(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号

特許第5501827号
(P5501827)

(45)発行日　平成26年5月28日(2014.5.28)　(24)登録日　平成26年3月20日(2014.3.20)

(51)Int.Cl.		F I		
H01F 1/08	(2006.01)	H01F	1/08	B
H01F 41/02	(2006.01)	H01F	41/02	G
H01F 1/057	(2006.01)	H01F	1/04	H
C22C 38/00	(2006.01)	C22C	38/00	303D
B22F 9/04	(2006.01)	B22F	9/04	C

請求項の数 10　(全 17 頁)　最終頁に続く

(21)出願番号　特願2010-83554(P2010-83554)
(22)出願日　平成22年3月31日(2010.3.31)
(65)公開番号　特開2011-216669(P2011-216669A)
(43)公開日　平成23年10月27日(2011.10.27)
審査請求日　平成24年11月26日(2012.11.26)

(73)特許権者　000003964
日東電工株式会社
大阪府茨木市下穂積１丁目１番２号
(74)代理人　110000992
特許業務法人ネクスト
(72)発明者　尾関　出光
大阪府茨木市下穂積１丁目１番２号　日東電工株式会社内
(72)発明者　久米　克也
大阪府茨木市下穂積１丁目１番２号　日東電工株式会社内
(72)発明者　平野　敬祐
大阪府茨木市下穂積１丁目１番２号　日東電工株式会社内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】永久磁石及び永久磁石の製造方法

(57)【特許請求の範囲】
【請求項１】
希土類元素を含み、化学量論組成に基づく含有量からなる磁石原料合金を粗粉砕して粗粉砕磁石粉末を得る工程と、
ジェットミル及び粉砕物回収装置を含む閉回路でヘリウムガス気流を循環させた状態で、前記粗粉砕磁石粉末を前記ヘリウムガス気流により前記ジェットミルへと搬送し、ヘリウムガス雰囲気中でジェットミル粉砕を行なうことにより微粉砕して微粉砕磁石粉末を得る工程と、
前記微粉砕磁石粉末の内、所定範囲の粒径の前記微粉砕磁石粉末を前記粉砕物回収装置により回収する工程と、
前記粉砕物回収装置を経た前記ヘリウムガス気流中において前記粉砕物回収装置により回収されずに残存する前記微粉砕磁石粉末を残存磁石粉末として捕集する工程と、
前記残存磁石粉末を前記ヘリウムガス気流により再度ジェットミルへと搬送する工程と、
前記粉砕物回収装置により回収された前記微粉砕磁石粉末に以下の構造式
Ｍ－（ＯＲ）$_x$
（式中、Ｍは希土類元素であるＮｄ、Ｐｒ、Ｄｙ、Ｔｂの内、少なくとも一種を含む。Ｒは炭素数２～６のアルキル基のいずれかであり、直鎖でも分枝でも良い。ｘは任意の整数である。）
で表わされる有機金属化合物を添加することにより、前記微粉砕磁石粉末の粒子表面に前

記有機金属化合物を付着させる工程と、
前記有機金属化合物が粒子表面に付着された前記微粉砕磁石粉末を成形することにより成形体を形成する工程と、
前記有機金属化合物が粒子表面に付着された前記微粉砕磁石粉末を成形前又は成形後であって焼結前に水素雰囲気で仮焼する工程と、
前記成形体を焼結する工程と、により製造されることを特徴とする永久磁石。
【請求項２】
前記有機金属化合物の添加量は、前記永久磁石中に含まれる希土類元素の含有量が前記化学量論組成に基づく含有量に対して０．１ｗ％～１０．０ｗ％多くなる量であることを特徴とする請求項１に記載の永久磁石。
【請求項３】
前記ジェットミル及び前記粉砕物回収装置を含む閉回路の酸素濃度が３０ｐｐｍ以下であることを特徴とする請求項１又は請求項２に記載の永久磁石。
【請求項４】
前記ジェットミル及び前記粉砕物回収装置を含む閉回路で循環されるヘリウムガス気流の圧力が０．４ＭＰａ～１．８ＭＰａであることを特徴とする請求項１乃至請求項３のいずれかに記載の永久磁石。
【請求項５】
前記微粉砕磁石粉末を前記粉砕物回収装置により回収する工程は、０．１μｍ～５．０μｍの粒径を有する前記微粉砕磁石粉末を回収することを特徴とする請求項１乃至請求項４のいずれかに記載の永久磁石。
【請求項６】
希土類元素を含み、化学量論組成に基づく含有量からなる磁石原料合金を粗粉砕して粗粉砕磁石粉末を得る工程と、
ジェットミル及び粉砕物回収装置を含む閉回路でヘリウムガス気流を循環させた状態で、前記粗粉砕磁石粉末を前記ヘリウムガス気流により前記ジェットミルへと搬送し、ヘリウムガス雰囲気中でジェットミル粉砕を行なうことにより微粉砕して微粉砕磁石粉末を得る工程と、
前記微粉砕磁石粉末の内、所定範囲の粒径の前記微粉砕磁石粉末を前記粉砕物回収装置により回収する工程と、
前記粉砕物回収装置を経た前記ヘリウムガス気流中において前記粉砕物回収装置により回収されずに残存する前記微粉砕磁石粉末を残存磁石粉末として捕集する工程と、
前記残存磁石粉末を前記ヘリウムガス気流により再度ジェットミルへと搬送する工程と、
前記粉砕物回収装置により回収された前記微粉砕磁石粉末に以下の構造式
Ｍ－（ＯＲ）$_{x}$
（式中、Ｍは希土類元素であるＮｄ、Ｐｒ、Ｄｙ、Ｔｂの内、少なくとも一種を含む。Ｒは炭素数２～６のアルキル基のいずれかであり、直鎖でも分枝でも良い。ｘは任意の整数である。）
で表わされる有機金属化合物を添加することにより、前記微粉砕磁石粉末の粒子表面に前記有機金属化合物を付着させる工程と、
前記有機金属化合物が粒子表面に付着された前記微粉砕磁石粉末を成形することにより成形体を形成する工程と、
前記有機金属化合物が粒子表面に付着された前記微粉砕磁石粉末を成形前又は成形後であって焼結前に水素雰囲気で仮焼する工程と、
前記成形体を焼結する工程と、を有することを特徴とする永久磁石の製造方法。
【請求項７】
前記有機金属化合物の添加量は、前記永久磁石中に含まれる希土類元素の含有量が前記化学量論組成に基づく含有量に対して０．１ｗ％～１０．０ｗ％多くなる量であることを特徴とする請求項６に記載の永久磁石の製造方法。

【請求項８】
前記ジェットミル及び前記粉砕物回収装置を含む閉回路では、酸素量３０ｐｐｍ以下のヘリウムガス気流を循環させることを特徴とする請求項６又は請求項７に記載の永久磁石の製造方法。
【請求項９】
前記ジェットミル及び前記粉砕物回収装置を含む閉回路で循環されるヘリウムガス気流の圧力が０．４ＭＰａ～１．８ＭＰａであることを特徴とする請求項６乃至請求項８のいずれかに記載の永久磁石の製造方法。
【請求項１０】
前記微粉砕磁石粉末を前記粉砕物回収装置により回収する工程は、０．１μｍ～５．０μｍの粒径を有する前記微粉砕磁石粉末を回収することを特徴とする請求項６乃至請求項９のいずれかに記載の永久磁石の製造方法。

