンパウンドを磁場中で成形して、フェライト粒子と樹脂とを含む成形体を作製してもよい。

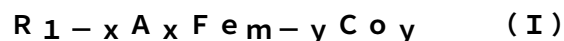
【0072】

（フェライト焼結磁石及びフェライト粒子）

フェライト焼結磁石及びフェライト粒子は、マグネトプランバイト型の結晶構造を有するフェライト相（主相）を有する。主相とは、フェライト焼結磁石及びフェライト粒子に最も多く含まれる結晶相をいう。フェライト焼結磁石及びフェライト粒子は、主相とは異なる結晶相（異相）を有していてもよい。

【0073】

フェライト相に含まれる金属成分は、下記一般式（I）で表され、且つ下記式（1）、（2）及び（3）を満たす。一般式（I）における x 、 y 及び m は原子比率（モル比）である。上述の通り、一般式（I）中の R は、希土類元素から選ばれる少なくとも一種の元素である。 A は、 Sr 及び Ba から選択される少なくとも一種と Ca との組合せ、又は、 Ca のみである。



$$0.2 \leq x \leq 0.8 \quad (1)$$

$$0.1 \leq y \leq 0.65 \quad (2)$$

$$3 \leq m < 14 \quad (3)$$

【0074】

一般式（I）における x は、保磁力を一層高くする観点から、0.7以下であってもよく、0.6以下であってもよい。同様の観点から、 x は、0.25以上であってもよく、0.3以上であってもよい。一般式（I）における y は、磁気特性を一層高くする観点から、0.6以下であってもよく、0.5以下であってもよい。一般式（I）における y は、同様の観点から、0.15以上であってもよく、0.2以上であってもよい。一般式（I）における m は、保磁力を一層高くする観点から、4以上であってもよく、5以上であってもよい。一般式（I）における m は、同様の観点から、13以下であってもよく、12以下であってもよい。

【0075】

磁気特性を高くする観点から、一般式（I）における A は、主成分として Ca 及び Sr を含むことが好ましい。 A は Ca 及び Sr のみからなってもよい。磁気特性を高くする観点から、 A は Ca のみであってもよい。

【0076】

フェライト相に含まれる金属成分は、下記一般式（II）で表されてもよく、且つ下記式（4）、（5）、（6）及び（7）を満たしてよい。一般式（II）における x_1 、 x_2 、 y 及び m は、原子比率（モル比率）を示している。上記一般式（I）における x は、下

10

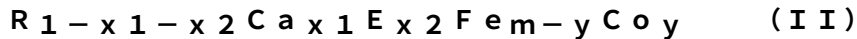
20

30

40

50

記一般式 (I I) における $x_1 + x_2$ に等しい。一般式 (I I) 中の R は、希土類元素から選ばれる少なくとも一種の元素である。一般式 (I I) 中の E は、Sr 及び Ba からなる群より選択される少なくとも一種の元素を示す。



$$0.1 \leq x_1 \leq 0.65 \quad (4)$$

$$0 \leq x_2 < 0.5 \quad (5)$$

$$0.1 \leq y \leq 0.65 \quad (6)$$

$$3 \leq m < 14 \quad (7)$$

【0077】

一般式 (I I) における x_1 は、保磁力を一層高くする観点から、0.7 以下であってもよく、0.6 以下であってもよい。 x_1 は、同様の観点から、0.20 以上であってもよく、0.3 以上であってもよい。一般式 (I I) における x_2 は、保磁力を一層高くする観点から、0.4 以下であってもよく、0.3 以下であってもよい。一般式 (I I) における x_2 は、0 であってもよい。

【0078】

一般式 (I I) における y は、磁気特性を一層高くする観点から、0.6 以下であってもよく、0.5 以下であってもよい。一般式 (I I) における y は、同様の観点から、0.15 以上であってもよく、0.2 以上であってもよい。一般式 (I I) における m は、保磁力を一層高くする観点から、4 以上であってもよく、5 以上であってもよい。一般式 (I I) における m は、同様の観点から、13 以下であってもよく、12 以下であってもよい。

