

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第6424754号
(P6424754)

(45) 発行日 平成30年11月21日(2018.11.21)

(24) 登録日 平成30年11月2日(2018.11.2)

(51) Int.Cl.

| | |
|------------|-----------|
| H01F 41/02 | (2006.01) |
| B22F 3/035 | (2006.01) |
| B22F 3/00 | (2006.01) |

F 1

| | |
|------|-------|
| H01F | 41/02 |
| B22F | 3/035 |
| B22F | 3/00 |

| |
|---|
| G |
| E |
| F |

請求項の数 2 (全 10 頁)

(21) 出願番号

特願2015-138220 (P2015-138220)

(22) 出願日

平成27年7月10日 (2015.7.10)

(65) 公開番号

特開2017-22248 (P2017-22248A)

(43) 公開日

平成29年1月26日 (2017.1.26)

審査請求日

平成29年2月9日 (2017.2.9)

(73) 特許権者 000003207

トヨタ自動車株式会社

愛知県豊田市トヨタ町1番地

(74) 代理人 100091096

弁理士 平木 祐輔

(74) 代理人 100105463

弁理士 関谷 三男

(74) 代理人 100129861

弁理士 石川 滉治

(72) 発明者 犬塚 智憲

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

(72) 発明者 加納 彰

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】成形体の製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

ダイとダイの内部で摺動する上パンチおよび下パンチとから構成され、ダイと上パンチと下パンチでキャビティを形成する成形型において、ダイのキャビティに対向するキャビティ面に黒鉛系潤滑剤を塗布する第1のステップ、

下パンチのキャビティに対向するキャビティ面にバインダを含まない黒鉛系粉末を配設して黒鉛系粉末層を形成し、該黒鉛系粉末層の上に磁石用粉末を充填して磁石用粉末体を形成し、該磁石用粉末体の上にバインダを含まない黒鉛系粉末を配設して黒鉛系粉末層を形成する第2のステップ、

ダイのキャビティ面に塗布された黒鉛系潤滑剤および上下の黒鉛系粉末層で囲まれた磁石用粉末体を加熱しながら下パンチと上パンチで加圧成形して成形体を製造し、該成形体を成形型から取り出す第3のステップからなる成形体の製造方法。

【請求項 2】

第3のステップにおいて、加圧成形する際の圧力が50MPa以上に設定されている請求項1に記載の成形体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、希土類磁石前駆体である成形体の製造方法に関するものである。

【背景技術】

10

20

【0002】

ランタノイド等の希土類元素を用いた希土類磁石は永久磁石とも称され、その用途は、ハードディスクやMRIを構成するモータのほか、ハイブリッド車や電気自動車等の駆動用モータなどに用いられている。

【0003】

この希土類磁石の磁石性能の指標として残留磁化（残留磁束密度）と保磁力を挙げることができるが、モータの小型化や高電流密度化による発熱量の増大に対し、使用される希土類磁石にも耐熱性に対する要求は一層高まっており、高温使用下で磁石の磁気特性を如何に保持できるかが当該技術分野での重要な研究課題の一つとなっている。

【0004】

10

希土類磁石としては、組織を構成する結晶粒（主相）のスケールが3~5μm程度の一般的な焼結磁石のほか、結晶粒を50nm~300nm程度のナノスケールに微細化したナノ結晶磁石がある。

【0005】

20

希土類磁石の製造方法の一例を概説すると、たとえばNd-Fe-B系の金属溶湯を急冷凝固して微粉末（磁石用粉末）を製作し、ダイとダイの内部で摺動する上パンチおよび下パンチとから構成された成形型のキャビティに磁石用粉末を充填し、加圧成形しながら成形体を製造する。次いで、成形体を高温雰囲気下で圧縮し、緻密化させて焼結体を製造し、この焼結体に磁気的異方性を付与するべく熱間塑性加工を施して希土類磁石（配向磁石）を製造する方法である。なお、この熱間塑性加工には、後方押し出し加工や前方押し出し加工といった押し出し加工や、据え込み加工（鍛造加工）などが適用されている。

