

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7275740号
(P7275740)

(45)発行日 令和5年5月18日(2023.5.18)

(24)登録日 令和5年5月10日(2023.5.10)

(51)国際特許分類	F I
H 0 1 F 1/10 (2006.01)	H 0 1 F 1/10
H 0 1 F 41/02 (2006.01)	H 0 1 F 41/02 G
C 0 4 B 35/26 (2006.01)	C 0 4 B 35/26

請求項の数 11 (全17頁)

(21)出願番号	特願2019-59952(P2019-59952)	(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
(22)出願日	平成31年3月27日(2019.3.27)	(74)代理人	100088155 弁理士 長谷川 芳樹
(65)公開番号	特開2020-161660(P2020-161660 A)	(74)代理人	100113435 弁理士 黒木 義樹
(43)公開日	令和2年10月1日(2020.10.1)	(74)代理人	100124062 弁理士 三上 敬史
審査請求日	令和3年11月10日(2021.11.10)	(72)発明者	村川 喜堂 東京都中央区日本橋二丁目5番1号 T D K株式会社内
		(72)発明者	室屋 尚吾 東京都中央区日本橋二丁目5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及びこれを備える回転電気機械

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

六方晶構造を有するM型フェライト粒子、2つの前記M型フェライト粒子間に形成された2粒子粒界、及び、3つ以上の前記M型フェライト粒子に囲まれた多粒子粒界を備えるフェライト焼結磁石であって、

前記フェライト焼結磁石は、少なくとも、Fe、Ca、B、及び、Siを含み、

前記フェライト焼結磁石は、BをB₂O₃換算で0.005~0.9質量%含み、

前記フェライト焼結磁石は、CrをCr₂O₃換算で0.03~0.2質量%含み、

前記2粒子粒界及び前記多粒子粒界はSi及びCaを含み、

前記フェライト焼結磁石のc軸に平行な断面において、断面積76µm²あたりの、0.088以上0.49µm未満の最大長を有する多粒子粒界の個数をPとした時に、Pが8以上であり、

前記フェライト焼結磁石中のNaの含有量は、Na₂O換算で0.005質量%以下である、フェライト焼結磁石。

【請求項2】

前記フェライト焼結磁石のc軸に平行な断面における2粒子粒界及び多粒子粒界の面積の割合をZとしたときに、2.51% < Z < 5%を満たす、請求項1に記載のフェライト焼結磁石。

【請求項3】

前記フェライト焼結磁石のc軸に平行な断面における2粒子粒界の平均厚みをdとした

場合に、 $0.683 \text{ nm} < d < 2 \text{ nm}$ を満たす、請求項 1 又は 2 に記載のフェライト焼結磁石。

【請求項 4】

前記フェライト焼結磁石の c 軸に平行な断面において、断面積 $76 \mu\text{m}^2$ あたりの、 $1 \mu\text{m}$ 以下の最大径を有する M 型フェライト粒子の個数を Q としたときに、Q が $27 \sim 119$ である、請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載のフェライト焼結磁石。

【請求項 5】

前記フェライト焼結磁石中の Si の含有量が、 SiO_2 換算で、 $0.05 \sim 1.3$ 質量%である、請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載のフェライト焼結磁石。

【請求項 6】

前記フェライト焼結磁石中の Mn の含有量が MnO 換算で $0.25 \sim 1.5$ 質量%である、請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載のフェライト焼結磁石。

【請求項 7】

前記フェライト焼結磁石中の Zn の含有量が ZnO 換算で $0.01 \sim 1.47$ 質量%である、請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載のフェライト焼結磁石。

【請求項 8】

前記 M 型フェライト粒子は、M 型 Sr フェライト粒子又は M 型 Ba フェライト粒子であり、前記フェライト焼結磁石中の Ca の含有量が、CaO 換算で、 $0.15 \sim 2.0$ 質量%である、請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 項に記載のフェライト焼結磁石。

【請求項 9】

前記 M 型フェライト粒子は、M 型 Ca フェライト粒子であり、前記フェライト焼結磁石中の Ca の含有量が、CaO 換算で、 $2 \sim 5$ 質量%である、請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 項に記載のフェライト焼結磁石。

