(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7529593号
(P7529593)

(45)発行日　令和6年8月6日(2024.8.6)

(24)登録日　令和6年7月29日(2024.7.29)

(51)国際特許分類		FI		
H01F 1/10 (2006.01)		H01F	1/10	
H01F 41/02 (2006.01)		H01F	41/02	G
C01G 49/00 (2006.01)		C01G	49/00	E
C01G 51/00 (2006.01)		C01G	51/00	B
C04B 35/40 (2006.01)		C04B	35/40	

請求項の数　2　（全15頁）

(21)出願番号　特願2021-36103(P2021-36103)
(22)出願日　令和3年3月8日(2021.3.8)
(65)公開番号　特開2022-136475(P2022-136475A)
(43)公開日　令和4年9月21日(2022.9.21)
審査請求日　令和5年10月10日(2023.10.10)

(73)特許権者　000003067
ＴＤＫ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　大槻 史朗
東京都中央区日本橋二丁目５番１号 ＴＤＫ株式会社内
審査官　五貫 昭一

最終頁に続く

(54)【発明の名称】　フェライト焼結磁石、及び、フェライト磁石の製造方法

(57)【特許請求の範囲】

【請求項１】

マグネトプランバイト型フェライト結晶粒と、前記フェライト結晶粒間に介在する粒界相と、を備えるフェライト焼結磁石であって、

前記フェライト結晶粒及び前記粒界相は、それぞれ、金属元素Ａ、Ｌａ、Ｃｏ、及び、Ｆｅを含有し、

金属元素Ａは、Ｓｒ、Ｂａ、および、Ｃａからなる群から選択される少なくとも１種の元素であり、

前記フェライト結晶粒におけるＬａに対するＣｏの原子比をR_{FG}、

前記粒界相におけるＬａに対するＣｏの原子比をR_{GB}とした時に、

下式を満たす、フェライト焼結磁石。

$0.5 \leqq R_{GB} / R_{FG} \leqq 0.9$

【請求項２】

前記フェライト結晶粒の全金属原子中におけるＣｏの原子割合を$C_{Co,FG}$とし、前記粒界相の全金属原子中におけるＣｏの原子割合を$C_{Co,GB}$としたときに、下式を満たす、請求項１に記載のフェライト焼結磁石。

$C_{Co,GB} / C_{Co,FG} < 1$

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【０００１】

本開示は、フェライト焼結磁石、及び、そ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（例えば特許文献１～３参照）。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、主にマグネトプランバイト型（Ｍ型）のフェライトが採用されている。Ｍ型フェライトは、通常$AFe_{12}O_{19}$の一般式で表される。
【先行技術文献】
【特許文献】
【０００３】
【文献】特開２０００－１５６３１０号公報
【文献】特開２００１－５７３０５号公報
【文献】特開２００２－１１８０１２号公報
【発明の概要】
【発明が解決しようとする課題】
【０００４】
フェライト焼結磁石の製造工程において、焼結後に、所望の形態にするためにフェライト焼結磁石に対して切削加工が行われることが多い。
しかしながら、従来のフェライト焼結磁石は切削速度をあまり高くすることができず、生産性を向上しにくかった。
【０００５】
本発明は、上記課題に鑑みてなされたものであり、切削速度を高くすることのできるフェライト焼結磁石及びそ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】
【０００６】
本発明の一側面に係るフェライト焼結磁石は、マグネトプランバイト型フェライト結晶粒と、前記フェライト結晶粒間に介在する粒界相と、を備える。
前記フェライト結晶粒及び前記粒界相は、それぞれ、金属元素Ａ、Ｌａ、Ｃｏ、及び、Ｆｅを含有し、金属元素Ａは、Ｓｒ、Ｂａ、および、Ｃａからなる群から選択される少なくとも１種の元素である。上記フェライト焼結磁石は、前記フェライト結晶粒におけるＬａに対するＣｏの原子比をR_{FG}、前記粒界相におけるＬａに対するＣｏの原子比をR_{GB}とした時に、下式を満たす。
$0.5 \leqq R_{GB} / R_{FG} \leqq 0.9$
【０００７】
上記フェライト焼結磁石は、前記フェライト結晶粒の全金属原子中におけるＣｏの原子割合を$C_{Co,FG}$とし、前記粒界相の全金属原子中におけるＣｏの原子割合を$C_{Co,GB}$としたときに、下式を満たすことができる。
$C_{Co,GB} / C_{Co,FG} < 1$
【０００８】
本発明の一側面にかかるフェライト焼結磁石の製造方法は、原料粉体を仮焼きしてマグネトプランバイト型フェライト結晶粒を含有する仮焼体を得る工程と、
前記仮焼体を粉砕してフェライト粉体を得る工程と、
前記フェライト粉体と追加粉体とを含む混合粉体を得る工程と、
前記混合粉体を成形して成形体を得る工程と、
前記成形体を焼成する工程と、を備える。
前記原料粉体は、金属元素Ａ、Ｌａ、Ｃｏ、及び、Ｆｅを含有し、前記追加粉体は、Ｌａ、及び、Ｃｏを含有し、Ｆｅを含有せず、金属元素Ａは、Ｓｒ，Ｂａ，およびＣａからなる群から選択される少なくとも１種の元素であり、前記追加粉体のＬａに対するＣｏの

