

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5501834号
(P5501834)

(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	
H O 1 F 1/08 (2006.01)	H O 1 F 1/08	B
H O 1 F 41/02 (2006.01)	H O 1 F 41/02	G
H O 1 F 1/057 (2006.01)	H O 1 F 1/04	H
B 2 2 F 1/02 (2006.01)	B 2 2 F 1/02	C
B 2 2 F 1/00 (2006.01)	B 2 2 F 1/00	Y
請求項の数 9 (全 18 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号	特願2010-84396 (P2010-84396)	(73) 特許権者	000003964 日東電工株式会社
(22) 出願日	平成22年3月31日(2010.3.31)		大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号
(65) 公開番号	特開2011-216727 (P2011-216727A)	(74) 代理人	110000992 特許業務法人ネクスト
(43) 公開日	平成23年10月27日(2011.10.27)	(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
審査請求日	平成24年11月26日(2012.11.26)	(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】

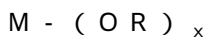
磁石原料合金を粗粉碎して粗粉碎磁石粉末を得る工程と、
ジェットミル及び粉碎物回収装置を含む閉回路でヘリウムガス気流を循環させた状態で、前記粗粉碎磁石粉末を前記ヘリウムガス気流により前記ジェットミルへと搬送し、ヘリウムガス雰囲気中でジェットミル粉碎を行なうことにより微粉碎して微粉碎磁石粉末を得る工程と、

前記微粉碎磁石粉末の内、所定範囲の粒径の前記微粉碎磁石粉末を前記粉碎物回収装置により回収する工程と、

前記粉碎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碎物回収装置により回収されずに残存する前記微粉碎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、

前記粉碎物回収装置により回収された前記微粉碎磁石粉末に以下の構造式



(式中、MはV、Mo、Zr、Ta、Ti、W又はNbであり、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、前記微粉碎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碎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碎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中で仮焼する工程と、

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】

前記ジェットミル及び前記粉碎物回収装置を含む閉回路の酸素濃度が 30 ppm 以下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碎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 0.4 MPa ~ 1.8 MPa 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。

10

【請求項 4】

前記微粉碎磁石粉末を前記粉碎物回収装置により回収する工程は、単磁区粒子径を有する前記微粉碎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 3 のいずれかに記載の永久磁石。

【請求項 5】

前記有機金属化合物を形成する金属が、焼結後に前記永久磁石の粒界に偏在してい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】

磁石原料合金を粗粉碎して粗粉碎磁石粉末を得る工程と、

20

ジェットミル及び粉碎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、前記粗粉碎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碎を行なうことにより微粉碎して微粉碎磁石粉末を得る工程と、

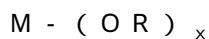
前記微粉碎磁石粉末の内、所定範囲の粒径の前記微粉碎磁石粉末を前記粉碎物回収装置により回収する工程と、

前記粉碎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碎物回収装置により回収されずに残存する前記微粉碎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

30

前記粉碎物回収装置により回収された前記微粉碎磁石粉末に以下の構造式



(式中、MはV、Mo、Zr、Ta、Ti、W又はNbであり、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、前記微粉碎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碎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碎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中で仮焼する工程と、

40

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】

前記ジェットミル及び前記粉碎物回収装置を含む閉回路では、酸素量 30 ppm 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 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碎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 0.4 MPa ~ 1.8 MPa であ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】

前記微粉碎磁石粉末を前記粉碎物回収装置により回収する工程は、単磁区粒子径を有す

50

る前記微粉碎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8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。

10

【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、先ず原材料を粗粉碎し、ジェットミル(乾式粉碎)により微粉碎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。

20

【0004】

また、Nd-Fe-B等のNd系磁石は、耐熱温度が低いことが問題であった。従って、Nd系磁石を永久磁石モータに用いる場合には、該モータを連続駆動させると磁石の残留磁束密度が徐々に低下することとなっていた。そこで、Nd系磁石を永久磁石モータに用いる場合には、Nd系磁石の耐熱性を向上させるために、磁気異方性の高いDy(ジスプロシウム)やTb(テルビウム)を添加し、磁石の保磁力を更に向上させることが図られている。

30

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【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】

【0006】

その一方で、DyやTbを使用することなく、磁石の保磁力を向上させることも考えられる。例えば、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。ここで、焼結体の結晶粒径を微小にするためには、焼結前の磁石原料の粒径も微小にする必要がある。具体的には、Nd系磁石では結晶粒径が0.2 μ m~1.2 μ mの範囲にあると、その結晶粒は単磁区となる。従って、磁石原料を粉碎する際には、粒径がその範囲を満たすサイズまで磁石粒子を粉碎する必要がある。尚、単磁区とは熱消磁状態で内部に磁壁が存在せず、一つの磁化方向のみが存在する領域をいう。