【請求項 10】

前記フェライト焼結磁石は La 及び Co を実質的に含まない、請求項 1 ~ 9 のいずれか 1 項に記載のフェライト焼結磁石。

【請求項 11】

請求項 1 ~ 10 のいずれか 1 項に記載のフェライト焼結磁石を備える回転電気機械。

【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及びそれを備える回転電気機械に関する。

【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。近年、これらの中でも、モータ等の回転電気機械の磁石材料として、主にマグネトブランバイト型 (M 型) のフェライトが注目されている。M 型フェライトは $\text{AFe}_{12}\text{O}_{19}$ の一般式で表される。

【0003】

近年では、M 型フェライトとして、原料コストの低減の観点から希土類元素及び Co を含まないもの、例えば、Na を含むものが開発されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0004】

【文献】WO 2013 / 125600 号公報

WO 2013 / 125601 号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

ところで、フェライト焼結磁石において抗折強度などの強度の特性が重要である。しか

10

20

30

40

50

しながら、従来のフェライト焼結磁石は、必ずしも強度が十分とは言えなかった。本発明は、上記事情に鑑みてなされたものであり、希土類元素及びCoを含まなくてよく、かつ、磁気特性及び強度に優れたフェライト焼結磁石及びこれを用いた回転電気機械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】

本発明に係るフェライト焼結磁石は、六方晶構造を有するM型フェライト粒子、2つの前記M型フェライト粒子間に形成された2粒子粒界、及び、3つ以上の前記M型フェライト粒子に囲まれた多粒子粒界を備えるフェライト焼結磁石である。このフェライト焼結磁石は、少なくとも、Fe、Ca、B、及び、Siを含み、Bを B_2O_3 換算で0.005 ~ 0.9質量%含む。前記2粒子粒界及び前記多粒子粒界はSi及びCaを含む。そして、前記フェライト焼結磁石のc軸に平行な断面において、断面積 $76\mu m^2$ あたりの、0.088以上0.49 μm 未満の最大長を有する多粒子粒界の個数をPとした時に、Pが8以上である。

10

【0007】

ここで、フェライト焼結磁石のc軸に平行な断面における2粒子粒界及び多粒子粒界の面積の割合をZとしたときに、 $2.51\% < Z < 5\%$ を満たすことができる。

【0008】

また、フェライト焼結磁石のc軸に平行な断面における2粒子粒界の平均厚みをdとした場合に、 $0.683nm < d < 2nm$ を満たすことができる。

20

【0009】

また、前記フェライト焼結磁石のc軸に平行な断面において、断面積 $76\mu m^2$ あたりの、 $1\mu m$ 以下の最大径を有する主相粒子の個数をQとしたときに、Qが27~119であることができる。

【0010】

また、前記フェライト焼結磁石中のSiの含有量が、 SiO_2 換算で、0.05~1.3質量%であることができる。

【0011】

また、前記フェライト焼結磁石中のMnの含有量が、MnO換算で0.25~1.5質量%であることができる。

30

【0012】

また、前記フェライト焼結磁石中のCrの含有量が Cr_2O_3 換算で0.03~0.2質量%であることができる。

【0013】

また、前記フェライト焼結磁石中のZnの含有量がZnO換算で0.01~1.47質量%であることができる。

【0014】

また、前記M型フェライト粒子は、M型Srフェライト粒子又はM型Baフェライト粒子であることができ、この場合、前記フェライト焼結磁石中のCaの含有量が、CaO換算で、0.15~2.0質量%であることができる。

40

【0015】

また、前記M型フェライト粒子は、M型Caフェライト粒子であることができ、前記フェライト焼結磁石中のCaの含有量が、CaO換算で、2~5質量%であることができる。

【0016】

前記フェライト焼結磁石はLa及びCoを実質的に含まなくてよい。

【0017】

本発明に係る回転電気機械は、上述のフェライト焼結磁石を備える。

【発明の効果】

【0018】

本発明によれば、希土類元素及びCoを実質的に含まず、かつ、磁気特性及び強度に優

50

れたフェライト焼結磁石を得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【0019】

【図1】図1は、本発明のフェライト焼結磁石の断面構造の一例を示す模式図である。

【図2】図2は、本発明のフェライト焼結磁石を有するモータの断面模式図である。

【図3】図3の(a)は抗折強度試験を行ったフェライト焼結磁石Sの斜視図であり、図3の(b)は抗折強度試験の模式図である。

【発明を実施するための形態】

【0020】

以下、必要に応じて図面を参照しつつ、本発明の好適な実施形態について詳細に説明する。

10

【0021】

(フェライト焼結磁石)

本発明の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、六方晶構造を有するM型フェライト粒子4と、M型フェライト粒子4間に存在する粒界相6とを有する。