原子比率は、前記原料粉体におけるＬａに対するＣｏの原子比率に対して４０～８０％である。

【０００９】

上記方法において、前記追加粉体は更に金属元素Ａを含むことができ、前記追加粉体のＬａに対する金属元素Ａの原子比率は、前記原料粉体におけるＬａに対する金属元素Ａの原子比率に対して８０～１２０％であることができる。

【発明の効果】

【００１０】

本発明によれば、切削速度を高くすることのできるフェライト焼結磁石及びその製造方法が提供される。

【図面の簡単な説明】

【００１１】

【図１】図１は、フェライト焼結磁石の断面模式図である。

【発明を実施するための形態】

【００１２】

本発明の幾つかの実施形態を以下に詳細に説明する。

【００１３】

１実施形態に係るフェライト焼結磁石は、Ｍ型マグネトプランバイト型フェライト結晶粒と、フェライト結晶粒間に介在する粒界相と、を備えるフェライト焼結磁石である。

【００１４】

（焼結磁石）

図１は、本発明の一実施形態に係るフェライト焼結磁石１００の断面模式図である。本実施形態に係るフェライト焼結磁石１００は、図１に示すように、マグネトプランバイト型（Ｍ型）フェライト結晶粒４と、フェライト結晶粒４間に存在する粒界相６とを有する。

【００１５】

（フェライト結晶粒）

フェライト結晶粒４は、金属元素Ａ、Ｌａ、Ｃｏ、Ｆｅ、及び酸素原子を少なくとも含む。

【００１６】

金属元素Ａは、Ｓｒ、Ｂａ、及び、Ｃａからなる群から選択される少なくとも１種の元素である。

【００１７】

金属元素Ａ中の各原子の原子比率に限定はなく、１種のみを含んでいてもよく、２種以上を含んでいてもよい。フェライト結晶粒は、全金属原子中でＣａを１．２～３．２原子％含むことができる。

【００１８】

フェライト結晶粒４は、全金属原子中でＬａを４．０～６．５原子％含むことができる。

【００１９】

フェライト結晶粒４は、Ｌａ以外に、Ｙを含む希土類元素及びＢｉからなる群から選択される少なくとも１種の金属元素Ｒを含有してもよい。

【００２０】

Ｌａ以外の希土類元素の例は、Ｙ、Ｓｃ、Ｃｅ、Ｐｒ、Ｎｄ、Ｐｍ、Ｓｍ、Ｅｕ、Ｇｄ、Ｔｂ、Ｄｙ、Ｈｏ、Ｅｒ、Ｔｍ、Ｙｂ、及びＬｕである。

【００２１】

磁気特性を高める観点から、フェライト結晶粒４の全金属原子中でＣｏの原子濃度$C_{Co,FG}$は２．０～３．７ａｔ％とすることが好適である。

【００２２】

フェライト結晶粒４は、Ｃｏ以外に、Ｍｎ、Ｍｇ，Ｎｉ，Ｃｕ，及び、Ｚｎからなる群から選択される少なくとも１種の金属元素Ｍを含んでいてもよい。

【００２３】

フェライト結晶粒４の全金属原子に対して、金属元素Ａの割合は１～１３ａｔ％、Ｌａ及び金属元素Ｒの総割合は０．０５～１０ａｔ％、Ｆｅの割合は８０～９５ａｔ％、Ｃｏ及び金属元素Ｍの総割合は０．１～５ａｔ％とすることができる。

【００２４】

フェライト結晶粒４におけるＬａに対するＣｏの原子比$Ｒ_{ＦＧ}$は０．３～１．０であることができる。

【００２５】

フェライト結晶粒４は、六方晶系に属するマグネトプランバイト型の結晶構造を有する。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は、以下の式（ＩＩＩ）で表すことができる。

$$ＱＸ_{12}Ｏ_{19} \qquad （ＩＩＩ）$$

ここで、Q(Ａサイト)には、金属元素Ａ、及び、一部のＬａ及び金属元素Ｒが入る。

Ｘ（Ｂサイト）には、Ｆｅ、金属元素Ｍ、及び、残部のＬａ及び金属元素Ｒが入る。

なお、上式（ＩＩＩ）におけるＱ（Ａサイト）及びＸ（Ｂサイト）のＯに対する原子比率比率は、実際には上記範囲から多少偏った値を示すことから、上記の数値から若干例えば１０％程度ずれていてもよい。