【0006】

上記する成形型を使用した成形体の製造に際し、特許文献1には、磁石用粉末と成形型のキャビティ面のいずれか一方もしくは双方に対し、脂肪酸もしくは金属石けんからなる固体潤滑剤をその融点以上に加熱溶融させたものを噴霧して潤滑剤の被膜を形成し、成形をおこなう粉末成形方法が開示されている。この粉末成形方法によれば、成形体の物性や作業性を向上させることができるとしている。

【先行技術文献】**【特許文献】**

30

【0007】**【特許文献1】特開平9-104902号公報****【発明の概要】****【発明が解決しようとする課題】****【0008】**

ところで、特許文献1で記載する粉末成形方法のように成形型のキャビティ面に潤滑剤を塗布して成形体を成形する方法では、成形体の成形後、成形型から成形体を脱型する際に上下パンチと成形体が貼り付いてしまい、成形体から上下パンチを引き剥がす際に成形体が破損する危険がある。

【0009】

40

本発明は上記する問題に鑑みてなされたものであり、成形型から成形体を脱型する際に成形体が破損する危険性のない成形体の製造方法を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】**【0010】**

前記目的を達成すべく、本発明による成形体の製造方法は、ダイとダイの内部で摺動する上パンチおよび下パンチとから構成され、ダイと上パンチと下パンチでキャビティを形成する成形型において、ダイのキャビティに対向するキャビティ面に黒鉛系潤滑剤を塗布する第1のステップ、下パンチのキャビティに対向するキャビティ面にバインダを含まない黒鉛系粉末を配設して黒鉛系粉末層を形成し、該黒鉛系粉末層の上に磁石用粉末を充填して磁石用粉末体を形成し、該磁石用粉末体の上にバインダを含まない黒鉛系粉末を配設して黒鉛系粉末層を形成する第2のステップ、ダイのキャビティ面に塗布された黒鉛系潤

50

滑剤および上下の黒鉛系粉末層で囲まれた磁石用粉末体を加熱しながら下パンチと上パンチで加圧成形して成形体を製造し、該成形体を成形型から取り出す第3のステップからなるものである。

【0011】

本発明の製造方法では、ダイのキャビティ面に黒鉛系潤滑剤を塗布し、下パンチのキャビティ面にバインダを含まない(バインダレス)黒鉛系粉末を配設し、磁石用粉末体の上(上パンチのキャビティ面)にもバインダを含まない黒鉛系粉末を配設する。この状態で、加熱しながら上下のパンチで磁石用粉末体を加圧成形することにより、成形体を製造するものである。

【0012】

したがって、製造された成形体において、その側面には、溶媒が揮発されて残った黒鉛系粉末が加圧成形にて固められた層が形成され、その上下面には、同様に加圧成形にて固められたバインダレスの黒鉛系粉末層が形成される。

【0013】

そのため、この成形体を成形型から脱型するに当たり、力が加わって破損する場合にはバインダがなくて強度が弱い黒鉛系粉末層で破壊されるため、成形体が上下のパンチに貼り付き、成形体から上下のパンチを剥がそうとして成形体が破損するといった問題は生じ得ない。

【0014】

また、製造された成形体を次の焼結工程(焼結・緻密化工程)で焼結させるべく、別途の成形型に移載するに当たり、成形体の側面周囲には溶媒が揮発して加圧成形にて固められた黒鉛系粉末の層が形成され、成形体の上下面周囲には同様に加圧成形にて固められた黒鉛系粉末層が形成されていることから、この成形型のキャビティ面に潤滑剤を塗布する必要はない。さらに、これら黒鉛系粉末の層や黒鉛系粉末層によって成形体が包囲されていることから、成形体を構成する磁石用粉末体の酸化を抑制することができる。

【0015】

ここで、黒鉛系潤滑剤は、たとえばグラファイト粉末を水や有機系溶媒に含有させて生成されたものを適用できる。また、黒鉛系粉末も、グラファイト粉末を適用できる。また、黒鉛系潤滑剤を形成する溶媒は、加圧成形時の加熱温度で揮発するものであればいずれの種類のものであってもよい。なお、「加圧成形時の加熱温度で揮発する」とは、実際に加圧成形している際に揮発することだけでなく、加圧成形のために予熱された成形型の加熱温度によって加圧成形前に揮発してしまっている場合も含むものである。