【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、永久磁石及び永久磁石の製造方法に関する。
【背景技術】
【０００２】
近年、ハイブリッドカーやハードディスクドライブ等に使用される永久磁石モータでは、小型軽量化、高出力化、高効率化が要求されている。そして、上記永久磁石モータにおいて小型軽量化、高出力化、高効率化を実現するに当たって、永久磁石モータに埋設される永久磁石について、更なる磁気特性の向上が求められている。尚、永久磁石としてはフェライト磁石、Ｓｍ－Ｃｏ系磁石、Ｎｄ－Ｆｅ－Ｂ系磁石、$Sm_2Fe_{17}N_x$系磁石等があるが、特に残留磁束密度の高いＮｄ－Ｆｅ－Ｂ系磁石が永久磁石モータ用の永久磁石として用いられる。
【０００３】
ここで、永久磁石の製造方法としては、一般的に粉末焼結法が用いられる。ここで、粉末焼結法は、先ず原材料を粗粉砕し、ジェットミル（乾式粉砕）により微粉砕した磁石粉末を製造する。その後、その磁石粉末を型に入れて、外部から磁場を印加しながら所望の形状にプレス成形する。そして、所望形状に成形された固形状の磁石粉末を所定温度（例えばＮｄ－Ｆｅ－Ｂ系磁石では８００℃～１１５０℃）で焼結することにより製造する。
【先行技術文献】
【特許文献】
【０００４】
【特許文献１】特許第３２９８２１９号公報（第４頁、第５頁）
【発明の概要】
【発明が解決しようとする課題】
【０００５】
また、永久磁石は化学量論組成（例えば$Nd_2Fe_{14}B$）に近づけることによって、磁石特性が向上することが知られている。従って、永久磁石を製造する際の磁石原料の各元素の含有量は、化学量論組成に基づく含有量（例えばＮｄ：２６．７ｗｔ％、Ｆｅ（電解鉄）：７２．３ｗｔ％、Ｂ：１．０ｗｔ％）とすることが行われていた。
【０００６】
ここで、Ｎｄ－Ｆｅ－Ｂ系磁石の製造において生じる問題として、焼結された合金中にα－Ｆｅが生成することが挙げられる。原因としては、化学量論組成に基づく含有量からなる磁石原料合金を用いて永久磁石を製造した場合に、製造過程で希土類元素が酸素と結び付き、化学量論組成に対して希土類元素が不足する状態となることが挙げられる。さらに、α－Ｆｅが、焼結後も磁石中に残存すれば、磁石の磁気特性の低下をもたらす。

【０００７】
そこで、磁石原料に含まれる希土類元素の含有量を、予め化学量論組成に基づく含有量よりも多くすることが考えられる。しかし、その方法では磁石原料を粉砕した後に磁石組成が大きく変動することとなり、粉砕後に磁石組成を変更する必要が生じていた。
【０００８】
また、永久磁石の磁気特性は、磁石の磁気特性が単磁区微粒子理論により導かれるために、焼結体の結晶粒径を微小にすれば磁気性能が基本的に向上することが知られている。しかし、前記特許文献１のように先ず原材料を粗粉砕し、粗粉砕した粉末をジェットミル（乾式粉砕）により微粉砕する方式では、結晶を微小な粒径範囲（例えば０．１μｍ～５．０μｍ）まで粉砕できる粒子は、粉砕対象とした磁石粉末の量に対して僅かな量にすぎなかった。即ち、歩留りが非常に悪かった。
【０００９】
本発明は前記従来における問題点を解消するためになされたものであり、従来のジェットミル粉砕では実現が難しかった微小範囲の粒径の磁石粉末を、高い歩留りで得ることを可能とし、一方で、製造過程で希土類元素が酸素と結び付いたとしても、化学量論組成に対して希土類元素が不足することなく、焼結後の永久磁石中にα－Ｆｅが生成されることを抑制することが可能となるとともに、粉砕前後で磁石組成が大きく変動しないので粉砕後に磁石組成を変更する必要なく、磁気性能を向上させることが可能な永久磁石及び永久磁石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】
前記目的を達成するため本願の請求項１に係る永久磁石は、希土類元素を含み、化学量論組成に基づく含有量からなる磁石原料合金を粗粉砕して粗粉砕磁石粉末を得る工程と、ジェットミル及び粉砕物回収装置を含む閉回路でヘリウムガス気流を循環させた状態で、前記粗粉砕磁石粉末を前記ヘリウムガス気流により前記ジェットミルへと搬送し、ヘリウムガス雰囲気中でジェットミル粉砕を行なうことにより微粉砕して微粉砕磁石粉末を得る工程と、前記微粉砕磁石粉末の内、所定範囲の粒径の前記微粉砕磁石粉末を前記粉砕物回収装置により回収する工程と、前記粉砕物回収装置を経た前記ヘリウムガス気流中において前記粉砕物回収装置により回収されずに残存する前記微粉砕磁石粉末を残存磁石粉末として捕集する工程と、前記残存磁石粉末を前記ヘリウムガス気流により再度ジェットミルへと搬送する工程と、前記粉砕物回収装置により回収された前記微粉砕磁石粉末に以下の構造式Ｍ－（ＯＲ）ｘ（式中、Ｍは希土類元素であるＮｄ、Ｐｒ、Ｄｙ、Ｔｂの内、少なくとも一種を含む。Ｒは炭素数２～６のアルキル基のいずれかであり、直鎖でも分枝でも良い。ｘは任意の整数である。）で表わされる有機金属化合物を添加することにより、前記微粉砕磁石粉末の粒子表面に前記有機金属化合物を付着させる工程と、前記有機金属化合物が粒子表面に付着された前記微粉砕磁石粉末を成形することにより成形体を形成する工程と、前記有機金属化合物が粒子表面に付着された前記微粉砕磁石粉末を成形前又は成形後であって焼結前に水素雰囲気で仮焼する工程と、前記成形体を焼結する工程と、により製造されることを特徴とする。
【００１１】
また、請求項２に係る永久磁石は、請求項１に記載の永久磁石において、前記有機金属化合物の添加量は、前記永久磁石中に含まれる希土類元素の含有量が前記化学量論組成に基づく含有量に対して０．１ｗ％～１０．０ｗ％多くなる量であることを特徴とする。
【００１２】
また、請求項３に係る永久磁石は、請求項１又は請求項２に記載の永久磁石において、前記ジェットミル及び粉砕物回収装置を含む閉回路の酸素濃度が３０ｐｐｍ以下であることを特徴とする。
【００１３】
また、請求項４に係る永久磁石は、請求項１乃至請求項３のいずれかに記載の永久磁石

において、前記ジェットミル及び粉砕物回収装置を含む閉回路で循環されるヘリウムガス気流の圧力が０．４ＭＰａ～１．８ＭＰａであることを特徴とする。

【００１４】

また、請求項５に係る永久磁石は、請求項１乃至請求項４のいずれかに記載の永久磁石において、前記微粉砕磁石粉末を前記粉砕物回収装置により回収する工程は、０．１μｍ～５．０μｍの粒径を有する前記微粉砕磁石粉末を回収することを特徴とする。