【0022】

M型フェライト粒子は(1)式で表されるM型フェライトを主成分とすることができる。



ここで、AはSr、Ba、及び、Caからなる群から選択される少なくとも一つを含む。

20

【0023】

M型フェライトは、Aの34at%以上をSrが占めるSrフェライトであることができ、Aの34at%以上をBaが占めるBaフェライトであることができ、Aの34at%以上をCaが占めるCaフェライトであることができる。Srフェライト、Baフェライト、Caフェライトは、Aの原子比率においてSr、Ba、Caがそれぞれ最大成分であることができる。

【0024】

SrフェライトにおけるAの残りの元素は、Ba、及び、Caからなる群から選択される少なくとも一つであることができる。SrフェライトにおけるAの残りの元素は、Ba、及び、Caからなる群から選択される少なくとも一つであることができる。CaフェライトにおけるAの残りの元素は、Sr及びBaからなる群から選択される少なくとも一つであることができる。

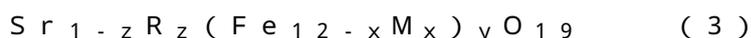
30

【0025】

XはFeを必ず含む。Feの原子比は50%以上であって良い。Xの残りは、Zn(亜鉛)、Mn(マンガン)、Al(アルミニウム)及びCr(クロム)からなる群より選ばれる1種以上の元素であることができる。

【0026】

M型Srフェライトは、例えば以下の一般式(3)で表すことができる。

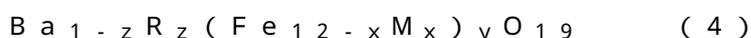


上式(3)中、xは、例えば0.01~0.5であり、yは、例えば0.7~1.2であり、zは、0~0.5であり、例えば、0であっても良く、0.01~0.49であってもよい。Rは、Ca及び/又はBaであることができる。

40

【0027】

M型Baフェライトは、例えば以下の一般式(4)で表すことができる。

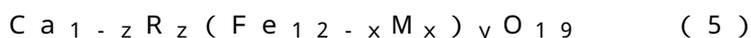


上式(4)中、xは、例えば0.01~0.5であり、yは、例えば0.7~1.2であり、zは、0~0.5であり、例えば、0であってもよく、0.01~0.49であってもよい。Rは、Sr及び/又はCaであることができる。

【0028】

M型Caフェライトは、例えば以下の一般式(5)で表すことができる。

50



上式(5)中、 x は、例えば0.01~0.5であり、 y は、例えば0.7~1.2であり、 z は、0~0.5であり、例えば、0であってもよく、0.01~0.49であってもよい。Rは、Sr及び/又はBaであることができる。

【0029】

上式(3)~(5)式におけるMは、Zn(亜鉛)、Mn(マンガン)、Al(アルミニウム)及びCr(クロム)からなる群より選ばれる1種以上の元素であることができる。

【0030】

なお、上式(3)~(5)式におけるAサイト及びXサイトの比率や、酸素(O)の比率は、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ずれていてもよい。

10

【0031】

フェライト焼結磁石におけるM型フェライトが上式(3)~(5)で表される場合、MはMn及びCrを含むことが好ましく、Mn及びCr及びZnを含むことがより好ましい。

【0032】

M型フェライト粒子におけるM型フェライトの質量分率は、好ましくは90%以上であり、より好ましくは95%以上であり、さらに好ましくは97%以上である。

【0033】

フェライト焼結磁石における全結晶粒に占めるM型フェライト粒子(主相)の質量比率は、好ましくは90%以上であり、より好ましくは95%以上であり、さらに好ましくは97%以上である。このように、M型フェライト相とは異なる結晶相(異相)の質量比率を低減することによって、磁気特性を一層高くすることができる。フェライト焼結磁石の全結晶粒におけるM型フェライト相の質量比率(%)は、X線回折により、M型フェライト相の存在比率(モル%)を求めることで確認することができる。M型フェライト相の存在比率は、M型フェライト、オルソフェライト、ヘマタイト、スピネル、W型フェライト、それぞれの粉末試料を所定比率で混合し、それらのX線回折強度から比較算定することにより算出される。

20

【0034】

フェライト焼結磁石のc軸に平行な断面において、断面積 $76\mu\text{m}^2$ あたりの、 $1\mu\text{m}$ 以下の最大径を有するM型フェライト粒子の個数をQとしたときに、Qが27~119であることが好ましい。最大径とは、最も大きくなる方向において測定した多粒子粒界6bの径である。また、フェライト焼結磁石におけるc軸とは、フェライト焼結磁石における磁化容易軸である。