40

【0007】

しかし、前記特許文献1のように先ず原材料を粗粉碎し、粗粉碎した粉末をジェットミル(乾式粉碎)により微粉碎する方式では、結晶を単磁区とする為に必要とされる粒径の範囲(例えば0.2 μ m~1.2 μ m)まで粉碎できる粒子は、粉碎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。

【0008】

50

また、微小な粒径に微粉碎された磁石原料は、焼結する際に磁石粒子の粒成長が発生するので、焼結後の焼結体の結晶粒径が焼結前よりも大きくなり、微小な結晶粒径を実現することができない問題もあった。更に、焼結後の各磁石粒子を微小にすることができたとしても、焼結後の各磁石粒子が密な状態にあると、各磁石粒子間で交換相互作用が伝搬することが考えられる。その結果、外部から磁場が加わった場合に各磁石粒子の磁化反転が容易に生じ、保磁力が低下する問題があった。

【 0 0 0 9 】

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碎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、また、有機金属化合物に含まれるV、Mo、Zr、Ta、Ti、W又はNbを磁石の粒界に対して効率よく偏在配置することが可能となり、焼結時の磁石粒子の粒成長を抑制することができるとともに、磁石粒子間での交換相互作用を分断することによって各磁石粒子の磁化反転を妨げ、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】

【 0 0 1 0 】

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、磁石原料合金を粗粉碎して粗粉碎磁石粉末を得る工程と、ジェットミル及び粉碎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、前記粗粉碎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碎を行なうことにより微粉碎して微粉碎磁石粉末を得る工程と、前記微粉碎磁石粉末の内、所定範囲の粒径の前記微粉碎磁石粉末を前記粉碎物回収装置により回収する工程と、前記粉碎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碎物回収装置により回収されずに残存する前記微粉碎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、前記粉碎物回収装置により回収された前記微粉碎磁石粉末に以下の構造式M - (OR)_x (式中、MはV、Mo、Zr、Ta、Ti、W又はNbであり、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、前記微粉碎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碎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碎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中で仮焼する工程と、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。

【 0 0 1 1 】

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、前記ジェットミル及び粉碎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。

【 0 0 1 2 】

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碎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。

【 0 0 1 3 】

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、前記微粉碎磁石粉末を前記粉碎物回収装置により回収する工程は、単磁区粒子径を有する前記微粉碎磁石粉末を回収することを特徴とする。

尚、単磁区粒子径とは単磁区粒子(熱消磁状態で内部に磁壁が存在せず、一つの磁化方向のみが存在する小領域からなる粒子)が有する粒径であり、例えば0.2μm～1.2μmの粒径の粒子とする。

【 0 0 1 4 】

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、前記有機金属化合物を形成する金属が、焼結後に前記永久磁石の粒界に偏在していることを特徴とする。

【 0 0 1 5 】

更に、請求項 6 に係る永久磁石の製造方法は、磁石原料合金を粗粉碎して粗粉碎磁石粉末を得る工程と、ジェットミル及び粉碎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、前記粗粉碎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碎を行なうことにより微粉碎して微粉碎磁石粉末を得る工程と、前記微粉碎磁石粉末の内、所定範囲の粒径の前記微粉碎磁石粉末を前記粉碎物回収装置により回収する工程と、前記粉碎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碎物回収装置により回収されずに残存する前記微粉碎磁石粉末を前記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、前記粉碎物回収装置により回収された前記微粉碎磁石粉末に以下の構造式 $M - (OR)_x$ (式中、M は V、Mo、Zr、Ta、Ti、W 又は Nb であり、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、前記微粉碎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碎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碎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中で仮焼する工程と、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。

10

20

【 0 0 1 6 】

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、前記ジェットミル及び粉碎物回収装置を含む閉回路の酸素濃度が 30 ppm 以下であることを特徴とする。

【 0 0 1 7 】

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碎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 1.2 MPa ~ 1.8 MPa であることを特徴とする。

【 0 0 1 8 】

更に、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、前記微粉碎磁石粉末を前記粉碎物回収装置により回収する工程は、単磁区粒子径を有する前記微粉碎磁石粉末を回収することを特徴とする。

30

【 発 明 の 効 果 】

【 0 0 1 9 】

前記構成を有する請求項 1 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。また、磁石原料を粉碎する際にヘリウム雰囲気中でジェットミル粉碎を行うとともに、ジェットミルと粉碎物回収装置との間で磁石粒子を循環させて繰り返し粉碎を行うので、従来のジェットミル粉碎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、工業生産性についても向上する。

40

更に、請求項 1 に記載の永久磁石によれば、V、Mo、Zr、Ta、Ti、W 又は Nb を磁石の粒界に対して効率よく偏在配置することが可能となる。その結果、焼結時の磁石粒子の粒成長を抑制することができるとともに、磁石粒子間での交換相互作用を分断することによって各磁石粒子の磁化反転を妨げ、磁気性能を向上させることが可能となる。また、V、Mo、Zr、Ta、Ti、W 又は Nb の添加量を少量にできるので、残留磁束密度の低下を抑制することができる。