【００１５】

更に、請求項６に係る永久磁石の製造方法は、希土類元素を含み、化学量論組成に基づく含有量からなる磁石原料合金を粗粉砕して粗粉砕磁石粉末を得る工程と、ジェットミル及び粉砕物回収装置を含む閉回路でヘリウムガス気流を循環させた状態で、前記粗粉砕磁石粉末を前記ヘリウムガス気流により前記ジェットミルへと搬送し、ヘリウムガス雰囲気中でジェットミル粉砕を行なうことにより微粉砕して微粉砕磁石粉末を得る工程と、前記微粉砕磁石粉末の内、所定範囲の粒径の前記微粉砕磁石粉末を前記粉砕物回収装置により回収する工程と、前記粉砕物回収装置を経た前記ヘリウムガス気流中において前記粉砕物回収装置により回収されずに残存する前記微粉砕磁石粉末を残存磁石粉末として捕集する工程と、前記残存磁石粉末を前記ヘリウムガス気流により再度ジェットミルへと搬送する工程と、前記粉砕物回収装置により回収された前記微粉砕磁石粉末に以下の構造式Ｍ－（ＯＲ）ｘ（式中、Ｍは希土類元素であるＮｄ、Ｐｒ、Ｄｙ、Ｔｂの内、少なくとも一種を含む。Ｒは炭素数２～６のアルキル基のいずれかであり、直鎖でも分枝でも良い。ｘは任意の整数である。）で表わされる有機金属化合物を添加することにより、前記微粉砕磁石粉末の粒子表面に前記有機金属化合物を付着させる工程と、前記有機金属化合物が粒子表面に付着された前記微粉砕磁石粉末を成形することにより成形体を形成する工程と、前記有機金属化合物が粒子表面に付着された前記微粉砕磁石粉末を成形前又は成形後であって焼結前に水素雰囲気で仮焼する工程と、前記成形体を焼結する工程と、を有することを特徴とする。

【００１６】

また、請求項７に係る永久磁石の製造方法は、請求項６に記載の永久磁石の製造方法において、前記有機金属化合物の添加量は、前記永久磁石中に含まれる希土類元素の含有量が前記化学量論組成に基づく含有量に対して０．１ｗ％～１０．０ｗ％多くなる量であることを特徴とする。

【００１７】

また、請求項８に係る永久磁石の製造方法は、請求項６又は請求項７に記載の永久磁石の製造方法において、前記ジェットミル及び粉砕物回収装置を含む閉回路の酸素濃度が３０ｐｐｍ以下であることを特徴とする。

【００１８】

また、請求項９に係る永久磁石の製造方法は、請求項６乃至請求項８のいずれかに記載の永久磁石の製造方法において、前記ジェットミル及び粉砕物回収装置を含む閉回路で循環されるヘリウムガス気流の圧力が０．４ＭＰａ～１．８ＭＰａであることを特徴とする。

【００１９】

更に、請求項１０に係る永久磁石の製造方法は、請求項６乃至請求項９のいずれかに記載の永久磁石の製造方法において、前記微粉砕磁石粉末を前記粉砕物回収装置により回収する工程は、０．１μｍ～５．０μｍの粒子を有する前記微粉砕磁石粉末を回収することを特徴とする。

【発明の効果】

【００２０】

前記構成を有する請求項１に記載の永久磁石によれば、製造過程で希土類元素が酸素と結び付いたとしても、化学量論組成に対して希土類元素が不足することなく、焼結後の永久磁石中にα－Ｆｅが生成されることを抑制することが可能となる。また、粉砕前後で磁石組成が大きく変動しないので粉砕後に磁石組成を変更する必要なく、製造工程を簡略化

することができる。また、ヘリウム雰囲気下でジェットミル粉砕を行うとともに、ジェットミルと粉砕物回収装置との間で磁石粒子を循環させて繰り返し粉砕を行うので、永久磁石を構成する結晶粒を微小な粒径範囲とすることが可能となる。その結果、永久磁石の磁気性能を向上させることが可能となる。

【００２１】

また、請求項２に記載の永久磁石によれば、Ｍリッチ相を均一に分散することが可能となるとともに、α－Ｆｅの生成を十分に抑制でき、また、残留磁束密度が低下することについても防止できる。

【００２２】

また、請求項３に記載の永久磁石によれば、成形元となる磁石粒子の酸化量を低く抑えることが可能となる。その結果、永久磁石の磁気性能を向上させることが可能となる。

【００２３】

また、請求項４に記載の永久磁石によれば、永久磁石を構成する結晶粒をより微小な粒径範囲とすることが可能となる。その結果、永久磁石の磁気性能を向上させることが可能となる。

【００２４】

また、請求項５に記載の永久磁石によれば、永久磁石を構成する結晶粒の粒径を０．１μｍ～５．０μｍとすることができる。その結果、永久磁石の磁気性能を向上させることが可能となる。

【００２５】

また、請求項６に記載の永久磁石の製造方法によれば、製造過程で希土類元素が酸素と結び付いたとしても、化学量論組成に対して希土類元素が不足することなく、焼結後の永久磁石中にα－Ｆｅが生成されることを抑制することが可能となる。また、粉砕前後で磁石組成が大きく変動しないので粉砕後に磁石組成を変更する必要なく、製造工程を簡略化することができる。また、ヘリウム雰囲気下でジェットミル粉砕を行うとともに、ジェットミルと粉砕物回収装置との間で磁石粒子を循環させて繰り返し粉砕を行うので、従来のジェットミル粉砕では実現が難しかった微小範囲の粒径の磁石粉末を、高い歩留りで得ることが可能となる。その結果、磁気性能を向上させた永久磁石を高い工業生産性をもって製造することが可能となる。

【００２６】

また、請求項７に記載の永久磁石の製造方法によれば、焼結後の永久磁石中にＭリッチ相を均一に分散することが可能となるとともに、α－Ｆｅの生成を十分に抑制でき、また、残留磁束密度が低下することについても防止できる。

【００２７】

また、請求項８に記載の永久磁石の製造方法によれば、ジェットミル及び粉砕物回収装置を含む閉回路の酸素濃度を３０ｐｐｍ以下とするので、磁石原料を粉砕する際において、粉砕後の磁石粒子の酸化量を低く抑えることが可能となる。その結果、磁気性能を向上させた永久磁石を製造することが可能となる。

【００２８】

また、請求項９に記載の永久磁石の製造方法によれば、ジェットミル及び粉砕物回収装置を含む閉回路で循環されるヘリウムガス気流の圧力を０．４ＭＰａ～１．８ＭＰａとするので、より微小範囲の粒径の磁石粉末を、高い歩留りで得ることが可能となる。その結果、磁気性能を向上させた永久磁石を製造することが可能となる。

【００２９】

更に、請求項１０に記載の永久磁石の製造方法によれば、粒径が０．１μｍ～５．０μｍの磁石粉末を、高い歩留りで得ることが可能となる。その結果、磁気性能を大きく向上させた永久磁石を製造することが可能となる。