30

【0035】

最大径が $1\mu\text{m}$ 以下のM型フェライト粒子の個数がある程度以上の数とされることにより、角型比が向上する。

【0036】

粒界相6はM型フェライト粒子4の間に配置されている。粒界相6の主成分は酸化物である。酸化物の構成元素は、B(ホウ素)、Si(ケイ素)、Ca(カルシウム)、Sr(ストロンチウム)、Ba(バリウム)、Fe(鉄)、Mn(マンガン)、Zn(亜鉛)、Cr(クロム)、及びAl(アルミニウム)から選ばれる少なくとも一種、または、任意の2種以上の組み合わせであることができる。酸化物の例としては、例えば SiO_2 、 CaO 、 BaO 、 SrO 、 Al_2O_3 、 ZnO 、 Fe_2O_3 、 MnO 、 Cr_2O_3 、 B_2O_3 等が挙げられる。またケイ酸ガラスを含んでもよい。酸化物は粒界相6の90質量%以上を占めることができ、より好ましくは95%以上であり、さらに好ましくは97%以上である。

40

【0037】

粒界相6は、Si及びCaを必ず含む。粒界相はさらにBを含むことができる。

【0038】

粒界相6は、2つのM型フェライト粒子4間に形成された2粒子粒界6a、及び、3つ

50

以上のM型フェライト粒子4に囲まれた多粒子粒界6bを有する。

【0039】

フェライト焼結磁石のc軸に平行な断面において、断面積 $76\mu\text{m}^2$ あたりの、 0.088 以上 $0.49\mu\text{m}$ 未満の最大長を有する多粒子粒界の個数をPとした時に、Pが8以上である。ここで、最大長とは、最も大きくなる方向において測定した多粒子粒界6bの長さ(径)である。Pは10以上でもよく、15以上でも良い。Pは200以下であることができる。

【0040】

小さな多粒子粒界の個数が多いことにより、2粒子粒界6aの厚みが大きくなる。したがって、M型フェライト粒子間の磁氣的相互作用が抑制され、 H_{cj} が向上すると共に、機械的硬度も高くなると考えられる。

10

【0041】

フェライト焼結磁石のc軸に平行な断面において、断面積 $76\mu\text{m}^2$ あたりの、 $0.49\sim 5\mu\text{m}$ の最大長を有する多粒子粒界の個数をNとした時に、Nが7以下であることができる。Nは6以下であることもできる。Nは0でもよい。

【0042】

大きな多粒子粒界の個数が少ないことにより、2粒子粒界6aの厚みが大きくなる。したがって、M型フェライト粒子間の磁氣的相互作用が抑制され、 H_{cj} が向上すると共に、機械的硬度も高くなると考えられる。

【0043】

フェライト焼結磁石のc軸に平行な断面において、粒界相6(2粒子粒界6a及び多粒子粒界6b)の面積の割合Zは $2.51\% < Z < 5\%$ を満たすことができる。粒界相6の面積の割合Zは、断面積 $76\mu\text{m}^2$ において測定することができる。

20

【0044】

粒界相6の面積が少ないと、M型フェライト粒子間の磁氣的相互作用を抑制する効果が得られにくい、一方、粒界相6の面積が大きすぎると、全体に占める非磁性層が大きくなりすぎて B_r が低下する。

【0045】

フェライト焼結磁石のc軸に平行な断面における2粒子粒界6aの平均厚みをdとした場合に、 $0.683\text{nm} < d < 2\text{nm}$ を満たすことができる。平均厚みdとは、例えば、両端が多粒子粒界とされる2粒子粒界の中央部における測定値を、異なる10個の2粒子粒界について測定し、その平均値とすることができる。

30

【0046】

これを満たすことにより、2粒子粒界6aの厚みが小さすぎず、M型フェライト粒子間の磁氣的相互作用を抑制する効果が得られやすい。2粒子粒界6aの厚みが大きすぎると、非磁性層の割合が増えて B_r が低下する。

【0047】

本発明の実施形態に係るフェライト焼結磁石は、Fe、Ca、B、及びSiを少なくとも含む酸化物である。

【0048】

フェライト焼結磁石におけるFeの含有量は、 Fe_2O_3 換算で、好ましくは80~95質量%であり、より好ましくは87~90質量%である。上記範囲とすることにより良好な磁気特性が得られる。