【0016】

また、黒鉛系潤滑剤の塗布とは、文字通り黒鉛系潤滑剤を塗布することのみならず、黒鉛系潤滑剤を散布することなども含んでいる。

【0017】

また、第2のステップにおいて、加圧成形する際の圧力が50MPa以上に設定されているのが望ましい。

【0018】

本発明者等によれば、加圧成形にて磁石用粉末が搬送可能な状態に固まり、かつ黒鉛系粉末層が固まるには、圧力が50MPa以上であることが実用的であり、好ましいと特定されていることに依拠するものである。

【0019】

本発明の製造方法で製造された成形体を焼結・緻密化工程にて高温雰囲気下で加圧成形することで焼結体が製造され、焼結体に熱間塑性加工を施して磁気的異方性を付与することで希土類磁石が製造される。この希土類磁石は、上記するようにその製造過程において磁石用粉末の酸化が効果的に抑制されていることから、残留磁化や保磁力といった磁気特性に優れたものとなる。

【発明の効果】

【0020】

10

20

30

40

50

以上の説明から理解できるように、本発明の成形体の製造方法によれば、ダイのキャビティ面に黒鉛系潤滑剤を塗布し、上下のパンチのキャビティ面にバインダレスの黒鉛系粉末層を形成し、加熱しながら磁石用粉末体を加圧成形することにより、成形体の側面周囲には溶媒が揮発して加圧成形にて固められた黒鉛系粉末の層が形成され、成形体の上面周囲には同様に加圧成形にて固められた黒鉛系粉末層が形成される。このように固められたバインダレスの黒鉛系粉末層は上下のパンチに貼り付いていないことから、成形型から成形体を脱型する際に成形体が破損するといった問題は生じない。

【図面の簡単な説明】

【0021】

【図1】本発明の成形体の製造方法の第1のステップを説明した模式図である。 10

【図2】成形体の製造方法の第2のステップを説明した模式図である。

【図3】図2に続いて、成形体の製造方法の第2のステップを説明した模式図である。

【図4】成形体の製造方法の第3のステップを説明した模式図である。

【図5】図4に続いて、成形体の製造方法の第3のステップを説明した模式図である。

【図6】成形型のダイのキャビティ面に塗布された黒鉛系潤滑剤の膜厚、製造された成形体の側面の黒鉛系粉末の層の膜厚、焼結体の側面の黒鉛系粉末の層の膜厚を比較する実験結果を示した図である。

【図7】第3のステップにおける加熱温度と成形体の酸素濃度増加量の関係を特定する実験結果を示した図である。 20

【発明を実施するための形態】

【0022】

以下、図面を参照して本発明の成形体の製造方法の実施の形態を説明する。

【0023】

(成形体の製造方法の実施の形態)

図1は本発明の成形体の製造方法の第1のステップを説明した模式図であり、図2、3はその順で製造方法の第2のステップを説明した模式図であり、図4、5はその順で製造方法の第3のステップを説明した模式図である。

【0024】

まず、図1で示すように、ダイDとダイDの内部で摺動する上パンチP_uおよび下パンチP_sとから構成され、ダイDと上パンチP_uと下パンチP_sでキャビティCを形成する成形型Mを用意する。 30

【0025】

次に、成形型Mを構成するダイDのキャビティ面D_aに黒鉛系潤滑剤Lを塗布する(第1のステップ)。

【0026】

ここで、黒鉛系潤滑剤Lとして、グラファイト粉末が溶媒である水に分散した、水溶性グラファイト潤滑剤が適用できる。

【0027】

次に、図2で示すように、下パンチP_sのキャビティ面P_s_aに黒鉛系粉末からなる黒鉛系粉末層F_sを形成する。 40

【0028】

ここで、黒鉛系粉末にはグラファイト粉末が適用され、黒鉛系粉末層F_sはバインダを一切含まず、黒鉛系粉末のみから形成される。

【0029】

次に、形成された黒鉛系粉末層F_sの上のキャビティC内に磁石用粉末を充填し、磁石用粉末体Jを形成する。

【0030】

ここで、使用される磁石用粉末の製作方法は、まず、50kPa以下に減圧した不図示の炉中で、単ロールによるメルトスピニング法により、合金インゴットを高周波溶解し、希土類磁石を与える組成の溶湯を銅ロールに噴射して急冷薄帯(急冷リボン)を製作する。次 50