【0079】

一般式 (I) 及び一般式 (I I) に示される各元素の含有比率は、蛍光 X 線分析によって測定することができる。なお、一般式 (I) 及び一般式 (I I) に示される各元素の含有比率は、上述の原料混合物における各元素の割合と同一であってもよい。ホウ素の含有量は、誘導結合プラズマ発光分光分析 (ICP 発光分光分析) で測定することができる。

【0080】

フェライト焼結磁石及びフェライト粒子における B の含有量は B_2O_3 換算で 0.1 ~ 0.6 質量% である。磁気特性を一層高くする観点から、B の上記含有量は、0.5 質量% 以下であってもよく、0.4 質量% 以下であってもよい。同様の観点から、B の上記含有量は、0.1 質量% 以上であってもよく、0.14 質量% 以上であってもよく、0.2 質量% を超えていてもよい。

【0081】

一般式 (I I) における E は、磁気特性を高くする観点から、主成分として Sr を含むことが好ましい。E は Sr のみからなってもよい。

【0082】

一般式 (I) 及び一般式 (I I) における R は、La、Ce、Pr、Nd 及び Sm からなる群より選ばれる一種以上の元素を含むことが好ましい。R は La を含むことがより好ましい。R は La のみからなってもよい。

【0083】

フェライト焼結磁石及びフェライト粒子は、上記一般式 (I) 又は (I I) に示されていない元素を副成分として含有していてもよい。副成分としては、Si 及び Na が挙げられる。これらの副成分は、例えば、それぞれの酸化物又は複合酸化物としてフェライト焼結磁石及びフェライト粒子に含まれてよい。

【0084】

フェライト焼結磁石及びフェライト粒子における Si の含有量は、 SiO_2 の質量換算で、例えば、0 ~ 3 質量% であってもよい。

【0085】

フェライト焼結磁石及びフェライト粒子における Na の含有量は、 Na_2O の質量換算で、例えば 0 ~ 0.2 質量%、0.01 ~ 0.15 質量%、又は 0.02 ~ 0.1 質量% で

10

20

30

40

50

あってよい。

【0086】

フェライト焼結磁石及びフェライト粒子は、上述の成分の他に、不可避免的な不純物を含んでよい。この不可避免的な不純物としては、例えば、Ti（チタン）、Cr（クロム）、Mn（マンガン）、Mo（モリブデン）、V（バナジウム）及びAl（アルミニウム）等が挙げられる。これらの成分はそれぞれの酸化物又は複合酸化物としてフェライト焼結磁石及びフェライト粒子に含まれていてよい。上述の副成分、不純物及び不可避免的成分の含有量は、蛍光X線分析、又はICP発光分光分析によって測定することができる。副成分は、フェライト焼結磁石におけるフェライト結晶粒の粒界に偏析して異相を構成してもよい。

【0087】

フェライト焼結磁石におけるフェライト粒子（フェライト相を含む結晶粒）の平均粒径は、例えば5 µm以下であってもよく、4.0 µm以下であってもよく、0.5～3.0 µmであってもよい。フェライト粒子が上記の平均粒径を有することで、保磁力を一層高くすることができる。フェライト焼結磁石中の結晶粒の平均粒径は、透過型電子顕微鏡（TEM）又は走査型電子顕微鏡（SEM）で、フェライト焼結磁石の断面を観察することにより、測定されてよい。数百個の結晶粒を含む断面の画像の画像処理により、断面に含まれる結晶粒の個数基準の粒径分布が測定される。この粒径分布から、結晶粒の個数基準の平均粒径が算出される。粉末状のフェライト粒子の平均粒子径は、例えば、粒度分布計によって測定されてよい。

【0088】

フェライト焼結磁石の形状は、限定されない。例えば、フェライト焼結磁石の形状は、アークセグメント形、C字形、瓦形、平板、多角柱、円柱及び弓形からなる群より選ばれる一種であってよい。