【００２６】

フェライト焼結磁石は、磁気特性を十分に高くする観点から、主相として上記フェライト結晶粒４を有することが好ましい。なお、本明細書において「主相として」とは、フェライト焼結磁石中で最も質量割合が多い結晶相であることをいう。フェライト焼結磁石は、フェライト結晶粒（主相）４とは異なる結晶粒（異相）を有していてもよい。フェライト結晶粒（主相）４の割合は７０質量％以上であってよく、８０質量％以上であってよく、９０質量％以上であってよく、９５質量％以上であってよい。

【００２７】

フェライト焼結磁石におけるフェライト結晶粒の平均粒径は、例えば５μｍ以下であってもよく、４．０μｍ以下であってもよく、０．５～３．０μｍであってもよい。このような平均粒径を有することで、保磁力を高くすることができる。フェライト結晶粒の平均粒径は、ＴＥＭ又はＳＥＭによる断面の観察画像を用いて求めることができる。具体的には、数百個のフェライト結晶粒を含むＳＥＭ又はＴＥＭの断面における各結晶粒の断面積を画像解析により求めたうえで、該断面積を有する円の直径（円相当径）を、その断面における該結晶粒の粒径と定義して粒径分布を測定する。測定した個数基準の粒径分布から、フェライト結晶粒の粒径の個数基準の平均値を算出する。このようにして測定される平均値を、フェライト結晶粒の平均粒径とする。

【００２８】

（粒界相）

粒界相６は、酸化物を主成分として含む。具体的には、酸化物は、金属元素Ａ、Ｌａ、Ｃｏ、及び、Ｆｅを含有する。粒界相６における酸化物の質量割合は９０％以上であることができ、９５％以上であることもでき、９７％以上であることもできる。

【００２９】

粒界相６の全金属元素中の金属元素Ａの原子比率に限定はなく、フェライト結晶粒と同一である必要は無い。粒界相６における全金属原子中の金属元素Ａの原子比率が、フェライト結晶粒４における全金属原子中の金属元素Ａの原子比率よりも多くてよい。粒界相６は、全金属原子中で、Ｃａを２原子％以上含むことができる。

【００３０】

粒界相６は、全金属原子中でＬａを０．１～１５原子％含むことができる。

粒界相６の全金属原子中のＬａの原子比は、フェライト結晶粒４の全金属原子中のＬａの原子比率より多くてもよい。。粒界相６は、Ｌａ以外に、Ｙを含む希土類元素及びＢｉからなる群から選択される少なくとも１種の金属元素Ｒを含有してもよい。

【００３１】

粒界相６の全金属原子中のＣｏの原子比率は、フェライト結晶粒の全金属原子中のＣｏ

の原子比率よりも小さいことができる。粒界相６の全金属原子中のＣｏの原子濃度$C_{Co,GB}$は０．０５～３．５ａｔ％とすることができる。

【００３２】

フェライト結晶粒４は、Ｃｏ以外に、Ｍｎ、Ｍｇ，Ｎｉ，Ｃｕ，及び、Ｚｎからなる群から選択される少なくとも１種の金属元素Ｍを含んでいてもよい。

【００３３】

粒界相６の全金属元素の原子数に対して、金属元素Ａの割合は１～１４ａｔ％、Ｌａ及び金属元素Ｒの割合は１～１１ａｔ％、Ｆｅの割合は７８～９５ａｔ％、Ｃｏ及び金属元素Ｍの割合は０．０５～４．５ａｔ％とすることができる。