40

【0049】

M型フェライト粒子がSrフェライト粒子である場合、フェライト焼結磁石におけるSrの含有量は、 SrO 換算で、好ましくは9~11質量%であり、より好ましくは9~10質量%である。

【0050】

M型フェライト粒子がBaフェライト粒子である場合、フェライト焼結磁石におけるBaの含有量は、 Ba_2O_3 換算で、好ましくは13~17質量%であり、より好ましくは

50

13 ~ 15 質量%である。

【0051】

M型フェライトがCaフェライト粒子である場合、フェライト焼結磁石におけるCaの含有量は、CaO換算で、好ましくは2 ~ 5 質量%であり、より好ましくは2 ~ 4 質量%である。

【0052】

フェライト焼結磁石はBを含む。フェライト焼結磁石におけるBの含有量は、 B_2O_3 換算で、0.005 ~ 0.9 質量%である。フェライト焼結磁石の保磁力及び角型比(Hk/HcJ)をさらに高める観点から、Bの含有量は、 B_2O_3 換算で、好ましくは0.01 質量%以上である。また、フェライト焼結磁石の残留磁束密度(Br)をさらに高める観点から、Bの含有量は、 B_2O_3 換算で、好ましくは0.4 質量%以下であり、より好ましくは0.2 質量%以下である。

10

【0053】

フェライト焼結磁石は、Si(シリコン)を含む。フェライト焼結磁石におけるSiの含有量は、 SiO_2 換算で、好ましくは0.05 ~ 1.3 質量%であり、より好ましくは0.2 ~ 0.5 質量%、さらに好ましくは0.25 ~ 0.36 質量%である。 SiO_2 が多すぎるとBrが低下し、少なすぎるとHcJが低下する傾向があるため、 SiO_2 含有量を上記範囲内とすることで、最適な粒界相を形成して、高い磁気特性を得やすくなる。

【0054】

フェライト焼結磁石は、主相がSrフェライトであってもBaフェライトであっても、Ca(カルシウム)を含む。主相がSrフェライト又はBaフェライトである場合、フェライト焼結磁石におけるCaの含有量は、CaO換算で、好ましくは0.15 ~ 2.0 質量%であり、より好ましくは0.4 ~ 1.0 質量%、さらに好ましくは0.47 ~ 0.62 質量%である。Caが多すぎるとHcJが低下し、少ないとBrが低下する傾向があるため、Caの含有量を上記範囲内とすることで、最適な粒界相を形成して、高い磁気特性を得やすくなる。

20

【0055】

また、フェライト焼結磁石は、主相がSrフェライトである場合にはBaを含むことができる。Baの含有量は、BaO換算で、好ましくは0 ~ 0.2 質量%である。

【0056】

フェライト焼結磁石は、主相がCaフェライトである場合にはSr及びBaからなる群から選択される少なくとも一つを含有することができ、Baの含有量は、BaO換算で、好ましくは0 ~ 1.5 質量%である。Srの含有量は、SrO換算で、好ましくは0 ~ 1.0 質量%である。

30

【0057】

フェライト焼結磁石は、主相がBaフェライトである場合にはSrを含むことができる。Srの含有量は、SrO換算で、好ましくは0 ~ 0.8 質量%である。

【0058】

フェライト焼結磁石はMnを含むことができる。フェライト焼結磁石におけるMnの含有量は、MnO換算で、好ましくは0.25 ~ 1.5 質量%である。上記範囲を満足するMnがFeのサイトを置換することで、磁気特性向上の効果が得られやすくなるほか、Znの固溶を促進する働きなどが推測される。

40

【0059】

フェライト焼結磁石はCrを含むことができる。フェライト焼結磁石におけるCrの含有量は、 Cr_2O_3 換算で、好ましくは0.03 ~ 0.2 質量%である。上記範囲を満足するCrがFeのサイトを置換することで、磁気特性向上の効果が得られやすくなるほか、Znの固溶を促進する働きなどが推測される。

【0060】

フェライト焼結磁石はZnを含むことができる。フェライト焼結磁石におけるZnの含有量は、ZnO換算で、0.01 ~ 1.47 質量%である。フェライト焼結磁石の残留磁

50

束密度 (Br) をさらに高める観点から、Znの含有量は、ZnO換算で、好ましくは0.08質量%以上であり、より好ましくは0.15質量%以上であることができる。また、フェライト焼結磁石の保磁力及び角型比 (Hk / HcJ) をさらに高める観点から、Znの含有量は、ZnO換算で、好ましくは1.0質量%以下であり、より好ましくは0.5質量%以下である。