【0089】

（ボンド磁石）

ボンド磁石は、硬化された樹脂と、樹脂を介して互いに結着された複数の上記フェライト粒子とを含有する。樹脂は、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、多芳香族環を有する樹脂、トリアジン環を有する樹脂（トリアジン樹脂）等の熱硬化性樹脂であってよい。樹脂は、スチレン系、オレフィン系、ウレタン系、ポリエステル系、ナイロン等のポリアミド系のエラストマー、アイオノマー、エチレンプロピレン共重合体（EPM）、エチレンーエチルアクリレート共重合体等の熱可塑性樹脂を含んでもよい。

【0090】

ボンド磁石における樹脂の含有率は、優れた磁気特性と、優れた機械的強度（磁石の形状の安定性）とを両立させる観点から、例えば0.5～10質量%であってもよく、1～5質量%であってもよい。同様の観点から、ボンド磁石におけるフェライト粒子の含有率は、例えば90～99.5質量%であってもよく、95～99質量%であってもよい。ボンド磁石における樹脂の含有率は、製造に用いる樹脂含溶液中の樹脂の濃度、又は成形工程における成形圧力等によって調整される。

【0091】

ボンド磁石の形状は、限定されない。例えば、ボンド磁石の形状は、アークセグメント形、C字形、瓦形、平板、多角柱、円柱及び弓形からなる群より選ばれる一種であってよい。

【0092】

（フェライト焼結磁石及びボンド磁石の用途）

本実施形態に係るフェライト焼結磁石及びボンド磁石は、磁気特性に優れている。したがって、小型のモータ及び発電機へ搭載するために、フェライト焼結磁石及びボンド磁石が薄く加工されたとしても、モータ又は発電機等の効率を十分に高水準に維持することができる。

【0093】

フェライト焼結磁石及びボンド磁石は、例えば、フューエルポンプ用、パワーウィンドウ用、ABS（アンチロック・ブレーキ・システム）用、ファン用、ワイパ用、パワーステ

10

20

30

40

50

アリング用、アクティブサスペンション用、スタータ用、ドアロック用、電動ミラー用等の自動車用モータの磁石として使用することができる。また、FDDスピンドル用、VTRキャプスタン用、VTR回転ヘッド用、VTRリール用、VTRローディング用、VTRカメラキャプスタン用、VTRカメラ回転ヘッド用、VTRカメラズーム用、VTRカメラフォーカス用、ラジカセ等キャプスタン用、CD/DVD/MDスピンドル用、CD/DVD/MDローディング用、CD/DVD光ピックアップ用等のOA/AV機器用モータの磁石として、フェライト焼結磁石及びボンド磁石を使用することができる。さらに、エアコンコンプレッサー用、冷凍庫コンプレッサー用、電動工具駆動用、ドライヤーファン用、シェーバー駆動用、電動歯ブラシ用等の家電機器用モータの磁石としても、フェライト焼結磁石及びボンド磁石を使用することができる。さらにまた、ロボット軸、関節駆動用、ロボット主駆動用、工作機器テーブル駆動用、工作機器ベルト駆動用等のFA機器用モータの磁石としても、フェライト焼結磁石及びボンド磁石を使用することができる。

10

【実施例】

【0094】

本発明の内容を実施例及び比較例を参照してさらに詳細に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

【0095】

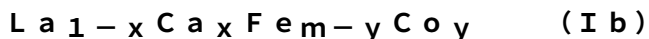
(実施例1)

〔フェライト焼結磁石の製造〕

<混合工程>

20

フェライト相用の原材料として、水酸化ランタン ($\text{La}(\text{OH})_3$)、炭酸カルシウム (CaCO_3)、酸化鉄 (Fe_2O_3) 及び酸化コバルト (Co_3O_4) を用いた。ホウ素化合物としては、ホウ酸 (H_3BO_3) を用いた。上記の原材料とホウ酸と二酸化ケイ素 (SiO_2) と水を、湿式アトライタを用いて10分間混合及び粉碎することにより、原料混合物のスラリーを調製した。下記の通り、原料混合物中の各原材料の割合は、下記表1に示されるフェライト相の金属成分(下記一般式(Ib)で表される成分)の組成に一致するように調整された。混合工程では、フェライト焼結磁石の製造に用いるフェライト相の原材料及びホウ酸の全量が混合された。