に、製作された急冷薄帯を粗粉碎して磁石用粉末を製作するものである。なお、磁石用粉末の粒径範囲は75～300μmの範囲となるように調整される。

【0031】

キャビティC内に磁石用粉末体Jを形成したら、図3で示すように、磁石用粉末体Jの上に黒鉛系粉末からなる黒鉛系粉末層Fuを形成する。

【0032】

この黒鉛系粉末層Fuも黒鉛系粉末層Fsと同様に、バインダを一切含まず、黒鉛系粉末のみから形成される。

【0033】

このようにして、キャビティC内において、磁石用粉末体Jの側面を黒鉛系潤滑剤Lで包囲し、磁石用粉末体Jの上下面をバインダレスの黒鉛系粉末層Fu, Fsで包囲する(第2のステップ)。

【0034】

次に、図4で示すように、成形型Mを加熱し、下パンチPsと上パンチPuをダイD内で摺動させ(X1方向、X2方向)、磁石用粉末体Jを加圧成形することで成形体Coが製造される。

【0035】

ここで、加圧成形時の圧力は、成形体Coが以後のハンドリングの際に形状を保持できる程度に固められる圧力として50MPa以上の圧力が設定される。たとえば、50～200MPa程度の範囲の圧力にて磁石用粉末体Jが加圧成形される。

【0036】

この加圧成形時の加熱により、黒鉛系潤滑剤を形成する溶媒が揮発し、残った黒鉛系粉末が加圧成形にて固められて黒鉛系粉末の層L'が成形体Coの側面に形成される。たとえば、加熱温度(成形型の温度)が 110 ± 10 に設定され、水溶性グラファイト潤滑剤の溶媒である水がこの加熱温度で揮発される。なお、水溶性グラファイト潤滑剤は加熱された成形型に塗布されるので、塗布直後から溶媒の水の揮発が始まっており、粉末を充填し加圧成形が始まると同時に、加圧成形が始まる前に揮発が終わっている場合もあり得る。

【0037】

また、成形体Coの上下面にはそれぞれ、黒鉛系粉末層Fu, Fsが加圧成形にて固められてできた黒鉛系粉末層Fu', Fs'が形成される。なお、上記する50MPa以上の圧力により、成形体Coの周囲で固められている黒鉛系粉末の層L'や黒鉛系粉末層Fu', Fs'も以後のハンドリングの際に形状を保持できる程度に固められている。

【0038】

成形体Coが製造されたら、図5で示すように下パンチPsをさらに上方に摺動させて(X3方向)成形体CoをキャビティCの上方に移動させ、上パンチPuを脱型する(X4方向)。

【0039】

この脱型に当たり、成形体Coの上面にある黒鉛系粉末層Fu'はバインダレスであることから、上パンチPuと強固に貼り付いておらず、したがって、上パンチPuは黒鉛系粉末層Fu'から速やかに離れ、双方が強固に貼り付いている場合に相互に剥がすことでの成形体が破損するといった問題は生じない。

【0040】

同様に、成形体Coの下面にある黒鉛系粉末層Fs'もバインダレスであることから、下パンチPsと強固に貼り付いておらず、下パンチPuを黒鉛系粉末層Fs'から速やかに離すことができる。

【0041】

このように、加圧成形にて成形された成形体Coを破損することなく、成形型Mから脱型することができる(第3のステップ)。

【0042】

10

20

30

40

50

また、第3のステップで製造された成形体C₀は、その周囲が黒鉛系粉末の層L' と黒鉛系粉末層F_{u'}、F_{s'}にて包囲されていることから、以後の焼結・緻密化工程をおこなう別途の成形型への移載に際し、この成形型の内面に潤滑剤を塗布する必要がない。