【 0 0 2 0 】

また、請求項 2 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。

50

【 0 0 2 1 】

また、請求項 3 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。

【 0 0 2 2 】

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それぞれ単磁区構造とすることができる。その結果、永久磁石の磁気性能を大きく向上させることが可能となる。

【 0 0 2 3 】

また、請求項 5 に記載の永久磁石によれば、高融点金属である V、Mo、Zr、Ta、Ti、W 又は Nb が焼結後に磁石の粒界に偏在するので、粒界に偏在された V、Mo、Zr、Ta、Ti、W 又は Nb が焼結時の磁石粒子の粒成長を抑制するとともに、磁石粒子間での交換相互作用を分断することによって各磁石粒子の磁化反転を妨げ、磁気性能を向上させることが可能となる。

10

【 0 0 2 4 】

また、請求項 6 に記載の永久磁石の製造方法によれば、ヘリウム雰囲気下でジェットミル粉碎を行うとともに、ジェットミルと粉碎物回収装置との間で磁石粒子を循環させて繰り返し粉碎を行うので、従来のジェットミル粉碎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。

20

更に、請求項 6 に記載の永久磁石の製造方法によれば、少量の V、Mo、Zr、Ta、Ti、W 又は Nb を磁石の粒界に対して効率よく偏在させた永久磁石を製造することが可能となる。その結果、製造された永久磁石において、焼結時の磁石粒子の粒成長を抑制することができるとともに、磁石粒子間での交換相互作用を分断することによって各磁石粒子の磁化反転を妨げ、磁気性能を向上させることが可能となる。また、V、Mo、Zr、Ta、Ti、W 又は Nb の添加量を従来に比べて少量にできるので、残留磁束密度の低下を抑制することができる。

【 0 0 2 5 】

また、請求項 7 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碎物回収装置を含む閉回路の酸素濃度を 30 ppm 以下とするので、磁石原料を粉碎する際において、粉碎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。

30

【 0 0 2 6 】

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碎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 0.4 MPa ~ 1.8 MPa 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。

【 0 0 2 7 】

更に、請求項 9 に記載の永久磁石の製造方法によれば、単磁区粒子径の磁石粉末を、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。

40

【 図面の簡単な説明 】

【 0 0 2 8 】

【 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 】 強磁性体の磁区構造を示した模式図である。

【 図 4 】 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 5 】 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 6 】 本発明に係るジェットミル粉碎分級システムの概略構成を示した図である。

50

【図7】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8】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9】実施例と比較例の製造方法でそれぞれ粉碎した微粉碎磁石粉末の粒径を示した図である。

【図10】実施例の製造方法で粉碎した微粉碎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】

【0029】

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。

【0030】

[永久磁石の構成]

まず、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ピ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、永久磁石1を形成する各結晶粒子の界面(粒界)には、永久磁石1の保磁力を高める為のNb(ニオブ)、V(バナジウム)、Mo(モリブデン)、Zr(ジルコニウム)、Ta(タンタル)、Ti(チタン)又はW(タングステン)が偏在する。尚、各成分の含有量はNd : 25 ~ 37 wt%、Nb、V、Mo、Zr、Ta、Ti、Wのいずれか(以下、Nb等という) : 0.01 ~ 5 wt%、B : 1 ~ 2 wt%、Fe(電解鉄) : 60 ~ 75 wt%とする。また、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。

【0031】

具体的に、本発明に係る永久磁石1は、図2に示すように永久磁石1を構成するNd結晶粒子11の結晶粒の表面部分(外殻)において、Ndの一部を高融点金属であるNb等で置換した層12(以下、高融点金属層12という)を生成することにより、Nb等をNd結晶粒子11の粒界に対して偏在させる。図2は永久磁石1を構成するNd結晶粒子11を拡大して示した図である。尚、高融点金属層12は、非磁性となることが好ましい。

【0032】

ここで、本発明ではNb等の置換は、後述のように粉碎された磁石粉末を成形する前にNb等を含む有機金属化合物が添加されることにより行われる。具体的には、Nb等を含む有機金属化合物を添加した磁石粉末を焼結する際に、湿式分散によりNd結晶粒子11の粒子表面に均一付着された該有機金属化合物中のNb等が、Nd結晶粒子11の結晶成長領域へと拡散侵入して置換が行われ、図2に示す高融点金属層12を形成する。尚、Nd結晶粒子11は、例えばNd₂Fe₁₄B金属間化合物から構成され、高融点金属層12は例えばNbFeB金属間化合物から構成される。