【００３４】

粒界相６におけるＬａに対するＣｏの原子比R_{GB}は０．１～０．８であることができる。

【００３５】

フェライト結晶粒４におけるＬａに対するＣｏの原子比をR_{FG}、粒界相６におけるＬａに対するＣｏの原子比をR_{GB}とした時に、本実施形態の焼結磁石は下式を満たす。

$$0.5 \leqq R_{GB} / R_{FG} \leqq 0.9$$

【００３６】

フェライト結晶粒の全金属原子におけるＣｏの原子割合を$C_{Co,FG}$とし、粒界相における全金属原子におけるＣｏの原子割合を$C_{Co,GB}$としたときに、本実施形態の焼結磁石は下式を満たすことができる。この比が多いと、異相ができやすい傾向がある。

$$C_{Co,GB} / C_{Co,FG} < 1$$

【００３７】

本実施形態の焼結磁石は、更に下式を満たすことが好ましい。この比が少ないと加工性が低下することがある。

$$0.5 \leqq C_{Co,GB} / C_{Co,FG} \leqq 0.8$$

【００３８】

フェライト焼結磁石の断面において、フェライト結晶粒４及び粒界相６の合計に占める粒界相６の面積比率は０．０１～５％とすることができる。

【００３９】

フェライト焼結磁石の形状に特に限定はなく、たとえば、端面が円弧状となるように湾曲したアークセグメント（Ｃ型）形状、平板形状等、種々の形状をとることができる。

【００４０】

本発明の実施形態に係るフェライト焼結磁石のフェライト結晶粒及び／又は粒界相は、上記の元素以外に、Ｓｉ及びＢなどの半金属原子、及び、Ｇａ，Ｓｎ，Ｉｎ、Ｔｉ，Ｃｒ，Ｍｏ，Ｖ，Ｃｕ，Ｇｅ，Ｚｒ，Ａｌ，等の金属原子を含んでもよい。これらの半金属原子の含有量は、酸化物換算の総量で１．５質量％以下とすることが好適であり、他の金属原子の含有量は酸化物換算の総量で６．０質量％以下とすることが好適である。

【００４１】

フェライト結晶粒及び粒界相における金属元素の含有比率はＳＴＥＭ－ＥＤＸで測定することができ、焼結磁石全体の金属元素の含有比率は蛍光Ｘ線分析、誘導結合プラズマ発光分光分析（ＩＣＰ発光分光分析）等で測定することができる。

【００４２】

磁石全体の組成の例は、全金属元素量に対し、Ａが１～１３原子％、Ｌａが０．０５～１０原子％、Ｌａ及び金属元素Ｒの合計が０．０５～１１原子％、Ｆｅが８０～９５原子％、Ｃｏが０．１～５原子％、Ｃｏ及び金属元素Ｍの合計が０．１～６原子％である。

【００４３】

（作用）

本実施形態にかかるフェライト焼結磁石によれば、フェライト焼結磁石の切削速度を高くすることができる。この理由は明らかでは無いが、粒界相のＣｏ／Ｌａ原子比が、フェライト結晶粒のＣｏ／Ｌａ原子比よりも所定の範囲で小さいので、粒界相におけるチャー

ジバランスの崩れに由来する欠陥が多くなることが考えられる。

【００４４】

本実施形態に係るフェライト焼結磁石は、モータ及び発電機などの回転電気機械、スピーカ・ヘッドホン用マグネット、マグネトロン管、ＭＲＩ用磁場発生装置、ＣＤ－ＲＯＭ用クランパ、ディストリビュータ用センサ、ＡＢＳ用センサ、燃料・オイルレベルセンサ、マグネトラッチ、又はアイソレータ等の磁場発生部材として用いることができる。また、磁気記録媒体の磁性層を蒸着法又はスパッタ法等で形成する際のターゲット（ペレット）として用いることもできる。

【００４５】

（フェライト焼結磁石の製造方法）

次に、フェライト焼結磁石の製造方法の一例を説明する。以下に説明する製造方法は、配合工程、仮焼工程、粉砕工程、追加粉体混合工程、成形工程及び焼成工程を含む。各工程の詳細を以下に説明する。

【００４６】

（配合工程）

配合工程は、仮焼用の原料粉体を調製する工程である。仮焼用の原料粉体は、フェライトの構成元素を含む。すなわち、金属元素Ａ、Ｌａを含む金属元素Ｒ，Ｃｏを含む金属元素Ｍ，及び、Ｆｅを含む。配合工程では、各元素を含む粉末の混合物を、アトライタ、又はボールミル等で１～２０時間程度混合するとともに粉砕処理を行って原料粉体を得ることが好適である。

【００４７】

各元素を含む粉末の例は、各元素の単体、酸化物、水酸化物、炭酸塩、硝酸塩、ケイ酸塩、有機金属化合物である。一つの粉末が、２以上の金属元素を含んでいてもよいし、一つの粉末が実質的に一つの金属元素のみを含有してもよい。

【００４８】

Ｃａを含む粉末の例は、$CaCO_3$である。Ｓｒを含む粉末の例は、$SrCO_3$である。Ｂａを含む粉末の例は、$BaCO_3$である。Ｌａを含む粉末の例は、La_2O_3、$La(OH)_3$である。Ｆｅを含む粉末の例は、Fe_2O_3である。Ｃｏを含む粉末の例は、Co_3O_4である。