【0061】

Znが反平行方向に向いた磁気モーメントを有するFeのサイトを選択的に置換することで、飽和磁化Brが向上するものと考えられる。その反面、Znが置換したことにより結晶磁気異方性が下がるために保磁力が低下するが、Bを含有する粒界相が均質に形成されることにより、結晶粒間の磁氣的相互作用を抑制する効果が働き、保磁力の低下を抑制し、保磁力を維持することができる と推測される。

10

【0062】

フェライト焼結磁石は、希土類元素及びCo (コバルト) を実質的に含まないことが好適である。希土類元素とは、Sc, Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb、および、Luである。

【0063】

フェライト焼結磁石はNiを含んでもよいが、実質的にNiを含まないことが好適である。Niの濃度は、0.02質量%以下とすることができる。

【0064】

フェライト焼結磁石はCuを含んでもよいが、実質的にCuを含まないことが好適である。Cuの濃度は、0.02質量%以下とすることができる。

20

【0065】

これらの金属を含まないことで、コストの低減が可能となる。

【0066】

ここで、フェライト焼結磁石が元素Aを実質的に含まないとは、フェライト焼結磁石における元素Aの濃度が酸化物換算で0.005質量%未満であることを言う。当該元素Aの濃度は酸化物換算で0.001質量%未満であることが好ましい。

【0067】

また、フェライト焼結磁石は、Alを含有する必要は無いが、Alを含んでもよい。Alの含有量は、Al₂O₃換算で、0~0.2質量%とすることができる。

30

【0068】

フェライト焼結磁石は、Naを含有する必要は無く、Naを実質的に含まないことが好適である。Naの含有量は、Na₂O換算で、0.005質量%以下であることが好適である。さらに、0.001質量%以下であることが好適である。Naの含有量が少ないほうが成形性に優れる。

【0069】

フェライト焼結磁石には、これらの成分の他に、原料に含まれる不純物や製造設備に由来する不可避免的な成分が含まれていてもよい。このような成分としては、例えばMg (マグネシウム), Ti (チタン), Mo (モリブデン) 及びV (バナジウム) 等の各酸化物が挙げられる。これらの含有量は、合計で0.06質量%以下であることが好適である。

40

【0070】

なお、フェライト焼結磁石の各成分の含有量は、蛍光X線分析及び誘導結合プラズマ発光分光分析 (ICP分析) によって測定することができる。

【0071】

フェライト焼結磁石の残留磁束密度 (Br) は、好ましくは420mT以上であり、より好ましくは440mT以上であり、さらに好ましくは450mT以上である。フェライト焼結磁石の保磁力は、好ましくは260kA/m以上であり、より好ましくは270kA/m以上であり、さらに好ましくは280kA/mである。また、フェライト焼結磁石の角型比 (Hk / HcJ) は好ましくは85%以上であり、より好ましくは88%以上であり、さらに好ましくは90%以上である。特に、フェライト焼結磁石は、残留磁束密度

50

(B_r) が 440 mT 以上であり、かつ、角型比 ($H_k / H_c J$) が 85% 以上であることが好ましい。このような優れた磁気特性を有することによって、モータや発電機に一層好適に用いることができる。

【0072】

また、フェライト焼結磁石は十分な機械強度を有していることができる。機械強度の高いフェライト焼結磁石は、取扱いが容易であり、搬送中の割れや欠けを有効に防止できるため製品歩留まりが向上し、コスト削減に資する。さらに、機械強度の高いフェライト焼結磁石は、モータ等の製品に組み込み後も容易に破壊されることがないため、製品の信頼性を向上できる。

【0073】

フェライト焼結磁石の形状に特に限定は無く、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。

【0074】

フェライト焼結磁石は、モータ及び発電機など回転電気機械、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。

【0075】

(回転電気機械)

続いて、図2に本発明の一実施形態に係るモータを示す。モータ200は、ステータ31と、ロータ32と、を備える。ロータ32は、シャフト36及びロータコア37を有する。本実施形態のモータ200では、ステータ31に永久磁石であるC字型のフェライト焼結磁石100が設けられ、ロータ32のロータコア37に電磁石 (コイル) が設けられている。

【0076】

フェライト焼結磁石100は、 B_r が高いので、厚みを薄くすること可能であることから、ステータ31とロータ32の隙間を十分に小さくすることができる。したがって、モータ200は、その性能を維持しながら小型化することができる。