【0096】

30

原料混合物中のランタン化合物 ($\text{La}(\text{OH})_3$) の割合は、 La_2O_3 の質量換算で、下記表1に示される値(単位:質量%)に調整された。

原料混合物中のカルシウム化合物 (CaCO_3) の割合は、 CaO の質量換算で、下記表1に示される値(単位:質量%)に調整された。

原料混合物中の鉄化合物の割合は、 Fe_2O_3 の質量換算で、下記表1に示される値(単位:質量%)であった。

原料混合物中のコバルト化合物の割合は、 Co_3O_4 の質量換算で、下記表1に示される値(単位:質量%)に調整された。

原料混合物中のホウ素化合物の割合は、 H_3BO_3 の質量換算で、下記表1に示される値(単位:質量%)に調整された。

40

原料混合物中の二酸化ケイ素の割合 (SiO_2 の添加量) は、0.19質量%に調整された。

【0097】

<仮焼工程(加熱工程)>

上記の原料混合物のスラリーを乾燥した後、大気中において原料混合物を1280℃で2時間保持することにより、仮焼粉(粗いフェライト粒子)を得た。

【0098】

<粉碎工程>

粗粉碎工程では、仮焼粉を、振動ミルで9分間粉碎して、仮焼粉のBET比表面積を0.5~1.5 m^2/g の範囲に調整した。粗粉碎工程に続く微粉碎工程では、仮焼粉を湿式

50

ボールミルで更に36時間混合・粉碎して、フェライト粒子を含むスラリー（中間材料のスラリー）を得た。スラリー中のフェライト粒子のBET比表面積は $7 \sim 10 \text{ m}^2 / \text{g}$ の範囲内であった。

【0099】

<成形工程>

中間材料のスラリーを遠心分離機で脱水して、スラリー中の固形分の濃度を73～76%の範囲内に調整して、湿式成形用のスラリーを得た。このスラリーを10kOeの印加磁場中で成形して、円柱状の成形体を得た。成形には、湿式磁場成型機を使用した。

【0100】

<焼成工程>

成形体を、大気中において室温で十分に乾燥した。乾燥された成形体を大気中において1175℃で1時間保持することにより、焼結体（実施例1のフェライト焼結磁石）を得た。

【0101】

[組成の分析]

XRF法及びICP発光分光法により、フェライト焼結磁石の組成を分析した。実施例1のフェライト焼結磁石に含まれる金属成分の組成は、上記一般式(1b)で表され、一般式(1b)中の $1-x$ 、 x 、 $m-y$ 及び y 其々の値は、下記表1に示される値であることが確認された。フェライト焼結磁石中のホウ素の含有量は、ホウ酸(H_3BO_3)の質量換算で、下記表1に示される値であることが確認された。フェライト焼結磁石中のホウ素の含有量は、ホウ素単体(B)の質量換算で、下記表1に示される値であることが確認された。フェライト焼結磁石中のホウ素の含有量は、酸化ホウ素(B_2O_3)の質量換算で、下記表1に示される値であることが確認された。

【0102】

[磁気特性の測定]

円柱状のフェライト焼結磁石の上面及び下面を加工した後、フェライト焼結磁石の残留磁束密度 B_r (mT)及び保磁力 $H_c J$ (kA/m)を測定した。測定には、最大印加磁場が25kOeであるB-Hトレースを用いた。実施例1の B_r 、 $H_c J$ 及び角形比($H_k / H_c J$)は下記表1に示される。

【0103】

(実施例2～9)

実施例2～9其々の原料混合物中のホウ酸の割合(H_3BO_3 の添加量)は、下記表1に示される値(単位:質量%)に調整された。原料混合物中のホウ酸の割合を除いて、実施例1と同様の方法で、実施例2～9其々のフェライト焼結磁石を作製した。実施例1と同様の方法で、実施例2～9其々のフェライト焼結磁石の組成を分析した。分析の結果は、下記表1に示される。実施例1と同様の方法で、実施例2～9其々のフェライト焼結磁石の磁気特性を測定した。測定の結果は、下記表1に示される。

【0104】

(実施例10～13、比較例1～4)