【００４９】

原料粉体における各金属元素の比率は、上記のフェライト結晶粒の組成に準じて適宜設定できる。

【００５０】

原料粉末の平均粒径は特に限定されず、例えば０．１～２．０μｍである。

【００５１】

配合工程の後、必要に応じて、原料組成物を乾燥させ、篩により粗粒を除去することが好適である。

【００５２】

（仮焼工程）

仮焼工程では、配合工程で得られた原料粉体を仮焼して仮焼体を得る。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、例えば１１００～１４００℃であってもよく、１１００～１３５０℃であってもよい。仮焼の時間は、例えば１分間～１０時間であってもよく、１分間～３時間であってもよい。仮焼により得られる、フェライト結晶粒を含む仮焼体におけるフェライト相（Ｍ相）の比率は、例えば７０質量％以上であってもよく、７５質量％以上であってもよい。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にして求めることができる。

【００５３】

（粉砕工程）

粉砕工程では、仮焼工程により顆粒状や塊状となった仮焼体を粉砕してフェライト粉体を得る。粉砕工程は、例えば、仮焼粉を粗い粉末となるように粉砕（粗粉砕工程）した後

、これを更に微細に粉砕する（微粉砕工程）、２段階の工程に分けて行ってもよい。
【００５４】
粗粉砕は、例えば、振動ミル等を用いて、仮焼体の平均粒径が０．１～５．０μｍとなるまで行うことができる。
【００５５】
微粉砕では、粗粉砕で得られた粗粉を、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砕する。微粉砕では、得られる粒子の平均粒径が、例えば０．０８～２．０μｍ程度となるように粉砕を行うことができる。微粉の比表面積（例えばＢＥＴ法により求められる。）は、例えば７～１２m^2／ｇ程度とする。好適な粉砕時間は、粉砕方法によって異なり、例えば湿式アトライタの場合、３０分間～１０時間であり、ボールミルによる湿式粉砕では１０～５０時間である。得られる粉体の比表面積は、市販のＢＥＴ比表面積測定装置（Ｍｏｕｎｔｅｃｈ製、商品名：ＨＭ　Ｍｏｄｅｌ－１２１０）を用いて測定することができる。
【００５６】
微粉砕工程では、焼成後に得られる焼結体の磁気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を添加してもよい。一般式におけるｎは、例えば４～１００であってもよく、４～３０であってもよい。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、他の公知の分散剤を併用してもよい。
【００５７】
多価アルコールを添加する場合、その添加量は、添加対象物（例えば粗粉）に対して、例えば０．０５～５．０質量％であってもよく、０．１～３．０質量％であってもよい。なお、微粉砕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して除去される。
【００５８】
（追加粉体混合工程）
続いて、フェライト粉体と、追加粉体と、を混合して混合粉体を得る。
追加粉体は、粉砕工程で得られた粉砕後のフェライト粉体に混合してもよいが、粉砕工程中の粉体に追加粉体を添加して、仮焼体の粉砕と同時にフェライト粉体と追加粉体との混合を行うことが好適である。
【００５９】
追加粉体は、少なくともＣｏ及びＬａを含み、Ｆｅを含まない。追加粉体のＬａに対するＣｏの原子比は、原料粉体におけるＬａに対するＣｏの原子比に対して４０～８０％とし、追加粉体におけるＣｏ／Ｌａ比が原料粉体よりも小さくなるようにする。
【００６０】
追加粉体は、さらに、金属元素Ａを含むことが好適である。金属元素Ａの種類は、原料粉体と同一でもよく、異なっていてもよい。
【００６１】
追加粉体のＬａに対する金属元素Ａの原子比率は、前記原料粉体におけるＬａに対する金属元素Ａの原子比率に対して８０～１２０％、すなわち、同程度とすることが好適である。
【００６２】
追加粉体は、Ｌａ以外に、Ｙを含む希土類元素及びＢｉからなる群から選択される少なくとも１種の金属元素Ｒを含有してもよい。
【００６３】
追加粉体は、Ｃｏ以外に、Ｍｎ、Ｍｇ，Ｎｉ，Ｃｕ，及び、Ｚｎからなる群から選択される少なくとも１種の金属元素Ｍを含んでいてもよい。
【００６４】
追加粉体はＦｅを含まない。Ｆｅを含まないとは、全金属原子に対してＦｅが１００原子ｐｐｍ以下であることを言う。