【図面の簡単な説明】

【００３０】

【図１】本発明に係る永久磁石を示した全体図である。

【図２】本発明に係る永久磁石の粒界付近を拡大して示した模式図である。
【図３】本発明に係る永久磁石の第１の製造方法における製造工程を示した説明図である。
【図４】本発明に係るジェットミル粉砕分級システムの概略構成を示した図である。
【図５】本発明に係る永久磁石の第２の製造方法における製造工程を示した説明図である。
【図６】水素中仮焼処理を行った場合と行わなかった場合の酸素量の変化を示した図である。
【図７】実施例と比較例の製造方法でそれぞれ粉砕した微粉砕磁石粉末の粒径を示した図である。
【図８】実施例の製造方法で粉砕した微粉砕磁石粉末の粒径分布を示した図である。
【発明を実施するための形態】
【００３１】
以下、本発明に係る永久磁石及び永久磁石の製造方法について具体化した実施形態について以下に図面を参照しつつ詳細に説明する。
【００３２】
［永久磁石の構成］
先ず、本発明に係る永久磁石１の構成について説明する。図１は本発明に係る永久磁石１を示した全体図である。尚、図１に示す永久磁石１は円柱形状を備えるが、永久磁石１の形状は成形に用いるキャビティの形状によって変化する。
本発明に係る永久磁石１としては例えばＮｄ－Ｆｅ－Ｂ系磁石を用いる。また、図２に示すように、永久磁石１は磁化作用に寄与する磁性相である主相１１と、非磁性で希土類元素の濃縮した低融点のＭリッチ相１２（Ｍは希土類元素であるＮｄ、Ｐｒ、Ｄｙ、Ｔｂの内、少なくとも一種を含む。）とが共存する合金である。図２は永久磁石１を構成するＮｄ磁石粒子を拡大して示した図である。
【００３３】
ここで、主相１１は化学量論組成である$Nd_2Fe_{14}B$金属間化合物相（Ｆｅは部分的にＣｏで置換しても良い）が高い体積割合を占めた状態となる。一方、Ｍリッチ相１２は同じく化学量論組成である$M_2Fe_{14}B$（Ｆｅは部分的にＣｏで置換しても良い）よりＭの組成比率が多い金属間化合物相（例えば、$M_{2.0\sim3.0}Fe_{14}B$金属間化合物相）からなる。また、Ｍリッチ相１２には磁気特性向上の為、Ｃｏ、Ｃｕ、Ａｌ、Ｓｉ等の他元素を少量含んでも良い。
【００３４】
そして、永久磁石１において、Ｍリッチ相１２は、以下のような役割を担っている。（１）融点が低く（約６００℃）、焼結時に液相となり、磁石の高密度化、即ち磁化の向上に寄与する。（２）粒界の凹凸を無くし、逆磁区のニュークリエーションサイトを減少させ保磁力を高める。（３）主相を磁気的に絶縁し保磁力を増加する。
従って、焼結後の永久磁石１中におけるＭリッチ相１２の分散状態が悪いと、局部的な焼結不良、磁性の低下をまねくため、焼結後の永久磁石１中にはＭリッチ相１２が均一に分散していることが重要となる。
【００３５】
また、Ｎｄ－Ｆｅ－Ｂ系磁石の製造において生じる問題として、焼結された合金中にα－Ｆｅが生成することが挙げられる。原因としては、化学量論組成に基づく含有量からなる磁石原料合金を用いて永久磁石を製造した場合に、製造過程で希土類元素が酸素と結び付き、化学量論組成に対して希土類元素が不足する状態となることが挙げられる。さらに、α－Ｆｅが、焼結後も磁石中に残存すれば、磁石の磁気特性の低下をもたらす。
【００３６】
そして、上述した永久磁石１におけるＮｄやＭを含む全希土類元素の含有量は、上記化学量論組成に基づく含有量（２６．７ｗｔ％）よりも０．１ｗｔ％～１０．０ｗｔ％、より好ましくは０．１ｗｔ％～５．０ｗｔ％多い範囲内であることが望ましい。具体的には

、各成分の含有量はＮｄ：２５～３７ｗｔ％、Ｍ：０．１～１０．０ｗｔ％、Ｂ：１～２ｗｔ％、Ｆｅ（電解鉄）：６０～７５ｗｔ％とする。永久磁石１中の希土類元素の含有量を上記範囲とすることによって、焼結後の永久磁石１中にＭリッチ相１２を均一に分散することが可能となる。また、製造過程で希土類元素が酸素と結び付いたとしても、化学量論組成に対して希土類元素が不足することなく、焼結後の永久磁石１中にα－Ｆｅが生成されることを抑制することが可能となる。

【００３７】

尚、永久磁石１中の希土類元素の含有量が上記範囲よりも少ない場合には、Ｍリッチ相１２が形成され難くなる。また、α－Ｆｅの生成を十分に抑制することができない。一方、永久磁石１中の希土類元素の組成が上記範囲より多い場合には、保磁力の増加が鈍化し、かつ残留磁束密度が低下してしまい、実用的ではない。

【００３８】

また、本発明では、粉砕時の磁石粉末中におけるＮｄやＭを含む全希土類元素の含有量は、上記化学量論組成に基づく含有量（２６．７ｗｔ％）である。そして、後述のようにＭ－（ＯＲ）$_x$（式中、Ｍは希土類元素であるＮｄ、Ｐｒ、Ｄｙ、Ｔｂの内、少なくとも一種を含む。Ｒは炭素数２～６のアルキル基のいずれかであり、直鎖でも分枝でも良い。ｘは任意の整数である。）で表わされるＭを含む有機金属化合物（例えば、ネオジウムエトキシド、ジスプロシウムプロポキシド、テルビウムプロポキシドなど）を有機溶媒に添加し、湿式状態で粉砕後の磁石粉末に添加する。その結果、有機金属化合物添加後の磁石粉末に含まれる希土類元素の含有量は、上記化学量論組成に基づく含有量（２６．７ｗｔ％）よりも０．１ｗｔ％～１０．０ｗｔ％、より好ましくは０．１ｗｔ％～５．０ｗｔ％多い範囲内となる。また、有機溶媒を用いて添加することによって、Ｍを含む有機金属化合物を有機溶媒中で分散させ、Ｎｄ磁石粒子の粒子表面にＭを含む有機金属化合物を均一付着することが可能となり、焼結後の永久磁石１においてＭリッチ相１２を均一に分散することが可能となる。

【００３９】

ここで、上記Ｍ－（ＯＲ）$_x$（式中、Ｍは希土類元素であるＮｄ、Ｐｒ、Ｄｙ、Ｔｂの内、少なくとも一種を含む。Ｒは炭素数２～６のアルキル基のいずれかであり、直鎖でも分枝でも良い。ｘは任意の整数である。）の構造式を満たす有機金属化合物として金属アルコキシドがある。金属アルコキシドとは、一般式Ｍ（ＯＲ）$_n$（Ｍ：金属元素、Ｒ：有機基、ｎ：金属又は半金属の価数）で表される。また、金属アルコキシドを形成する金属又は半金属としては、Ｎｄ、Ｐｒ、Ｄｙ、Ｔｂ、Ｗ、Ｍｏ、Ｖ、Ｎｂ、Ｔａ、Ｔｉ、Ｚｒ、Ｉｒ、Ｆｅ、Ｃｏ、Ｎｉ、Ｃｕ、Ｚｎ、Ｃｄ、Ａｌ、Ｇａ、Ｉｎ、Ｇｅ、Ｓｂ、Ｙ、ｌａｎｔｈａｎｉｄｅなどが挙げられる。但し、本発明では特に、希土類元素であるＮｄ、Ｐｒ、Ｄｙ、Ｔｂを用いる。

【００４０】

また、アルコキシドの種類は特に限定されることなく、例えば、メトキシド、エトキシド、プロポキシド、イソプロポキシド、ブトキシド、炭素数４以上のアルコキシド等が挙げられる。但し、本発明では後述のように低温分解で残炭を抑制する目的から、低分子量のものを用いる。また、炭素数１のメトキシドについては分解し易く、取扱いが困難であるので、特に炭素数が２～６のアルコキシドであるエトキシド、メトキシド、イソプロポキシド、プロポキシド、ブトキシドなどを用いることが好ましい。

【００４１】

以上のように本発明では、有機金属化合物を粉砕後の磁石粉末に対して添加することによって希土類元素の含有量を増加させる。この方法では、粉砕前に磁石原料に含まれる希土類元素の含有量を予め化学量論組成に基づく含有量よりも多くする方法と比較して、粉砕前後で磁石組成が大きく変動しない利点がある。従って、粉砕後に磁石組成を変更する必要がない。

【００４２】

また、圧粉成形により成形された成形体を適切な焼成条件で焼成すれば、Ｍが主相１１

内へと拡散浸透（固溶化）することを防止できる。それにより、本発明では、Ｍを添加したとしてもＭによる置換領域を外殻部分のみとすることができる。その結果、結晶粒全体としては（すなわち、焼結磁石全体としては）、コアの$Nd_2Fe_{14}B$金属間化合物相が高い体積割合を占めた状態となる。それにより、その磁石の残留磁束密度（外部磁場の強さを０にしたときの磁束密度）の低下を抑制することができる。