【0033】

また、本発明では、特に後述のようにM - (OR)_x(式中、MはV、Mo、Zr、Ta、Ti、W又はNbであり、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Nb等を含む有機金属化合物(例えば、ニオブエトキシド、ニオブプロポキシド、バナジウムプロポキシドなど)を有機溶媒に添加し、湿式状態で磁石粉末に混合する。それにより、Nb等を含む有機金属化合物を有機溶媒中で分散させ、Nd結晶粒子11の粒子表面にNb等を含む有機金属化合物を均一付着することが可能となる。

【0034】

ここで、上記M - (OR)_x(式中、MはV、Mo、Zr、Ta、Ti、W又はNbであり、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

10

20

30

40

50

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、 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、高融点金属を用いる。更に、後述のように焼結時における磁石の主相との相互拡散防止する目的から、高融点金属の内でも特に V 、 Mo 、 Zr 、 Ta 、 Ti 、 W 又は Nb を用いることが好ましい。

【0035】

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。

10

【0036】

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、 Nb 等が Nd 結晶粒子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、 Nb 等を添加したとしても焼結後に粒界のみに Nb 等を偏在させることができる。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。

20

【0037】

更に、有機金属化合物を磁石粉末に添加すると、 Nb 等が有機金属化合物中に含まれる酸素と結びついた状態で存在する。ここで、 Nd と酸素との反応性が非常に高いため、酸素が存在すると、焼結工程において Nd と酸素が結合し Nd 酸化物を形成することとなる。その結果、磁気特性が低下する問題がある。また、 Nd が酸素と結合することによって化学量論組成($Nd_2Fe_{14}B$)に基づく含有量よりも Nd が不足し、焼結後の磁石の主相内に Fe が析出し、磁石特性を大きく低下させる問題もある。特に、磁石原料として Nd を量論組成に対して多めに含有させない場合には、その問題が大きくなる。しかしながら、酸素と結びついた状態で存在する Nb 等を金属 Nb 等への還元することや NbO 等への酸化数の低減を行うことによって、酸素を低減することが可能となる。その結果、焼結時に Nd が酸素と結び付くことを防止し、 Fe の析出を抑制することも可能となる。

30

【0038】

また、一般的に、焼結後の各 Nd 結晶粒子11が密な状態にあると、各 Nd 結晶粒子11間で交換相互作用が伝搬することが考えられる。その結果、外部から磁場が加わった場合に各結晶粒子の磁化反転が容易に生じ、仮に焼結後の結晶粒子をそれぞれ単磁区構造とすることができたとしても、保磁力は低下する。しかしながら、本発明では、 Nd 結晶粒子11の表面にコーティングされた非磁性の高融点金属層12によって、 Nd 結晶粒子11間での交換相互作用を分断され、外部から磁場が加わった場合でも各結晶粒子の磁化反転を妨げる。

40

【0039】

また、 Nd 結晶粒子11の表面にコーティングされた高融点金属層12は、永久磁石1の焼結時においては Nd 結晶粒子11の平均粒径が増加する所謂粒成長を抑制する手段としても機能する。以下に、高融点金属層12による永久磁石1の粒成長抑制の機構について図3を用いて説明する。図3は強磁性体の磁区構造を示した模式図である。

【0040】

一般的に、結晶と別の結晶との間に残された不連続な境界面である粒界は過剰なエネルギーをもつため、高温ではエネルギーを低下させようとする粒界移動が起こる。従って、高温(例えば $Nd-Fe-B$ 系磁石では $800 \sim 1150$) で磁石原料の焼結を行うと、

50

小さな磁石粒子は収縮して消失し、残った磁石粒子の平均粒径が増加する所謂粒成長が発生する。

【0041】

ここで、本発明では、 $M - (OR)_x$ (式中、MはV、Mo、Zr、Ta、Ti、W又はNbであり、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、図3に示すように磁石粒子の界面に高融点金属であるNb等が偏在化される。そして、この偏在化された高融点金属により、高温時に発生する粒界の移動が妨げられ、粒成長を抑制することができる。

【0042】

また、Nd結晶粒子11の粒径Dは $0.2\mu\text{m} \sim 1.2\mu\text{m}$ 、好ましくは $0.3\mu\text{m}$ 程度とすることが望ましい。また、高融点金属層12の厚さdが2nm程度あれば、焼結時の磁石粒子の粒成長を抑制でき、また、焼結後の結晶粒子間での交換相互作用を分断することができる。但し、高融点金属層12の厚さdが大きくなりすぎると、磁性を発現しない非磁性成分の含有率が大きくなるので、残留磁束密度が低下することとなる。

【0043】

そして、Nd結晶粒子11の粒径Dを $0.2\mu\text{m} \sim 1.2\mu\text{m}$ 、好ましくは $0.3\mu\text{m}$ 程度とすれば、その結晶粒を単磁区とすることが可能となる。その結果、永久磁石1の磁気性能を飛躍的に向上させることが可能となる。