【００６５】
追加粉体の組成の例は、全金属元素量に対し、Ａが１０～２０原子％、Ｌａが２５～７０原子％、Ｌａ及び金属元素Ｒの合計が３０～７５原子％、Ｃｏが１５～４２原子％、Ｃｏ及び金属元素Ｍの合計が１５～４５原子％である。
【００６６】
追加粉体の量は、フェライト粉体の質量に対して、０．１～７質量％とすることが好適である。追加粉体における金属元素Ｌａの質量は、原料粉体におけるＬａの質量の０．０５～５％であることができ、金属元素Ｒの質量は原料粉体における金属元素Ｒの質量の０．０５～６％であることができる。
【００６７】
仮焼体の粉砕を２段階で行う場合、粗粉砕工程の前又は後のいずれにおいて追加粉体を添加しても良く、追加粉体を２つに分けて粗粉砕の前及び後にそれぞれ添加してもよい。
【００６８】
（成形工程）
成形工程では、追加粉体混合工程（例えば粉砕工程）で得られた混合粉体を、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。磁気的配向度を高くする観点からは、湿式成形で行うことが好ましい。
【００６９】
湿式成形により成形する場合は、例えば上述した微粉砕工程を湿式で行うことでスラリーを得た後、このスラリーを所定の濃度に濃縮して、湿式成形用スラリーを得る。この湿式成形用スラリーを用いて成形を行うことができる。スラリーの濃縮は、遠心分離又は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の含有量は、例えば３０～８０質量％である。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例えば水が挙げられる。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添加してもよい。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添加してもよい。なお、湿式成形用スラリーは、微粉砕後の乾燥状態のフェライト粒子に、分散媒等を添加することによって調製してもよい。
【００７０】
湿式成形では、次いで、この湿式成形用スラリーに対し、磁場中成形を行う。その場合、成形圧力は、例えば９．８～１９６ＭＰａ（０．１～２．０ｔｏｎ／ｃｍ2）である。印加する磁場は、例えば３９８～１１９４ｋＡ／ｍ（５～１５ｋＯｅ）である。
【００７１】
（焼成工程）
焼成（本焼成）工程では、成形工程で得られた成形体を焼成してフェライト焼結磁石を得る。成形体の焼成は、大気中等の酸化性雰囲気中で行うことができる。焼成温度は、例えば１０５０～１３００℃であってもよく、１０８０～１２９０℃であってもよい。また、焼成時間（焼成温度に保持する時間）は、例えば０．５～３時間である。
【００７２】
焼成工程では、焼結温度まで到達させる前に、例えば室温から１００℃程度まで、０．５℃／分程度の昇温速度で加熱してもよい。これによって、焼結が進行する前に成形体を十分に乾燥することができる。また、成形工程で添加した界面活性剤を十分に除去することができる。なお、これらの処理は、焼成工程のはじめに行ってもよく、焼成工程よりも前に別途行っておいてもよい。
【００７３】
このようにして上記のフェライト焼結磁石を製造することができる。
【００７４】
また例えば、成形工程及び焼成工程は、以下の手順で行ってもよい。すなわち、成形工程は、ＣＩＭ（Ｃｅｒａｍｉｃ ＩｎｊｅｃｔｉｏｎＭｏｌｄｉｎｇ（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、乾燥させた混合粉体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が得られる。次いで焼成工程において、脱バインダ処理した成形体を、例えば、大気中で好ましくは１１００～１３００℃、より好ましくは１１６０～１２９０℃の温度で０．２～３時間程度焼結して、フェライト焼結磁石を得ることができる。

【実施例】

【００７５】

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。

【００７６】

（比較例１）

原材料として、炭酸バリウム（$BaCO_3$）、炭酸カルシウム（$CaCO_3$）、炭酸ストロンチウム（$SrCO_3$）、水酸化ランタン（$La(OH)_3$）、酸化鉄（Fe_2O_3）、酸化コバルト（Co_3O_4）の粉末を準備した。

【００７７】

これらの原材料粉末を、金属原子比が、表１のとおりの金属組成となるように配合した。湿式アトライタ及びボールミルを用いて混合及び粉砕を行ってスラリーを得た（配合工程）。このスラリーを乾燥し、粗粒を除去した後、大気中、１３１０℃で仮焼を行って仮焼粉を得た（仮焼工程）。

【００７８】

【表１】

表1	原料粉体の金属組成(原子比)							
	A			R	Fe	M	金属合計	Co/La
	Ca	Ba	Sr	La		Co		
実施例1～9 比較例1～3	0.2	0.05	0	0.75	10.95	0.35	12.3	0.47
実施例10	0	0.25	0	0.75	10.95	0.35	12.3	0.47
実施例11	0	0	0.25	0.75	10.95	0.35	12.3	0.47
実施例12	0.25	0	0	0.75	10.95	0.35	12.3	0.47