実施例10～13及び比較例1～4では、原料混合物中の各原材料(La化合物、Ca化合物、Fe化合物、Co化合物)及びホウ酸の割合が、下記表1に示される各値(単位:質量%)に調整された。原料混合物の組成を除いて、実施例1と同様の方法で、実施例10～13及び比較例1～4其々のフェライト焼結磁石を作製した。実施例1と同様の方法で、実施例10～13及び比較例1～4其々のフェライト焼結磁石の組成を分析した。分析の結果は、下記表1に示される。実施例1と同様の方法で、実施例10～13及び比較例1～4其々のフェライト焼結磁石の磁気特性を測定した。測定の結果は、下記表1に示される。

【0105】

(実施例14～16)

実施例14～16では、ホウ素化合物として、ホウ酸ではなく酸化ホウ素を用いた。実施例14～16其々の原料混合物中の酸化ホウ素の割合は、 H_3BO_3 の質量換算で、下記

10

20

30

40

50

表 1 に示される値（単位：質量％）に調整された。これらの事項を除いて、実施例 1 と同様の方法で、実施例 1 4 ～ 1 6 其々のフェライト焼結磁石を作製した。実施例 1 と同様の方法で、実施例 1 4 ～ 1 6 其々のフェライト焼結磁石の組成を分析した。分析の結果は、下記表 1 に示される。実施例 1 と同様の方法で、実施例 1 4 ～ 1 6 其々のフェライト焼結磁石の磁気特性を測定した。測定の結果は、下記表 1 に示される。Br は 3 1 0 mT 以上であり、且つ H c J は 4 7 8 k A / m 以上であり、且つ H k / H c J は 7 1 % 以上であることが好ましい。

【 0 1 0 6 】

【表 1】

表 1	原料混合物				フェライト焼結磁石									
	フェライト相用の各原材料				ホウ素源				フェライト相の金属成分					
	La 化合物	Ca 化合物	Fe 化合物	Co 化合物	組成	添加量 質量%	La _{1-x} Ca _x Fe _{m-y} Co _y				ホウ素 (換算値)			磁気特性
	質量%	質量%	質量%	質量%			1-x	x	m-y	y	H ₃ BO ₃ 質量%	B 質量%	B ₂ O ₃ 質量%	
実施例 1	10.6	5.5	80	3.9	-	0.31	0.4	0.6	9.2	0.3	0.180	0.031	0.101	Hk/HcJ %
実施例 2	10.6	5.5	80	3.9	ホウ酸	0.41	0.4	0.6	9.2	0.3	0.205	0.036	0.115	500
実施例 3	10.6	5.5	80	3.9	ホウ酸	0.6	0.4	0.6	9.2	0.3	0.282	0.049	0.159	455
実施例 4	10.6	5.5	80	3.9	ホウ酸	0.7	0.4	0.6	9.2	0.3	0.315	0.055	0.177	507
実施例 5	10.6	5.5	80	3.9	ホウ酸	0.95	0.4	0.6	9.2	0.3	0.409	0.071	0.230	455
実施例 6	10.6	5.5	80	3.9	ホウ酸	1.05	0.4	0.6	9.2	0.3	0.446	0.078	0.251	458
実施例 7	10.6	5.5	80	3.9	ホウ酸	1.2	0.4	0.6	9.2	0.3	0.510	0.089	0.287	540
実施例 8	10.6	5.5	80	3.9	ホウ酸	1.5	0.4	0.6	9.2	0.3	0.638	0.111	0.359	538
実施例 9	10.6	5.5	80	3.9	ホウ酸	2.5	0.4	0.6	9.2	0.3	1.063	0.186	0.598	525
実施例 10	5.5	7.6	82.8	4.1	ホウ酸	0.8	0.2	0.8	9.2	0.3	0.340	0.059	0.191	457
比較例 1	5.2	7.7	83	4.1	ホウ酸	0.8	0.19	0.81	9.2	0.3	0.340	0.059	0.191	450
実施例 11	19.9	1.7	74.7	3.7	ホウ酸	0.8	0.8	0.2	9.2	0.3	0.340	0.059	0.191	500
比較例 2	20.3	1.6	74.4	3.7	ホウ酸	0.8	0.82	0.19	9.2	0.3	0.340	0.059	0.191	310
実施例 12	23.6	12.2	45.3	18.9	ホウ酸	0.8	0.4	0.6	2.35	0.65	0.340	0.059	0.191	290
比較例 3	23.6	12.2	44.8	19.4	ホウ酸	0.8	0.4	0.6	2.33	0.67	0.340	0.059	0.191	340
実施例 13	7.7	4.0	87.4	0.9	ホウ酸	0.8	0.4	0.6	13.8	0.1	0.340	0.059	0.191	570
比較例 4	7.6	3.9	87.6	0.9	ホウ酸	0.8	0.4	0.6	14	0.099	0.340	0.059	0.191	280
実施例 14	10.6	5.5	80	3.9	酸化ホウ素	0.5	0.4	0.6	9.2	0.3	0.213	0.037	0.120	410
実施例 15	10.6	5.5	80	3.9	酸化ホウ素	1	0.4	0.6	9.2	0.3	0.425	0.074	0.239	320
実施例 16	10.6	5.5	80	3.9	酸化ホウ素	1.5	0.4	0.6	9.2	0.3	0.638	0.111	0.359	521
														66
														76
														78
														79