【００４３】

また、主相１１の結晶粒径は０．１μｍ～５．０μｍとすることが望ましい。尚、主相１１とＭリッチ相１２の構成は、例えばＳＥＭやＴＥＭや３次元アトムプローブ法により確認することができる。

【００４４】

また、ＭとしてＤｙ又はＴｂを用いれば、磁石粒子の粒界にＤｙ又はＴｂを偏在化することが可能となる。そして、粒界に偏在されたＤｙやＴｂが粒界の逆磁区の生成を抑制することで、保磁力の向上が可能となる。また、ＤｙやＴｂの添加量が従来に比べて少なくすることができ、残留磁束密度の低下を抑制することができる。

【００４５】

［永久磁石の製造方法１］

次に、本発明に係る永久磁石１の第１の製造方法について図３を用いて説明する。図３は本発明に係る永久磁石１の第１の製造方法における製造工程を示した説明図である。

【００４６】

先ず、化学量論組成に基づく分率のＮｄ－Ｆｅ－Ｂ（Ｎｄ：２６．７ｗｔ％、Ｆｅ（電解鉄）：７２．３ｗｔ％、Ｂ：１．０ｗｔ％）からなる、インゴットを製造する。その後、インゴットをスタンプミルやクラッシャー等によって２００μｍ程度の大きさに粗粉砕する。若しくは、インゴットを溶解し、ストリップキャスト法でフレークを作製し、水素解砕法で粗粉化する。それによって、粗粉砕磁石粉末３１を得る。

【００４７】

次いで、粗粉砕磁石粉末３１を、リターン方式を採用したジェットミル粉砕分級システム３２により微粉砕し、所定範囲の粒径（例えば０．１μｍ～５．０μｍ）の微粉砕磁石粉末３３のみを分級して回収する。

【００４８】

以下に、図４を用いてジェットミル粉砕分級システム３２について説明する。図４は本発明に係るジェットミル粉砕分級システム３２の概略構成を示した図である。

図４に示すようにジェットミル粉砕分級システム３２は、ジェットミル３４と、サイクロン分級機３５と、フィルタ３６と、コンプレッサ３７と、ヘリウムガス気流を循環させる配管３８とから構成される。

【００４９】

ジェットミル３４は、乾式の粉砕装置であって、配管３８を介してサイクロン分級機３５、フィルタ３６、コンプレッサ３７との間で閉回路を構成する。また、その閉回路では、０．４ＭＰａ～１．８ＭＰａ、より好ましくは１．５ＭＰａ程度の圧力でヘリウムガス気流を循環させる。そして、ヘリウムガス気流により搬送された粗粉砕磁石粉末３１を、衝突板に衝突させることや粒子同士を衝突させることにより粉砕する。粉砕された粉砕物は、同じくヘリウムガス気流によりサイクロン分級機３５へと搬送される。

【００５０】

サイクロン分級機３５は、ジェットミル３４で粉砕された粉砕物のうち、所定の範囲（例えば０．１μｍ～５．０μｍ）の粒径のものを分級する。そして、分級された所定の範囲の粒径の粉砕物を微粉砕磁石粉末３３としてフィルタ３６により回収する。即ち、サイクロン分級機３５及びフィルタ３６により粉砕物回収装置を構成する。また、本発明では、サイクロン分級機３５で回収されなかった粉砕物を補集してヘリウムガス気流により再度ジェットミル３４へと搬送する補集装置を備える。従って、ジェットミル３４による粉砕後に所定の範囲（例えば０．１μｍ～５．０μｍ）の粒径とならなかった粉砕物は、再度ジェットミル３４により粉砕が行われることとなる（リターン方式）。

【００５１】
一方、コンプレッサ３７は、フィルタ３６を通過したヘリウムガスを吸入して所定圧力で吐出する装置である。それによって、閉回路内で、０．４ＭＰａ～１．８ＭＰａ、より好ましくは１．５ＭＰａ程度の圧力でヘリウムガス気流を循環させる。
【００５２】
また、ジェットミル粉砕分級システム３２は、閉回路内の酸素濃度を１０００ｐｐｍ以下、より好ましくは３０ｐｐｍ以下として稼働を行うのが好ましい。それによって、磁石原料を粉砕する際において、粉砕後の磁石粒子の酸化量を低く抑えることが可能となる。その結果、磁気性能を向上させた永久磁石１を製造することが可能となる。
【００５３】
そして、上記ジェットミル粉砕分級システム３２を用いることにより、従来のジェットミルやサイクロン分級機を用いた場合と比較して、微小な粒径範囲（例えば０．１μｍ～５．０μｍ）の磁石粉末を高い歩留りで得ることが可能となる。
【００５４】
図３に戻り、本発明に係る永久磁石１の第１の製造方法について説明する。
磁石粉末の粉砕、分級を行う一方で、ジェットミル粉砕分級システム３２で微粉砕された微粉砕磁石粉末３３に添加する有機金属化合物溶液を作製する。ここで、有機金属化合物溶液には予め希土類元素を含む有機金属化合物を添加し、溶解させる。尚、溶解させる有機金属化合物としては、Ｍ－（ＯＲ）$_{x}$（式中、Ｍは希土類元素であるＮｄ、Ｐｒ、Ｄｙ、Ｔｂの内、少なくとも一種を含む。Ｒは炭素数２～６のアルキル基のいずれかであり、直鎖でも分枝でも良い。ｘは任意の整数である。）に該当する有機金属化合物（例えば、ネオジウムエトキシド、ジスプロシウムプロポキシド、テルビウムプロポキシドなど）を用いる。また、溶解させる希土類元素を含む有機金属化合物の量は特に制限されないが、前記したように永久磁石に含まれる希土類元素の含有量が化学量論組成に基づく含有量（２６．７ｗｔ％）よりも０．１ｗｔ％～１０．０ｗｔ％、より好ましくは０．１ｗｔ％～５．０ｗｔ％多くなる範囲とするのが好ましい。
【００５５】
続いて、ジェットミル粉砕分級システム３２にて分級された微粉砕磁石粉末３３に対して上記有機金属化合物溶液を添加する。それによって、磁石原料の微粉砕磁石粉末３３と有機金属化合物溶液とが混合されたスラリー４２を生成する。尚、有機金属化合物溶液の添加は、窒素ガス、Ａｒガス、Ｈｅガスなど不活性ガスからなる雰囲気で行う。
【００５６】
その後、生成したスラリー４２を成形前に真空乾燥などで事前に乾燥させ、乾燥した磁石粉末４３を取り出す。その後、乾燥した磁石粉末を成形装置５０により所定形状に圧粉成形する。尚、圧粉成形には、上記の乾燥した微粉末をキャビティに充填する乾式法と、溶媒などでスラリー状にしてからキャビティに充填する湿式法があるが、本発明では乾式法を用いる場合を例示する。また、有機金属化合物溶液は成形後の焼成段階で揮発させることも可能である。
【００５７】
図３に示すように、成形装置５０は、円筒状のモールド５１と、モールド５１に対して上下方向に摺動する下パンチ５２と、同じくモールド５１に対して上下方向に摺動する上パンチ５３とを有し、これらに囲まれた空間がキャビティ５４を構成する。
また、成形装置５０には一対の磁界発生コイル５５、５６がキャビティ５４の上下位置に配置されており、磁力線をキャビティ５４に充填された磁石粉末４３に印加する。印加させる磁場は例えば１ＭＡ／ｍとする。
【００５８】
そして、圧粉成形を行う際には、先ず乾燥した磁石粉末４３をキャビティ５４に充填する。その後、下パンチ５２及び上パンチ５３を駆動し、キャビティ５４に充填された磁石粉末４３に対して矢印６１方向に圧力を加え、成形する。また、加圧と同時にキャビティ５４に充填された磁石粉末４３に対して、加圧方向と平行な矢印６２方向に磁界発生コイ