【0044】

尚、高融点金属をNd結晶粒子11の粒界に対して偏在させる構成としては、図4に示すようにNd結晶粒子11の粒界に対して高融点金属からなる粒13を点在させる構成としても良い。図4に示す構成であっても、同様の効果(粒成長抑制、交換相互作用の分断)を得ることが可能となる。尚、高融点金属がNd結晶粒子11の粒界に対してどのように偏在しているかは、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。

【0045】

また、高融点金属層12はNb化合物、V化合物、Mo化合物、Zr化合物、Ta化合物、Ti化合物又はW化合物(以下、Nb等化合物という)のみから構成される層である必要はなく、Nb等化合物とNd化合物との混合体からなる層であっても良い。その場合には、Nd化合物を添加することによって、Nb等化合物とNd化合物との混合体からなる層を形成する。その結果、Nd磁石粉末の焼結時の液相焼結を助長することができる。尚、添加するNd化合物としては、 NdH_2 、酢酸ネオジウム水和物、ネオジウム(III)アセチルアセトナート三水和物、2-エチルヘキサノ酸ネオジウム(III)、ネオジウム(III)ヘキサフルオロアセチルアセトナート二水和物、ネオジウムイソプロポキシド、リン酸ネオジウム(III) n 水和物、ネオジウムトリフルオロアセチルアセトナート、トリフルオロメタンスルホン酸ネオジウム等が望ましい。

【0046】

[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1の製造方法における製造工程を示した説明図である。

【0047】

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 $200\mu\text{m}$ 程度の大きさに粗粉碎する。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、粗粉碎磁石粉末31を得る。

【0048】

次いで、粗粉碎磁石粉末31を、リターン方式を採用したジェットミル粉碎分級システム32により微粉碎し、単磁区粒子径(例えば $0.2\mu\text{m} \sim 1.2\mu\text{m}$)の微粉碎磁石粉

10

20

30

40

50

末 3 3 のみを分級して回収する。

【 0 0 4 9 】

以下に、図 6 を用いてジェットミル粉碎分級システム 3 2 について説明する。図 6 は本発明に係るジェットミル粉碎分級システム 3 2 の概略構成を示した図である。

図 6 に示すようにジェットミル粉碎分級システム 3 2 は、ジェットミル 3 4 と、サイクロン分級機 3 5 と、フィルタ 3 6 と、コンプレッサ 3 7 と、ヘリウムガス気流を循環させる配管 3 8 とから構成される。

【 0 0 5 0 】

ジェットミル 3 4 は、乾式の粉碎装置であって、配管 3 8 を介してサイクロン分級機 3 5、フィルタ 3 6、コンプレッサ 3 7 との間で閉回路を構成する。また、その閉回路では、0.4 MPa ~ 1.8 MPa、より好ましくは 1.5 MPa 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碎磁石粉末 3 1 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碎する。粉碎された粉碎物は、同じくヘリウムガス気流によりサイクロン分級機 3 5 へと搬送される。

10

【 0 0 5 1 】

サイクロン分級機 3 5 は、ジェットミル 3 4 で粉碎された粉碎物のうち、単磁区粒子径（例えば 0.2 μm ~ 1.2 μm）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碎物を微粉碎磁石粉末 3 3 としてフィルタ 3 6 により回収する。即ち、サイクロン分級機 3 5 及びフィルタ 3 6 により粉碎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 3 5 で回収されなかった粉碎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 3 4 へと搬送する補集装置を備える。従って、ジェットミル 3 4 による粉碎後に単磁区粒子径（例えば 0.2 μm ~ 1.2 μm）の粒径とならなかった粉碎物は、再度ジェットミル 3 4 により粉碎が行われることとなる（リターン方式）。

20

【 0 0 5 2 】

一方、コンプレッサ 3 7 は、フィルタ 3 6 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、0.4 MPa ~ 1.8 MPa、より好ましくは 1.5 MPa 程度の圧力でヘリウムガス気流を循環させる。

【 0 0 5 3 】

また、ジェットミル粉碎分級システム 3 2 は、閉回路内の酸素濃度を 1000 ppm 以下、より好ましくは 30 ppm 以下として稼働を行うのが好ましい。それによって、磁石原料を粉碎する際において、粉碎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。

30

【 0 0 5 4 】

そして、上記ジェットミル粉碎分級システム 3 2 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（例えば単磁区粒子径である 0.2 μm ~ 1.2 μm）の磁石粉末を高い歩留りで得ることが可能となる。そして、特に 0.2 μm ~ 1.2 μm、好ましくは 0.3 μm 程度の粒径の磁石粉末を用いて永久磁石 1 を製造すれば、結晶粒を単磁区とすることが可能となる。その結果、永久磁石 1 の磁気性能を飛躍的に向上させることが可能となる。