【 0 1 0 7 】

(比較例 2 1 及び 2 2)

比較例 2 1 及び 2 2 で用いた各原材料（水酸化ランタン、炭酸カルシウム、酸化鉄及び酸化コバルト）の質量は、実施例 5 で用いた各原材料の質量と同じであった。

【0108】

比較例 2 1 で用いたホウ酸の全量は、比較例 2 1 の原料混合物の質量全体に対して 1.0 質量%であった。ただし、比較例 2 1 の混合工程では、1.0 質量%のホウ酸のうち、0.5 質量%のホウ酸が原料混合物へ添加された。残りの 0.5 質量%のホウ酸は、仮焼き工程後の微粉碎工程において、仮焼粉（フェライト粒子）へ添加された。

【0109】

比較例 2 2 で用いたホウ酸の全量は、比較例 2 2 の原料混合物の質量全体に対して 1.0 質量%であった。ただし、比較例 2 2 の混合工程では、ホウ酸を原料混合物へ添加しなかった。比較例 2 2 の場合、仮焼き工程後の微粉碎工程において、ホウ酸の全量が仮焼粉（フェライト粒子）へ添加された。

【0110】

上記のホウ酸の添加のタイミングを除いて実施例 5 と同様の方法で、比較例 2 1 及び 2 2 其々のフェライト焼結磁石を作製した。実施例 1 と同様の方法で、比較例 2 1 及び 2 2 其々のフェライト焼結磁石の組成を分析した。比較例 2 1 及び 2 2 其々のフェライト相の金属成分の組成は、実施例 5 のフェライト相の金属成分の組成と同じであった。比較例 2 1 及び 2 2 其々のフェライト焼結磁石中のホウ素の含有量は、ホウ酸（ H_3BO_3 ）の質量換算で、下記表 2 に示される値であった。実施例 1 と同様の方法で、比較例 2 1 及び 2 2 其々のフェライト焼結磁石の磁気特性を測定した。測定の結果は、下記表 2 に示される。

【0111】

10

20

30

40

50

【表 2】

表2	ホウ酸の添加量		フェライト焼結磁石			
			ホウ素(換算値)		磁気特性	
	混合工程 質量%	仮焼工程後 質量%	H ₃ BO ₃ 質量%	Br mT	HcJ kA/m	Hk/HcJ %
実施例5	0.95	0	0.409	458	540	81
実施例6	1.05	0	0.446	456	538	80
比較例21	0.5	0.5	0.380	437	470	70
比較例22	0	1	0.330	435	400	60

【0112】

(比較例31～34)

比較例31～34で用いた各原材料（水酸化ランタン、炭酸カルシウム、酸化鉄及び酸化コバルト）の質量は、実施例5で用いた各原材料の質量と同じであった。比較例31～34で用いたホウ酸の質量も、実施例5で用いたホウ酸の質量と同じであった。