ル５５、５６によってパルス磁場を印加する。それによって、所望の方向に磁場を配向させる。尚、磁場を配向させる方向は、磁石粉末４３から成形される永久磁石１に求められる磁場方向を考慮して決定する必要がある。

また、湿式法を用いる場合には、キャビティ５４に磁場を印加しながらスラリーを注入し、注入途中又は注入終了後に、当初の磁場より強い磁場を印加して湿式成形しても良い。また、加圧方向に対して印加方向が垂直となるように磁界発生コイル５５、５６を配置しても良い。

【００５９】

次に、圧粉成形により成形された成形体７１を水素雰囲気において２００℃～９００℃、より好ましくは４００℃～９００℃（例えば６００℃）で数時間（例えば５時間）保持することにより水素中仮焼処理を行う。仮焼中の水素の供給量は５Ｌ／ｍｉｎとする。この水素中仮焼処理では、有機金属化合物を熱分解させて、仮焼体中の炭素量を低減させる所謂脱カーボンが行われる。また、水素中仮焼処理は、仮焼体中の炭素量が１０００ｐｐｍ以下、より好ましくは５００ｐｐｍ以下とする条件で行うこととする。それによって、その後の焼結処理で永久磁石１全体を緻密に焼結させることが可能となり、残留磁束密度や保磁力を低下させることが無い。

【００６０】

ここで、上述した水素中仮焼処理によって仮焼された成形体７１には、NdH_3やNdH_2が存在し、酸素と結び付きやすくなる問題があるが、第１の製造方法では、成形体７１は水素仮焼後に外気と触れさせることなく、後述の真空焼成に移るため脱水素工程は不要となる。焼成中に成形体中の水素は抜けることとなる。

【００６１】

続いて、水素中仮焼処理によって仮焼された成形体７１を焼結する焼結処理を行う。焼結処理では、所定の昇温速度で８００℃～１１８０℃程度まで昇温し、２時間程度保持する。この間は真空焼成となるが真空度としては10^{-4}Ｔｏｒｒ以下とすることが好ましい。その後冷却し、再び６００℃で２時間熱処理を行う。そして、焼結の結果、永久磁石１が製造される。

【００６２】

［永久磁石の製造方法２］

次に、本発明に係る永久磁石１の他の製造方法である第２の製造方法について図５を用いて説明する。図５は本発明に係る永久磁石１の第２の製造方法における製造工程を示した説明図である。

【００６３】

尚、スラリー４２を生成するまでの工程は、図３を用いて既に説明した第１の製造方法における製造工程と同様であるので説明は省略する。

【００６４】

先ず、生成したスラリー４２を成形前に真空乾燥などで事前に乾燥させ、乾燥した磁石粉末４３を取り出す。その後、乾燥した磁石粉末４３を水素雰囲気において２００℃～９００℃、より好ましくは４００℃～９００℃（例えば６００℃）で数時間（例えば５時間）保持することにより水素中仮焼処理を行う。仮焼中の水素の供給量は５Ｌ／ｍｉｎとする。この水素中仮焼処理では、有機金属化合物を熱分解させて、仮焼体中の炭素量を低減させる所謂脱カーボンが行われる。また、水素中仮焼処理は、仮焼体中の炭素量が１０００ｐｐｍ以下、より好ましくは５００ｐｐｍ以下とする条件で行うこととする。それによって、その後の焼結処理で永久磁石１全体を緻密に焼結させることが可能となり、残留磁束密度や保磁力を低下させることが無い。

【００６５】

次に、水素中仮焼処理によって仮焼された粉末状の仮焼体８２を真空雰囲気で２００℃～６００℃、より好ましくは４００℃～６００℃で１～３時間保持することにより脱水素処理を行う。尚、真空度としては０．１Ｔｏｒｒ以下とすることが好ましい。

【００６６】

ここで、上述した水素中仮焼処理によって仮焼された仮焼体８２には、ＮｄＨ$_3$やＮｄＨ$_2$が存在し、酸素と結び付きやすくなる問題がある。

図６は水素中仮焼処理をしたＮｄ磁石粉末と水素中仮焼処理をしていないＮｄ磁石粉末とを、酸素濃度７ｐｐｍ及び酸素濃度６６ｐｐｍの雰囲気にそれぞれ暴露した際に、暴露時間に対する磁石粉末内の酸素量を示した図である。図６に示すように水素中仮焼処理した磁石粉末は、高酸素濃度６６ｐｐｍ雰囲気におかれると、約１０００ｓｅｃで磁石粉末内の酸素量が０．４％から０．８％まで上昇する。また、低酸素濃度７ｐｐｍ雰囲気におかれても、約５０００ｓｅｃで磁石粉末内の酸素量が０．４％から同じく０．８％まで上昇する。そして、Ｎｄ磁石粒子が酸素と結び付くと、残留磁束密度や保磁力の低下の原因となる。

そこで、上記脱水素処理では、水素中仮焼処理によって生成された仮焼体８２中のＮｄＨ$_3$（活性度大）やＮｄＨ$_2$（活性度中）を、ＮｄＨ$_3$（活性度大）→ＮｄＨ$_2$（活性度中）→Ｎｄ（活性度小）へと段階的に変化させることによって、水素仮焼中処理により活性化された仮焼体８２の活性度を低下させる。それによって、水素中仮焼処理によって仮焼された仮焼体８２をその後に大気中へと移動させた場合であっても、Ｎｄ磁石粒子が酸素と結び付くことを防止し、残留磁束密度や保磁力を低下させることが無い。

【００６７】

その後、脱水素処理が行われた粉末状の仮焼体８２を成形装置５０により所定形状に圧粉成形する。成形装置５０の詳細については図３を用いて既に説明した第１の製造方法における製造工程と同様であるので説明は省略する。

【００６８】

その後、成形された仮焼体８２を焼結する焼結処理を行う。焼結処理では、所定の昇温速度で８００℃～１１８０℃程度まで昇温し、２時間程度保持する。この間は真空焼成となるが真空度としては10^{-4}Ｔｏｒｒ以下とすることが好ましい。その後冷却し、再び６００℃で２時間熱処理を行う。そして、焼結の結果、永久磁石１が製造される。

【００６９】

尚、上述した第２の製造方法では、粉末状の磁石粒子に対して水素中仮焼処理を行うので、成形後の磁石粒子に対して水素中仮焼処理を行う前記第１の製造方法と比較して、有機金属化合物の熱分解を磁石粒子全体に対してより容易に行うことができる利点がある。即ち、前記第１の製造方法と比較して仮焼体中の炭素量をより確実に低減させることが可能となる。

一方、第１の製造方法では、成形体７１は水素仮焼後に外気と触れさせることなく、後述の真空焼成に移るため脱水素工程は不要となる。従って、前記第２の製造方法と比較して製造工程を簡略化することが可能となる。但し、前記第２の製造方法においても、水素仮焼後に外気と触れさせることがなく焼成を行う場合には、脱水素工程は不要となる。

【実施例】

【００７０】

以下に、本発明の実施例に係る永久磁石１の製造方法について、比較例１～３と比較しつつ説明する。

（実施例１）

上述したジェットミル粉砕分級システム３２を用いて粗粉砕磁石粉末３１を粉砕、分級した。ジェットミル粉砕分級システム３２内で循環させるガスをヘリウムガスとし、循環させるヘリウムガスの圧力は０．６ＭＰａとした。