【0077】

なお、フェライト焼結磁石がロータに設けられ、電磁石 (コイル) がステータに設けられたモータでもよい。モータの形態に特段の限定はない。また、回転電気機械の他の一例は、ロータ及びステータを有する発電機である。この場合も、フェライト焼結磁石はロータ又はステータに設けられることができる。

【0078】

(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。フェライト焼結磁石の製造方法は、配合工程、仮焼工程、粉碎工程、磁場中成形工程及び焼成工程を有する。以下、各工程の詳細を説明する。

【0079】

配合工程は、仮焼用の混合粉末を調製する工程である。仮焼用の混合粉末は、M型フェライトを構成する全ての金属元素を含む粉末であることができる。配合工程では、Feを含む粉末、Srを含む粉末などの複数種の粉末を、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碎処理を行って混合粉末を得ることが好適である。

【0080】

配合工程では、フェライトを構成する金属元素以外の、フェライト焼結磁石に含まれる他の金属元素を含む粉末、及び、半金属元素を含む粉末を混合してもよい。別の粉末の例は、Siを含む粉末、Caを含む粉末、Znを含む粉末、及び、Bを含む粉末である。

【0081】

10

20

30

40

50

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。一つの粉末が金属元素と半金属元素を含んでいてもよい。

【0082】

Feを含む粉末の例は、 Fe_2O_3 である。
 Srを含む粉末の例は、 $SrCO_3$ 、及び、 SrO である。
 Siを含む粉末の例は、 SiO_2 である。
 Caを含む粉末の例は、 $CaCO_3$ 、及び、 CaO である。
 Znを含む粉末の例は、 ZnO である。
 Baを含む粉末の例は、 BaO である。
 Bを含む粉末の例は、 H_3BO_3 である。

10

【0083】

Bは、水に溶け、熱により蒸発する傾向があるため、適宜多めに投入することが好適である。

特にBを含む化合物として、 B_2O_3 でなく H_3BO_3 がよく、配合工程で全量添加することが望ましい。 H_3BO_3 は B_2O_3 と比較して、水への溶解度が高いため、分子レベルでの均一分散が可能（ホウ酸 $5.7g/100ml$ 、酸化ホウ素 $3.6g/100ml$ at $25^\circ C$ ）であり、ホウ酸の方が比重が軽いので攪拌混合時の分散が容易（ホウ酸 $1.5g/cm^3$ 、酸化ホウ素 $1.9g/cm^3$ 以上）である。さらに、未溶解分が残っている場合でもホウ酸は比較的低温で分解するため、均一に分散することが期待できる。（分解温度：ホウ酸 $171^\circ C$ 、酸化ホウ素 $450^\circ C$ ）。さらに、配合工程で全量添加することにより仮焼時にホウ素が他の成分と均質な組織を形成する効果を最大限得ることができる。

20

【0084】

すなわち、 H_3BO_3 を配合工程で全量添加することで、例えば、大きな多粒子粒界6bの個数Nを少なくすることができ、小さな多粒子粒界6bの個数Pを多くすることができ、平均厚みdが大きな2粒子粒界6aの形成が可能となり、 $1\mu m$ 以下のフェライト粒子の数Qを多くすることができる。したがって、高い磁気特性と強度を得ることができると考えられる。

30

【0085】

原料粉末の平均粒径は特に限定されず、例えば $0.1\sim 2.0\mu m$ である。

なお、最終製品となるフェライト焼結磁石中に含有されてもよいCr、Mn、Al、Baなどの少量添加元素は、上記の粉末中にあらかじめ含まれることができる。上記粉末においてこれらの少量添加元素が少ない場合には、必要に応じて、Crを含む粉末（ Cr_2O_3 ）、Mnを含む粉末（ MnO ）、Alを含む粉末（ Al_2O_3 ）、Baを含む粉末（ BaO ）などを配合工程に添加して、仮焼用の混合粉末を得ることが出来る。

【0086】

混合粉末における金属及び半金属元素の組成はフェライト焼結磁石の最終製品のその組成と概ね一致するが、製造工程中で消失する元素があるため、正確には一致しない。

40

【0087】

仮焼工程は、配合工程で得られた混合粉末を仮焼する工程である。仮焼は、空気中等の酸化性雰囲気で行うことができる。仮焼温度は、好ましくは $850\sim 1450$ であり、より好ましくは $900\sim 1350$ であり、さらに好ましくは $1000\sim 1300$ であり、仮焼温度における仮焼時間は、好ましくは1秒間～10時間、より好ましくは1分間～3時間である。仮焼して得られる仮焼物におけるM型フェライトの含有量は、好ましくは70質量%以上であり、より好ましくは90質量%以上である。仮焼物の一次粒子径は、好ましくは $10\mu m$ 以下であり、より好ましくは $3.0\mu m$ 以下である。