【００７９】

得られた仮焼粉を、小型ロッド振動ミルで粗粉砕して粗粉を得た。（粗粉砕工程）

【００８０】

表２の通りの金属組成となるように原料粉を配合して追加粉体を得た。上記の粗粉に対して、追加粉体を粗粉の質量に対して、１．０％となるように添加したのち、混合粉体を湿式ボールミルを用いて微粉砕し、フェライト粒子を含むスラリーを得た（粉砕及び追加粉体混合工程）。

【００８１】

【表２】

表2	追加粉体の金属組成(原子比)										後添加量(wt%)
	A			R	Fe	M	金属合計	Co/La	原料粉体のCo/La比に対する追加粉体のCo/La比の割合(%)	
	Ca	Ba	Sr	La		Co				
比較例1	0.2	0.05	0	0.75	0	0.35	1.35	0.47	100.0	1.0
実施例1	0.2	0.05	0	0.75	0	0.14	1.14	0.19	40.0	1.0
実施例2	0.2	0.05	0	0.75	0	0.21	1.21	0.28	60.0	1.0
実施例3	0.2	0.05	0	0.75	0	0.28	1.28	0.37	80.0	1.0
実施例4	0	0	0	0.75	0	0.21	0.96	0.28	60.0	1.0
比較例2	0.2	0.05	0	0.75	0	0.07	1.07	0.093	20.0	1.0
比較例3	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0
実施例5	0.2	0.05	0	0.75	0	0.21	1.21	0.28	60.0	0.1
実施例6	0.2	0.05	0	0.75	0	0.21	1.21	0.28	60.0	0.5
実施例7	0.2	0.05	0	0.75	0	0.21	1.21	0.28	60.0	2.0
実施例8	0.2	0.05	0	0.75	0	0.21	1.21	0.28	60.0	5.0
実施例9	0.2	0.05	0	0.75	0	0.21	1.21	0.28	60.0	7.0
実施例10	0	0.25	0	0.75	0	0.21	1.21	0.28	60.0	1.0
実施例11	0	0	0.25	0.75	0	0.21	1.21	0.28	60.0	1.0
実施例12	0.25	0	0	0.75	0	0.21	1.21	0.28	60.0	1.0

【００８２】

微粉砕後に得られたスラリーの水分量を調節して湿式成形用スラリーを得た。この湿式成形用スラリーを、湿式磁場成型機を使用して、７９６ｋＡ／ｍ（１０ｋＯｅ）の印加磁場中で成形し、直径３０ｍｍ×厚み１５ｍｍの円柱状を有する成形体を得た（成形工程）。

【００８３】

得られた成形体を、大気中、室温にて乾燥し、次いで大気中、１２８０℃で焼成を行った（焼成（本焼成）工程）。

このようにして円柱状のフェライト焼結磁石を得た。

【００８４】

（実施例１～４、比較例２）
追加粉体における金属組成を表２のように変更する、すなわち、Ｃｏ／Ｌａ比を小さくする以外は、実施例１と同様とした。追加粉体の粗粉に対する添加量は、金属元素Ａ（Ｃａ、Ｂａ等）及び金属元素Ｒ（Ｌａ）の絶対量が比較例１と変わらないようにした。
【００８５】
（比較例３）
追加粉体を添加しない以外は、比較例１と同様とした。
【００８６】
（実施例５～９）
追加粉体の添加量（質量）を、０．１倍、０．５倍、２倍、５倍、７倍にする以外は、実施例２と同様とした。
【００８７】
（実施例１０～１２）
原料粉体の組成を表１のように変更すると共に、追加粉体の組成を表２のようにする以外は、実施例２と同様とした。
【００８８】
＜磁気特性の評価＞
フェライト焼結磁石の上下面を加工した後、最大印加磁場２９ｋＯｅのＢ－Ｈトレーサを用いて、２０℃におけるＢｒ及びＨｃＪをそれぞれ測定した。
【００８９】
＜切削速度の評価＞
BUELER社製低速精密切断機ISOMETを用いて焼結磁石の角部の切削を行った。具体的には、２６．３ｇの錘を付与した１０×１０×２０ｍｍの大きさの直方体形状の焼結磁石を、その長軸方向が水平に、かつ、直方体の側面間に形成される稜が一番下を向く状態で、水平軸上を回転するディスク刃の上縁に、稜の方向と水平軸とが平行となるように載せ、３０秒、又は、６０秒その状態で維持した。所定時間経った後、焼結磁石をディスク刃から離し、焼結磁石がディスク刃により切断された深さを測定した。切断速度は、切断深さ（ｍｍ）／時間（ｍｉｎ）として求めた。
１つの直方体形状の焼結磁石の対向する２つの稜についてそれぞれ測定を行い、算術平均を得た。
【００９０】
＜組成分析＞
フェライト焼結磁石から集束イオンビーム装置を用いたＦＩＢ（Ｆｏｃｕｓｅｄ　Ｉｏｎ　Ｂｅａｍ）法によりイオン研磨して、厚さ１００ｎｍの薄片を得た。ＳＴＥＭ－ＥＤＳを用いて、当該薄片に対して、一方のフェライト結晶粒から、粒界相を垂直に横切って、他方のフェライト結晶粒まで、元素の線分析を行い、金属元素の線に沿った濃度変化を測定した。測定間隔は３ｎｍとし、１つの粒界毎に、粒界の金属元素濃度分布、及び、フェライト結晶粒の金属元素濃度を求めた。フェライト結晶粒の金属元素濃度は、一方側のフェライト粒子及び他方側のフェライト粒子のそれぞれにおける、粒界から７ｎｍ以上離れた３点ずつの算術平均とした。上述測定を５つの粒界でおこない、平均することで、粒界相及びフェライト結晶粒の金属元素濃度を求めた。
【００９１】
実施例１の焼結磁石における組成分析結果を表３に示す。
【００９２】