【００７１】

（実施例２）

ジェットミル粉砕分級システム３２内で循環させるガスをヘリウムガスとし、循環させるヘリウムガスの圧力は１．５ＭＰａとした。

【００７２】

（比較例１）

リターン方式を用いない従来のクローズ式のジェットミル粉砕分級システムを用いて粗

粉砕磁石粉末３１を粉砕、分級した。循環させるガスをヘリウムガスとし、循環させるヘリウムガスの圧力は０．６ＭＰａとした。他の条件は実施例１と同様である。

【００７３】

（比較例２）

ジェットミル粉砕分級システムで循環させるガスを窒素ガスとし、循環させる窒素ガスの圧力は０．６ＭＰａとした。他の条件は比較例１と同様である。

【００７４】

（比較例３）

ジェットミル粉砕分級システムで循環させるガスを窒素ガスとし、循環させる窒素ガスの圧力は１．５ＭＰａとした。他の条件は比較例１と同様である。

【００７５】

（粉砕後の磁石粒子の平均粒径に基づく実施例と比較例との比較検討）

図７は、サイクロン分級機３５に回収した磁石粉末の粒度分布を測定するための粒度分布測定装置を設け、実施例１と比較例１～３のそれぞれについて回収された磁石粉末の平均粒径［μｍ］を示した図である。

図７に示すように、実施例１、２と比較例１～３とを比較すると、サイクロン分級機３５で回収されなかった粉砕物を補集して再度ジェットミル３４へと搬送するリターン方式を採用することによって、平均粒径のより小さい磁石粉末を回収することが可能となる。また、比較例１と比較例２を比較すると、循環させるガスをヘリウムガスとすることによって、平均粒径のより小さい磁石粉末を回収することが可能となる。また、実施例１と実施例２或いは比較例２と比較例３を比較すると、循環させるガスの圧力を０．４ＭＰａ～１．８ＭＰａ、より好ましくは１．５ＭＰａとすることによって、平均粒径のより小さい磁石粉末を回収することが可能となる。

更に、実施例２では、循環させるガスをヘリウムガスとし、循環させるガスの圧力を０．４ＭＰａ～１．８ＭＰａとすることによって、同じく平均粒径を０．５７μｍと非常に小さい値とすることが可能となる。そして、実施例１では、循環させるガスをヘリウムガスとし、循環させるガスの圧力を１．５ＭＰａとすることによって、平均粒径を０．４４μｍと更に小さい値とすることが可能となる。従って、循環させるガスをヘリウムガスとし、且つ循環させるガスの圧力を０．４ＭＰａ～１．８ＭＰａ、より好ましくは１．５ＭＰａとすることによって、微小な粒径範囲（例えば０．１μｍ～５．０μｍ）の磁石粉末を高い歩留りで得ることが可能であることが分かる。

【００７６】

（実施例の永久磁石の製造方法における粉砕後の磁石粉末の粒径分布結果検討）

図８は、サイクロン分級機３５に回収した磁石粉末の粒度分布を測定するための粒度分布測定装置を設け、実施例２で回収された磁石粉末の粒径分布を示した図である。

図８に示すように、実施例２では回収された磁石粉末は、微小な粒径範囲である０．２μｍ～０．８μｍに分布が偏っている。従って、微小な粒径範囲（例えば０．１μｍ～５．０μｍ）の磁石粉末を高い歩留りで得ることが可能であることが分かる。

【００７７】

以上説明したように、本実施形態に係る永久磁石１及び永久磁石１の製造方法では、粗粉砕された磁石粉末をジェットミル粉砕分級システム３２へと搬送し、ヘリウム雰囲気下でジェットミル粉砕を行うとともに、ジェットミル３４とサイクロン分級機３５との間で磁石粒子を循環させて繰り返し粉砕を行い、所定の範囲（例えば０．１μｍ～５．０μｍ）の粒径のものを分級して回収するので、従来のジェットミル粉砕では実現が難しかった微小範囲の粒径の磁石粉末を、高い歩留りで得ることを可能となる。その結果、磁気性能を向上させた永久磁石を高い工業生産性をもって製造することが可能となる。

また、ジェットミル粉砕分級システム３２における閉回路の酸素濃度が３０ｐｐｍ以下とするので、磁石原料を粉砕する際において、粉砕後の磁石粒子の酸化量を低く抑えることが可能となる。その結果、磁気性能を向上させた永久磁石を製造することが可能となる。

また、ジェットミル粉砕分級システム３２における閉回路で循環されるヘリウムガス気流の圧力を０．４ＭＰａ～１．８ＭＰａとするので、より微小範囲の粒径の磁石粉末を、高い歩留りで得ることが可能となる。その結果、磁気性能を向上させた永久磁石を製造することが可能となる。

また、ジェットミル粉砕分級システム３２では、特に０．１μｍ～５．０μｍの粒径のものを分級して回収することとすれば、微小な粒径の磁石粉末を、高い歩留りで得ることが可能となる。その結果、磁気性能を大きく向上させた永久磁石を製造することが可能となる。

また、ジェットミル粉砕分級システム３２により回収された磁石粉末に対して、Ｍ－（ＯＲ）ｘ（式中、Ｍは希土類元素であるＮｄ、Ｐｒ、Ｄｙ、Ｔｂの内、少なくとも一種を含む。Ｒは炭素数２～６のアルキル基のいずれかであり、直鎖でも分枝でも良い。ｘは任意の整数である。）で示される有機金属化合物が添加された有機金属化合物溶液を加え、磁石の粒子表面に対して均一に有機金属化合物を付着させた後に、成形及び焼結を行うので、製造過程で希土類元素が酸素と結び付いたとしても、化学量論組成に対して希土類元素が不足することなく、焼結後の永久磁石中にα－Ｆｅが生成されることを抑制することが可能となる。また、粉砕前後で磁石組成が大きく変動しないので粉砕後に磁石組成を変更する必要なく、製造工程を簡略化することができる。

特に、有機金属化合物添加後の希土類元素の含有量を、化学量論組成に基づく含有量（２６．７ｗｔ％）よりも０．１ｗｔ％～１０．０ｗｔ％、より好ましくは０．１ｗｔ％～５．０ｗｔ％多い範囲内とすることによって、Ｍリッチ相を均一に分散することが可能となるとともに、α－Ｆｅの生成を十分に抑制でき、また、残留磁束密度が低下することについても防止できる。

【００７８】

尚、本発明は前記実施例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内で種々の改良、変形が可能であることは勿論である。