【0043】

さらに、成形体C₀が黒鉛系粉末の層L' と黒鉛系粉末層F_{u'}、F_{s'}にて包囲されていることから、その酸化が抑制される。

【0044】

なお、磁石用粉末は多数の隙間を有していることから、加圧成形によって隙間に磁石用粉末体が入り込んで隙間の多くが無くなり、したがって、当初の磁石用粉末体Jの高さに比して加圧成形されてできた成形体C₀の高さは低くなる。その一方で、黒鉛系潤滑剤L' はその内部に隙間が無い、もしくは極めて少ないとから、加圧成形にて形成された黒鉛系粉末の層L' の厚みは当初の黒鉛系潤滑剤L' の厚みよりも厚くなることが本発明者等によって特定されている。そのため、以後の焼結体を製造するための焼結・緻密化工程や希土類磁石を製造する熱間塑性加工においても黒鉛系粉末の層L' が確保される。10

【0045】

製造された成形体C₀は、たとえば、ナノ結晶組織のNd-Fe-B系の主相（平均粒径が300nm以下で、たとえば50nm～200nm程度の結晶粒径）と、主相の周りにあるNd-X合金（X:金属元素）の粒界相を備えたものである。そして、粒界相を構成するNd-X合金は、Ndと、Co、Fe、Ga等のうちの少なくとも一種以上の合金からなり、たとえば、Nd-Co、Nd-Fe、Nd-Ga、Nd-Co-Fe、Nd-Co-Fe-Gaのうちのいずれか一種、もしくはこれらの二種以上が混在したものであって、Ndリッチな状態となっている。20

【0046】

成形体C₀は、不図示の成形型に移載され、700度に設定された成形型内で圧縮され、緻密化成形されて焼結体が製造される。

【0047】

この焼結体の製造過程においても、成形体C₀の周囲を包囲している黒鉛系粉末の層L' と黒鉛系粉末層F_{u'}、F_{s'}は残っていることから、焼結体の酸化も依然として抑制される。

【0048】

この焼結体をさらに別途の成形型に移載し、後方押出し加工や前方押出し加工といった押出し加工や、据え込み加工（鍛造加工）などの熱間塑性加工がおこなわれて焼結体に磁気的異方性が付与され、希土類磁石が製造される。30

【0049】

このように製造された希土類磁石は、その製造過程で中間製造物の酸化が抑制されていることから、残留磁化や保磁力といった磁気性能に優れた希土類磁石となる。

【0050】

（成形体のダイのキャビティ面に塗布された黒鉛系潤滑剤の膜厚、製造された成形体の側面の黒鉛系粉末の層の膜厚、焼結体の側面の黒鉛系粉末の層の膜厚を比較する実験とその結果）

本発明者等は、成形体のダイのキャビティ面に塗布された黒鉛系潤滑剤の膜厚、製造された成形体の側面の黒鉛系粉末の層の膜厚、焼結体の側面の黒鉛系粉末の層の膜厚を比較する実験をおこなった。40

【0051】

原料粉としてネオジム系希土類磁石粉末（粒径45～300μm）を用いて圧粉成形をおこなった。また、ダイの内側形状として28.68mm×12.24mmの断面形状のものを用意した。このダイを150度の加熱炉内で3分間加熱し、内面に水溶性の黒鉛系潤滑剤（日本黒鉛工業（株）製プロハイト15FU（黒鉛平均粒径20μm、濃度約10%））をスプレー塗布した。このダイに下パンチを挿入し、キャビティ内に黒鉛粉末と磁石粉末とさらに黒鉛粉末を順に充填した。その後ダイに上パンチを挿入し、成形圧力100MPaで加圧成形をおこなって成形体を得た。成形体は12.9mm×29.4mm×14.5mmのサイズの直方体である。その後、成形体をダ50

イから取り出し、次工程の焼結（ホットプレス成形あるいは緻密化成形とも言う）をおこなった。焼結は、ダイ、上下パンチともに700℃に加熱し、キャビティ内をArガス雰囲気（雰囲気中酸素濃度100ppm）として予備成形体を投入後、予備成形体の中心部が約500℃まで昇温するように型内で80秒保持し、その後成形圧力200MPaで加圧し、ホットプレス成形をおこなった。焼結体のサイズは12.9mm×29.4mm×9.1mmである。以上のように作成された成形体、焼結体の側面およびダイ内面の黒鉛系潤滑剤の膜厚をそれぞれ測定した。膜厚の測定は、ダイは4分割された分割型であるため、型を分解して側面から光学顕微鏡で測定した。また成形体、焼結体の膜厚は、中央部付近を切断し、断面を光学顕微鏡で測定した。