【 0 0 5 5 】

図 5 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。

磁石粉末の粉碎、分級を行う一方で、ジェットミル粉碎分級システム 3 2 で微粉碎された微粉碎磁石粉末 3 3 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 Nb 等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 V、Mo、Zr、Ta、Ti、W 又は Nb であり、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、ニオブエトキシド、ニオブプロポキシド、バナジウムプロポキシドなど）を用いる。また、溶解させる Nb 等を含む有機金属化合物の量は特に制限されないが、焼結後の磁石に対する Nb 等の含有量が 0.001 wt% ~ 10 wt%、好ましくは 0.01 wt% ~ 5 wt% となる量とするのが

40

50

好ましい。

【0056】

続いて、ジェットミル粉碎分級システム32にて分級された微粉碎磁石粉末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、磁石原料の微粉碎磁石粉末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。

【0057】

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。

【0058】

図5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。

【0059】

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。

【0060】

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。

【0061】

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、NdH₃やNdH₂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。

【0062】

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10⁻⁴Torr以下とすることが好まし

10

20

30

40

50

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。

【0063】

[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7を用いて説明する。図7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。

【0064】

尚、スラリー42を生成するまでの工程は、図5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。

【0065】

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5 L/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1000 ppm以下、より好ましくは500 ppm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。

【0066】

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を真空雰囲気中で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0.1 Torr以下とすることが好ましい。

【0067】

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、NdH₃やNdH₂が存在し、酸素と結び付きやすくなる問題がある。

図10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7 ppm及び酸素濃度66 ppmの雰囲気それぞれ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10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66 ppm雰囲気におかれると、約1000 sec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7 ppm雰囲気におかれても、約5000 sec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NdH₃(活性度大)やNdH₂(活性度中)を、NdH₃(活性度大) NdH₂(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。

【0068】

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5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。

【0069】

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。

【 0 0 7 0 】

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 7 1 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。

10

【実施例】

【 0 0 7 1 】

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碎分級システム 3 2 を用いて粗粉碎磁石粉末 3 1 を粉碎、分級した。ジェットミル粉碎分級システム 3 2 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 . 6 M P a とした。

【 0 0 7 2 】

(実施例 2)

ジェットミル粉碎分級システム 3 2 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 . 5 M P a とした。

20

【 0 0 7 3 】

(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碎分級システムを用いて粗粉碎磁石粉末 3 1 を粉碎、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 . 6 M P a とした。他の条件は実施例 1 と同様である。

【 0 0 7 4 】

(比較例 2)

ジェットミル粉碎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 . 6 M P a とした。他の条件は比較例 1 と同様である。

30

【 0 0 7 5 】

(比較例 3)

ジェットミル粉碎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 . 5 M P a とした。他の条件は比較例 1 と同様である。

【 0 0 7 6 】

(粉碎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 9 は、サイクロン分級機 3 5 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。

40

図 9 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 3 5 で回収されなかった粉碎物を補集して再度ジェットミル 3 4 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 . 4 M P a ~ 1 . 8 M P a、より好ましくは 1 . 5 M P a 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 . 4 M P a ~ 1 . 8 M P a とすることによって、同じく平均粒径を 0 . 5 7 μm と非常に

50

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 . 5 M P a とすることによって、平均粒径を 0 . 4 4 μ m 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 . 4 M P a ~ 1 . 8 M P a、より好ましくは 1 . 5 M P a とすることによって、微小な粒径範囲（例えば単磁区粒子径である 0 . 2 μ m ~ 1 . 2 μ m）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。

【 0 0 7 7 】

（実施例の永久磁石の製造方法における粉碎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 3 5 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 . 2 μ m ~ 0 . 8 μ m に分布が偏っている。従って、微小な粒径範囲（例えば単磁区粒子径である 0 . 2 μ m ~ 1 . 2 μ m）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。

【 0 0 7 8 】

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、粗粉碎された磁石粉末をジェットミル粉碎分級システム 3 2 へと搬送し、ヘリウム雰囲気下でジェットミル粉碎を行うとともに、ジェットミル 3 4 とサイクロン分級機 3 5 との間で磁石粒子を循環させて繰り返し粉碎を行い、単磁区粒子径（例えば 0 . 2 μ m ~ 1 . 2 μ m）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碎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、ジェットミル粉碎分級システム 3 2 における閉回路の酸素濃度が 3 0 p p m 以下とするので、磁石原料を粉碎する際において、粉碎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、ジェットミル粉碎分級システム 3 2 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 . 4 M P a ~ 1 . 8 M P a 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、ジェットミル粉碎分級システム 3 2 では、特に 0 . 2 μ m ~ 1 . 2 μ m の粒径のものを分級して回収することとすれば、単磁区粒子径の磁石粉末を、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、粉碎されたネオジウム磁石の微粉末に対して、M - (O R)_x（式中、M は V、M o、Z r、T a、T i、W 又は N b であり、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、ネオジウム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る。それにより、N b 等の添加する量を少量としたとしても、添加された N b 等を磁石の粒界に効率よく偏在させることができる。その結果、焼結時の磁石粒子の粒成長を抑制することができるとともに、焼結後の結晶粒子間での交換相互作用を分断することによって各結晶粒子の磁化反転を妨げ、磁気性能を向上させることが可能となる。また、他の有機金属化合物を添加する場合と比較して脱カーボンを容易に行うことが可能であり、焼結後の磁石内に含まれる炭素によって保磁力が低下する虞が無く、また、磁石全体を緻密に焼結することが可能となる。