【表３】

表3	全金属原子に対する原子濃度C(at%)					$R = C_{Co} / C_{La}$	R_{GB} / R_{FG}	$C_{Co,GB} / C_{Co,FG}$
	Ca	Ba	La	Fe	Co			
フェライト結晶粒(FG)	2.0	1.0	7.1	87.5	2.4	0.34	0.51	0.58
粒界(GB)	4.8	0.9	8.2	84.7	1.4	0.17		

【００９３】
各実施例及び比較例における測定結果を表４に示す。比較例２では、焼結磁石にクラックが生じ、評価ができなかった。
【００９４】

【表４】

表4	R_{GB}/R_{FG}	$C_{Co,GB}/C_{Co,FG}$	切断速度（mm/min）	Br（G）	Hcj（Oe）
比較例1	0.94	0.94	0.9	4690	2320
実施例1	0.51	0.58	1.5	4640	2340
実施例2	0.62	0.72	1.4	4670	2380
実施例3	0.90	0.79	1.2	4680	2370
実施例4	0.62	0.72	1.3	4590	2390
比較例2	0.32	0.46	-	-	-
比較例3	0.92	0.21	1.0	4690	2290
実施例5	0.62	0.42	1.1	4690	2370
実施例6	0.63	0.65	1.2	4680	2380
実施例7	0.62	0.80	1.4	4660	2390
実施例8	0.61	0.92	1.5	4620	2420
実施例9	0.61	0.98	1.5	4610	2440
実施例10	0.61	0.63	1.3	4670	2370
実施例11	0.63	0.62	1.4	4679	2374
実施例12	0.62	0.61	1.3	4682	2380

【００９５】

焼結磁石の切断速度は１．１ｍｍ／ｍｉｎ以上であることが好適である。Ｂｒは４６００Ｇ以上であることが好適である。Ｈｃｊは２２００Ｏｅ以上であることが好適である。

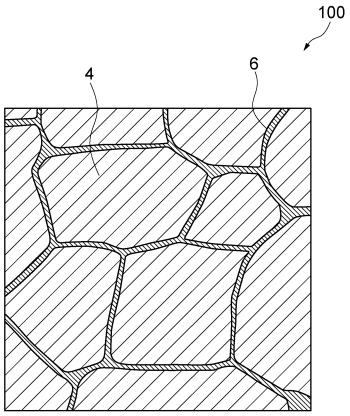
特定範囲のR_{GB}／R_{FG}をみたす実施例では、切削速度が高いことが確認された。また、$C_{Co,GB}$／$C_{Co,FG}$が低いとさらにＢｒも良くなることが確認された。$C_{Co,GB}$／$C_{Co,FG}$が高い実施例８，９では、異相（たとえば、$LaFeO_3$）が確認された。

【符号の説明】

【００９６】

４…フェライト結晶粒、６…粒界相。

【図面】
【図１】



フロントページの続き

(56)参考文献　　特開２００１－６８３１９（ＪＰ，Ａ）
(58)調査した分野　(Int.Cl.，ＤＢ名)
Ｈ０１Ｆ　１／１０
Ｈ０１Ｆ　４１／０２
Ｃ０１Ｇ　４９／００
Ｃ０１Ｇ　５１／００
Ｃ０４Ｂ　３５／４０