【0052】

10

実験結果を図6に示す。同図より、黒鉛系潤滑剤の膜厚は、当初成形型に塗布した際の膜厚が15μmであったのに対し、製造された成形体の表面に形成されている黒鉛系粉末の層の膜厚は29μm程度とおよそ2倍となっている。

【0053】

さらに、その後の焼結・緻密化工程にて製造された焼結体の表面に形成されている黒鉛系粉末の層の膜厚は30μmとさらに膜厚が増加することが分かり、この際に、焼結体の抜出し時の焼き付きも生じなかった。

【0054】

20

この結果より、黒鉛系潤滑剤の膜厚を10μm以上、より好ましくは15μm以上に設定しておくのがよい。なお、膜厚が増加するのは、粉末から成形体、成形体から焼結体と加圧方向の寸法が小さくなることで、その分加圧方向と交差する方向である側面の膜厚が増加するためである。

【0055】

（第3のステップにおける加熱温度と成形体の酸素濃度増加量の関係を特定する実験とその結果）

本発明者等はさらに、本発明の製造方法の第3のステップにおける加熱時の加熱温度を種々変化させ、製造された成形体の酸素濃度増加量を測定する実験をおこなった。

【0056】

30

成形温度を変化させた以外は上記と同様に成形体を製造した。成形温度は100℃、130℃、150℃である。得られた成形体の表面の潤滑剤層を除去後、中心部より約200mgを切り出し、市販の酸素濃度分析装置により酸素濃度を分析した。

【0057】

実験結果を図7に示す。同図より、加熱温度が100℃、130℃では酸素濃度増加量は20ppmと極めて少ない一方で、加熱温度が150℃では酸素濃度増加量が270ppmと、100℃、130℃のケースの13倍以上の濃度になることが分かった。

【0058】

この実験結果より、第3のステップにおける加熱温度は100～130℃の範囲に設定するのがよい。

【0059】

40

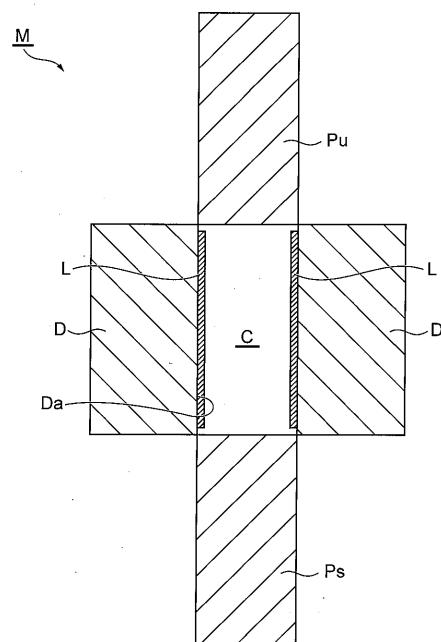
以上、本発明の実施の形態を図面を用いて詳述してきたが、具体的な構成はこの実施形態に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲における設計変更等があつても、それらは本発明に含まれるものである。

【符号の説明】

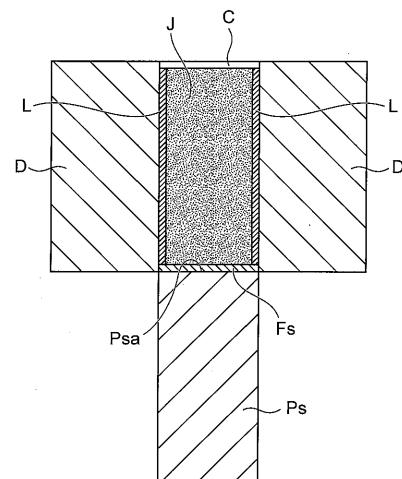
【0060】

M…成形型、D…ダイ、Da…キャビティ面、Pu…上パンチ、Ps…下パンチ、Ps-a…キャビティ面、L…黒鉛系潤滑剤、L'…黒鉛系粉末の層、Fs, Fu…黒鉛系粉末層、Fs', Fu'…固められた黒鉛系粉末層（黒鉛系粉末層）、J…磁石用粉末体、Co…成形体