更に、高融点金属である N b 等が焼結後に磁石の粒界に偏在するので、粒界に偏在された N b 等が焼結時の磁石粒子の粒成長を抑制するとともに、焼結後の結晶粒子間での交換相互作用を分断することによって各結晶粒子の磁化反転を妨げ、磁気性能を向上させることが可能となる。また、N b 等の添加量が従来に比べて少ないので、残留磁束密度の低下を抑制することができる。

10

20

30

40

50

【 0 0 7 9 】

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、磁石粉末の粉碎条件、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。

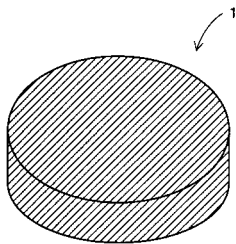
また、水素中仮焼処理や脱水素工程については省略しても良い。

【符号の説明】

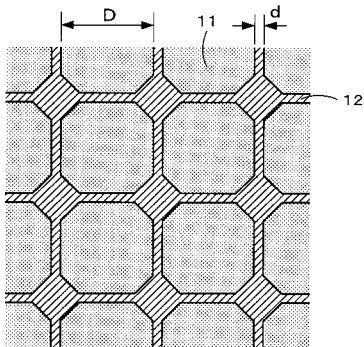
【 0 0 8 0 】

- 1 永久磁石
- 1 1 Nd 結晶粒子
- 1 2 高融点金属層
- 3 2 ジェットミル粉碎分級システム
- 3 4 ジェットミル
- 3 5 サイクロン分級機