また、磁石粉末の粉砕条件、混練条件、焼結条件などは上記実施例に記載した条件に限られるものではない。

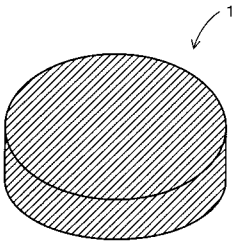
また、水素中仮焼処理や脱水素工程については省略しても良い。

【符号の説明】

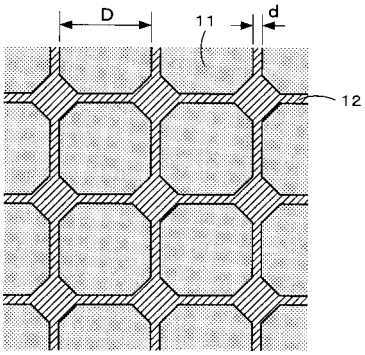
【００７９】

１	永久磁石
１１	主相
１２	Ｍリッチ相
３２	ジェットミル粉砕分級システム
３４	ジェットミル
３５	サイクロン分級機

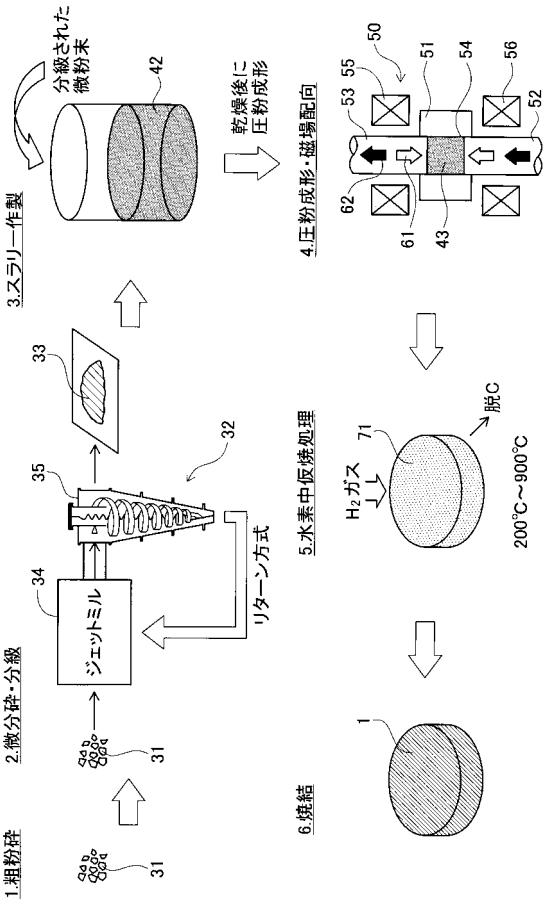
【図１】


1

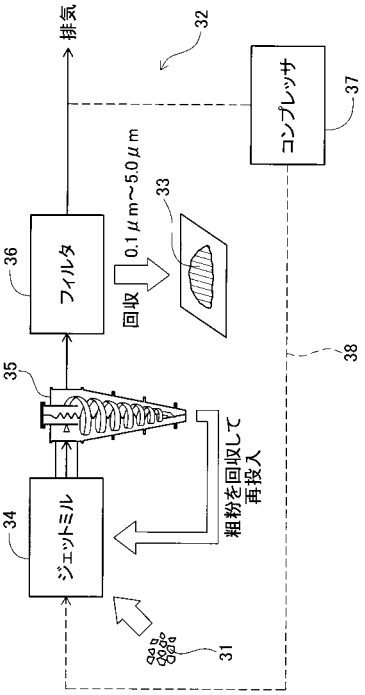
【図２】


D
11
d
12

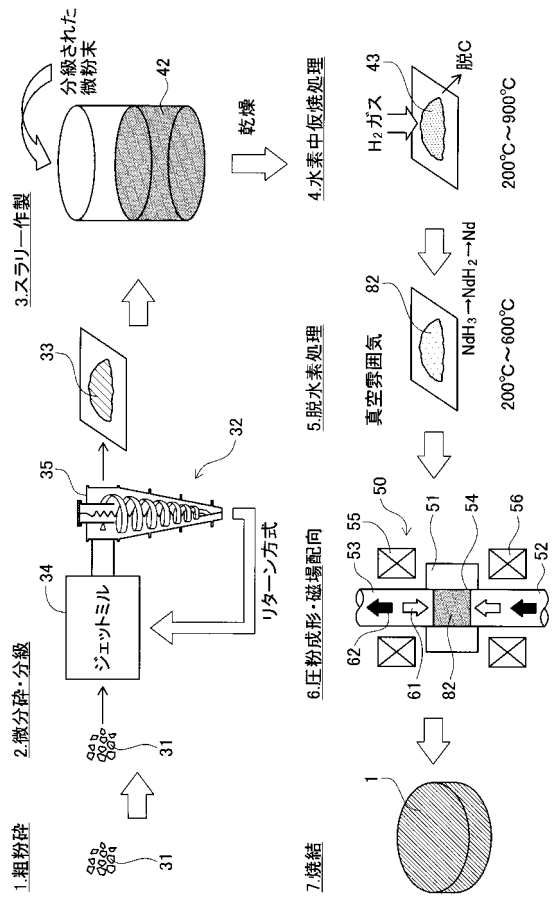
【図３】


1.粗粉砕
2.微分砕・分級
3.スラリー作製
4.圧粉成形・磁場配向
5.水素中仮焼処理
6.焼結
分級された微粉末
乾燥後に圧粉成形
ジェットミル
リターン方式
H2ガス
脱C
200℃～900℃

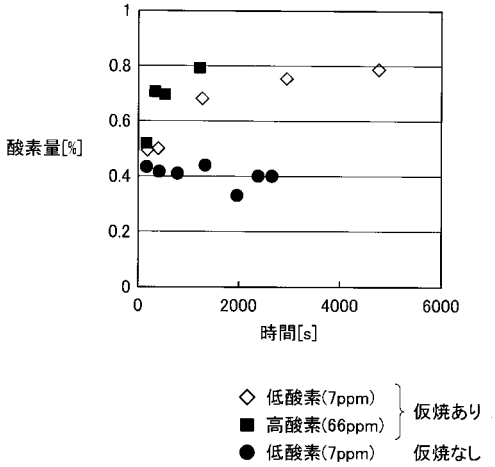
【図４】


排気
コンプレッサ
フィルタ
回収
0.1μm～5.0μm
粗粉を回収して再投入
ジェットミル

【図５】


1.粗粉砕
2.微分砕・分級
3.スラリー作製
4.水素中仮焼処理
5.脱水素処理
6.圧粉成形・磁場配向
7.焼結
分級された微粉末
乾燥
ジェットミル
リターン方式
H2ガス
脱C
真空雰囲気
NdH3→NdH2→Nd
200℃～900℃
200℃～600℃

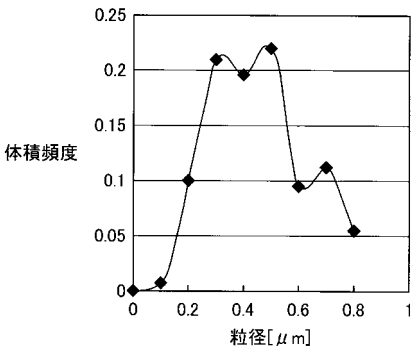
【図６】



【図７】

	循環ガス	圧力(MPa)	リターン有無	平均粒径(μm)
実施例1	He	0.6	有	0.57
実施例2	He	1.5	有	0.44
比較例1	He	0.6	無	2.2
比較例2	N_2	0.6	無	4.0
比較例3	N_2	1.5	無	2.6

【図８】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.			FI		
B22F	*1/02*	*(2006.01)*	B22F	9/04	E
B22F	*3/00*	*(2006.01)*	B22F	1/02	C
B22F	*3/02*	*(2006.01)*	B22F	3/00	F
C22C	*33/02*	*(2006.01)*	B22F	3/02	R
			C22C	33/02	J

(72)発明者　大牟礼　智弘
大阪府茨木市下穂積１丁目１番２号　日東電工株式会社内
(72)発明者　太白　啓介
大阪府茨木市下穂積１丁目１番２号　日東電工株式会社内

審査官　塩▲崎▼　義晃

(56)参考文献　特開２００２－２８５２０８（ＪＰ，Ａ）
国際公開第２００９／１２２７０９（WO，Ａ１）
特開２００９－２５９９５６（ＪＰ，Ａ）
国際公開第２００９／１２８４６０（WO，Ａ１）
特開２００６－２８６８５９（ＪＰ，Ａ）
特開２００６－３５１６８８（ＪＰ，Ａ）
特開平０７－０７４０４２（ＪＰ，Ａ）
特開２００９－２５９９５７（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)
Ｂ２２Ｆ　１／００－　８／００
Ｃ２２Ｃ　１／０４－　１／０５
５／００－２５／００
２７／００－２８／００
３０／００－３０／０６
３３／０２
３５／００－４５／１０
Ｈ０１Ｆ　１／００－　１／１１
１／４０
４１／００－４１／０４
４１／０８－４１／１０