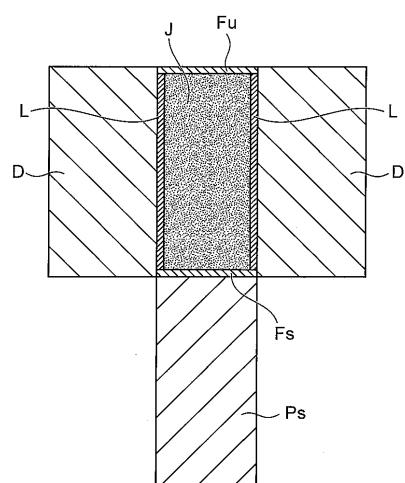
【図1】



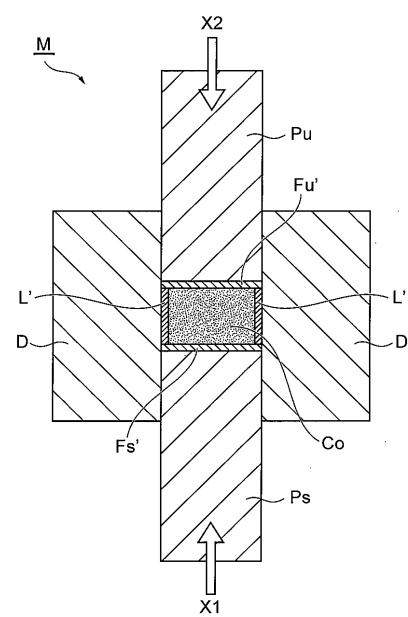
【図2】



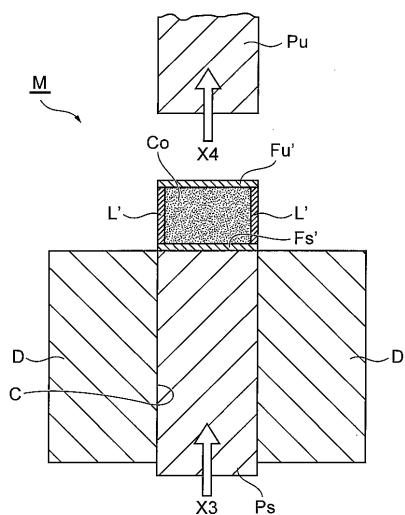
【図3】



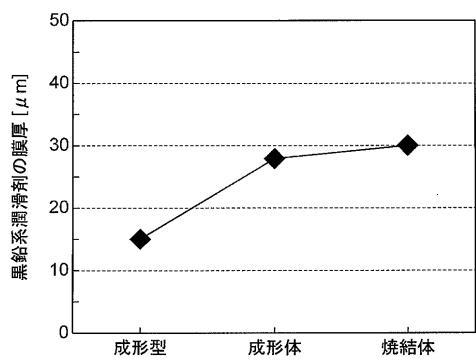
【図4】



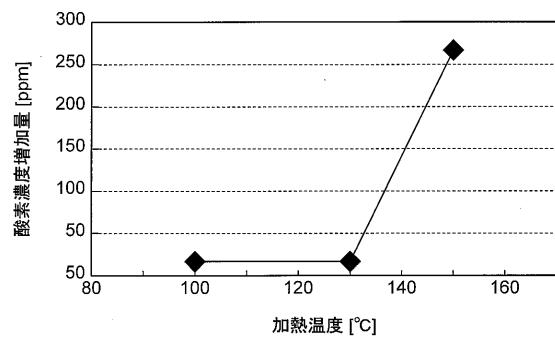
【図5】



【図6】



【図7】



フロントページの続き

審査官 井上 健一

- (56)参考文献 特開2001-300790(JP,A)
特開2013-241637(JP,A)
特開2004-342937(JP,A)
特開平10-152702(JP,A)
米国特許出願公開第2001/0041146(US,A1)
特表2015-531027(JP,A)
特開2005-112658(JP,A)
特開平01-079305(JP,A)
特開2001-240463(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

| | |
|--------|-----------|
| H 01 F | 4 1 / 0 2 |
| H 01 F | 1 / 0 8 |
| H 01 F | 7 / 0 2 |
| B 22 F | 3 / 0 0 |
| B 22 F | 3 / 0 2 |
| B 22 F | 3 / 0 3 5 |