【0113】

比較例31の混合工程では、酸化鉄の全量（100質量部）のうち、50質量部の酸化鉄が原料混合物へ添加された。残りの50質量部の酸化鉄は、仮焼き工程後の微粉碎工程において、仮焼粉（フェライト粒子）へ添加された。

【0114】

比較例32の混合工程では、酸化コバルトを原料混合物へ添加しなかった。比較例32の場合、仮焼き工程後の微粉碎工程において、酸化コバルトの全量（100質量部）が仮焼粉（フェライト粒子）へ添加された。

【0115】

比較例33の混合工程では、水酸化ランタンを原料混合物へ添加しなかった。比較例33の場合、仮焼き工程後の微粉碎工程において、水酸化ランタンの全量（100質量部）が仮焼粉（フェライト粒子）へ添加された。

【0116】

比較例34の混合工程では、炭酸カルシウムを原料混合物へ添加しなかった。比較例34の場合、仮焼き工程後の微粉碎工程において、炭酸カルシウムの全量（100質量部）が

仮焼粉（フェライト粒子）へ添加された。

【0117】

上記のフェライト相用の各原材料の添加のタイミングを除いて実施例5と同様の方法で、比較例31～34其々のフェライト焼結磁石を作製した。実施例1と同様の方法で、比較例31～34其々のフェライト焼結磁石の組成を分析した。比較例31～34其々のフェライト相の金属成分の組成は、実施例5のフェライト相の金属成分の組成と同じであった。比較例31～34其々のフェライト焼結磁石中のホウ素の含有量は、ホウ酸（ H_3BO_3 ）の質量換算で、実施例5と同じであった。比較例31～34其々のフェライト焼結磁石中のホウ素の含有量は、ホウ素単体（B）の質量換算で、実施例5と同じであった。比較例31～34其々のフェライト焼結磁石中のホウ素の含有量は、酸化ホウ素（ B_2O_3 ）の質量換算で、実施例5と同じであった。実施例1と同様の方法で、比較例31～34其々のフェライト焼結磁石の磁気特性を測定した。測定の結果は、下記表3に示される。

【0118】

10

20

30

40

50

【表 3】

表 3	混合工程						仮焼工程後						磁気特性		
	La(OH) ₃	CaCO ₃	Fe ₂ O ₃	Co ₃ O ₄	H ₃ BO ₃	La(OH) ₃	CaCO ₃	Fe ₂ O ₃	Co ₃ O ₄	Br	HcJ	Hk/HcJ			
	質量部	質量部	質量部	質量部	質量部	質量部	質量部	質量部	質量部	mT	kA/m	%			
実施例5	100	100	100	100	100	0	0	0	0	458	540	81			
比較例31	100	100	50	100	100	0	0	50	0	445	420	66			
比較例32	100	100	100	0	100	0	0	0	100	437	470	70			
比較例33	0	100	100	100	100	100	0	0	0	300	490	70			
比較例34	100	0	100	100	100	0	100	0	0	435	440	69			

【産業上の利用可能性】

【0119】

本発明によれば、磁気特性に優れたフェライト粒子、フェライト焼結磁石及びボンド磁石が提供される。本発明に係るフェライト焼結磁石又は上記ボンド磁石は、例えば、モータ用の永久磁石に適用される。

10

20

30

40

50

フロントページの続き

(72)発明者 池田 真規
東京都港区芝浦三丁目9番1号 TDK株式会社内

(72)発明者 村▲瀬▼ 琢
東京都港区芝浦三丁目9番1号 TDK株式会社内

審査官 久保田 昌晴

(56)参考文献 特開2012-209295 (JP, A)
特開2017-126719 (JP, A)
特開2002-353020 (JP, A)
特開平05-182820 (JP, A)
特開2002-313617 (JP, A)
特開2011-213575 (JP, A)
国際公開第2011/001831 (WO, A1)
国際公開第2007/060757 (WO, A1)
国際公開第2007/077811 (WO, A1)
国際公開第2008/105449 (WO, A1)

(58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)
H01F 1/10-1/117
C01G 49/00-49/08
C04B 35/26-35/40
C01B 35/12