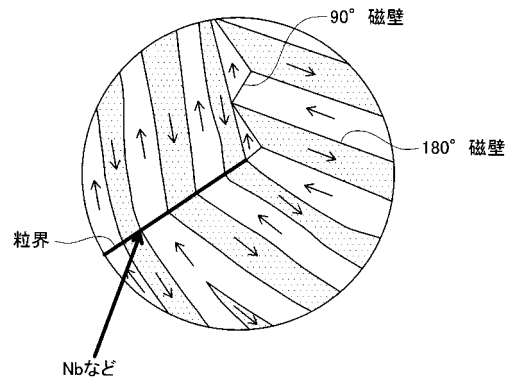
【 図 1 】



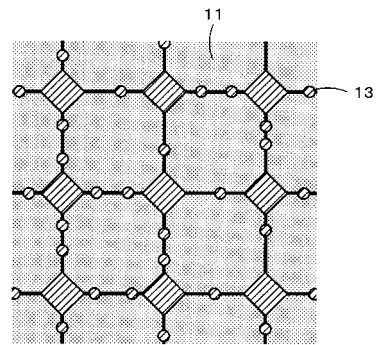
【 図 2 】



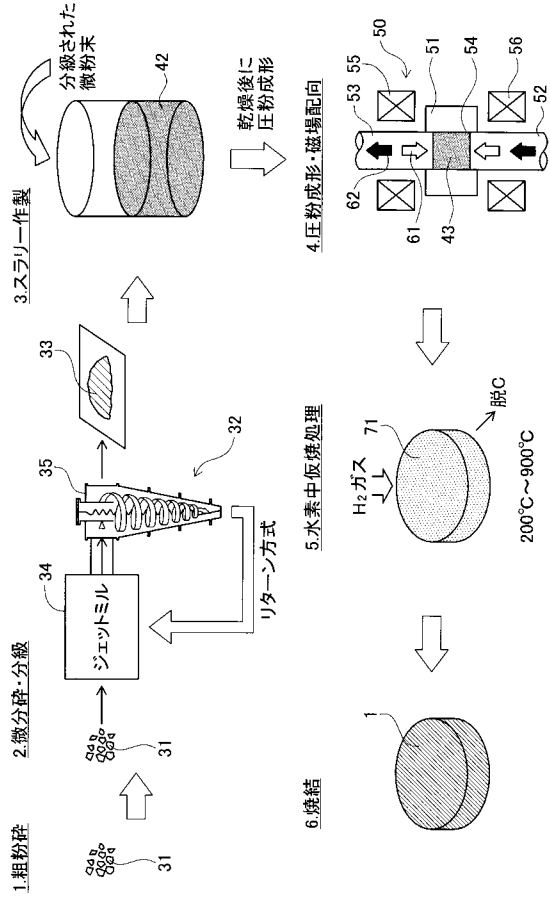
【 図 3 】



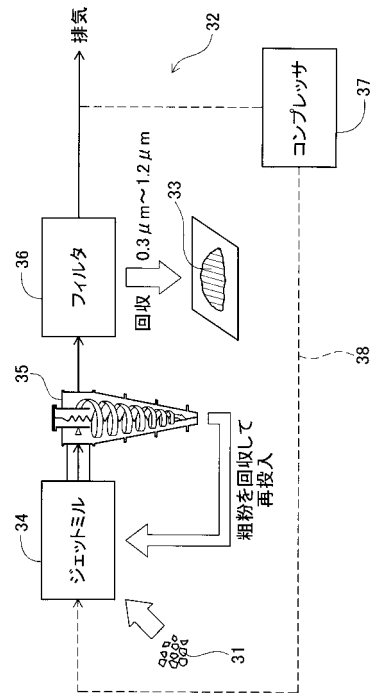
【 図 4 】



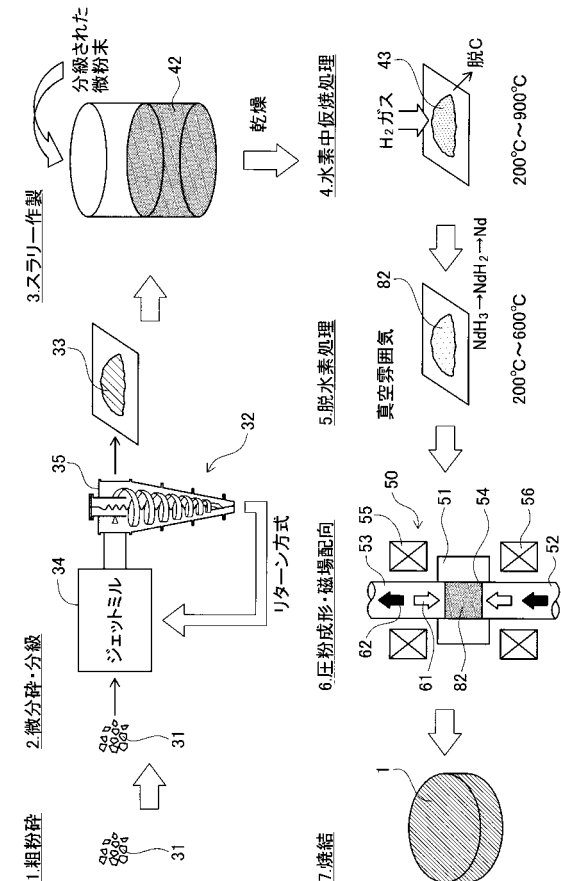
【図5】



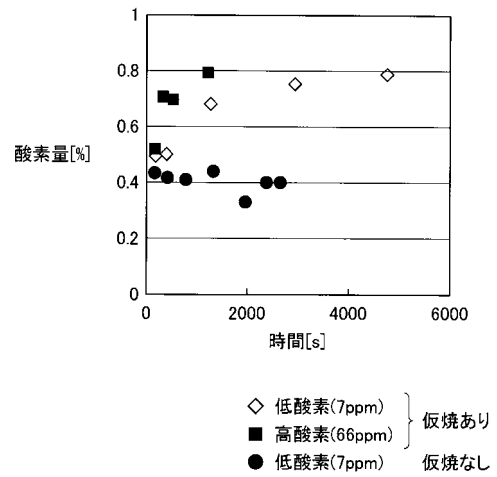
【図6】



【図7】



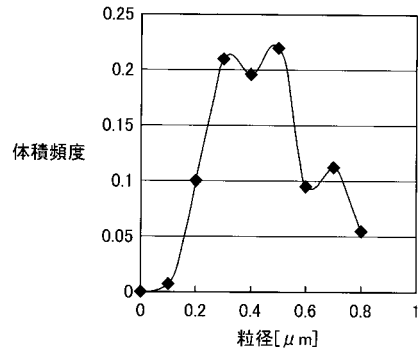
【図8】



【図9】

	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 10】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I		
B 2 2 F	3/00	(2006.01)	B 2 2 F	3/00 F
C 2 2 C	38/00	(2006.01)	C 2 2 C	38/00 3 0 3 D
C 2 2 C	33/02	(2006.01)	C 2 2 C	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)
国際公開第2009/128459(WO,A1)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

B 2 2 F	1 / 0 0 - 8 / 0 0
C 2 2 C	1 / 0 4 - 1 / 0 5
	5 / 0 0 - 2 5 / 0 0
	2 7 / 0 0 - 2 8 / 0 0
	3 0 / 0 0 - 3 0 / 0 6
	3 3 / 0 2
	3 5 / 0 0 - 4 5 / 1 0
H 0 1 F	1 / 0 0 - 1 / 1 1
	1 / 4 0
	4 1 / 0 0 - 4 1 / 0 4
	4 1 / 0 8 - 4 1 / 1 0