【0088】

粉碎工程は、仮焼物を粉碎してM型フェライト磁石の粉末を得る工程である。粉碎工程

50

は、一段階で行ってもよく、粗粉碎工程と微粉碎工程の二段階に分けて行ってもよい。仮焼物は、通常顆粒状又は塊状であるため、まずは粗粉碎工程を行うことが好ましい。粗粉碎工程では、振動ロッドミル等を使用して乾式で粉碎を行って、平均粒径 $0.5 \sim 5.0 \mu\text{m}$ の粉碎粉を調製する。このようにして調製した粉碎粉を、湿式アトライタ、ボールミル、又はジェットミル等を用いて湿式で粉碎して、平均粒径 $0.08 \sim 5.0 \mu\text{m}$ 、好ましくは $0.1 \sim 2.5 \mu\text{m}$ 、より好ましくは $0.2 \sim 2 \mu\text{m}$ の微粉末を得る。

【0089】

微粉末のBET法による比表面積は、好ましくは $5 \sim 14 \text{m}^2/\text{g}$ 、より好ましくは $7 \sim 12 \text{m}^2/\text{g}$ である。粉碎時間は、例えば湿式アトライタを用いる場合、30分間～20時間であり、ボールミルを用いる場合、5～50時間である。これらの時間は、粉碎方法によって適宜調整することが好ましい。

10

【0090】

粉碎工程では、M型フェライト磁石粉末に対して、金属元素及び/又は半金属元素(Si, Ca, Ba, Sr, Zn, 及び、B等)を含む粉末、及び/又は、Cr、Mn、Al、Baなどの少量添加元素を含む粉末を添加してもよい。

【0091】

フェライト焼結磁石の磁氣的配向度を高めるために、上述の成分に加えて、多価アルコールを微粉碎工程で添加することが好ましい。多価アルコールの添加量は、添加対象物に対して $0.05 \sim 5.0$ 質量%、好ましくは $0.1 \sim 3.0$ 質量%、より好ましくは $0.1 \sim 2.0$ 質量%である。なお、添加した多価アルコールは、磁場中成形工程後の焼成工程で熱分解して除去される。

20

【0092】

磁場中成形工程は、粉碎工程で得られた微粉末を磁場中で成形して成形体を作製する工程である。磁場中成形工程は、乾式成形、又は湿式成形のどちらの方法でも行うことができる。磁氣的配向度を高くする観点から、湿式成形が好ましい。湿式成形を行う場合、微粉碎工程を湿式で行って、得られたスラリーを所定の濃度に調整し、湿式成形用スラリーとしてもよい。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。

【0093】

湿式成形用スラリー中における微粉末の含有量は、好ましくは $30 \sim 85$ 質量%である。スラリーの分散媒としては水又は非水系溶媒を用いることができる。湿式成形用スラリーには、水に加えて、グルコン酸、グルコン酸塩、又はソルビトール等の界面活性剤を添加してもよい。このような湿式成形用スラリーを用いて磁場中成形を行う。成形圧力は例えば $0.1 \sim 0.5 \text{トン}/\text{cm}^2$ であり、印加磁場は例えば $5 \sim 15 \text{kOe}$ である。

30

【0094】

焼成工程は、成形体を焼成して焼結体を得る工程である。焼成工程は、通常、大気中等の酸化性雰囲気中で行う。焼成温度は、好ましくは $1050 \sim 1300$ 、より好ましくは $1150 \sim 1250$ である。焼成温度における焼成時間は、好ましくは $0.5 \sim 3$ 時間である。以上の工程によって、焼結体、すなわちフェライト焼結磁石を得ることができる。なお、本発明のフェライト焼結磁石の製造方法は、上述の方法に限定されるものではない。

40

【実施例】

【0095】

以下、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、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

【0096】

(フェライト焼結磁石の作製)

まず、以下の出発原料を準備した。

- ・ Fe_2O_3 粉末 (一次粒子径: $0.3 \mu\text{m}$)
- ・ SrCO_3 粉末 (一次粒子径: $2 \mu\text{m}$)

50

- ・ S i O₂ 粉末 (一次粒子径 : 0 . 0 1 μ m)
- ・ C a C O₃ 粉末
- ・ Z n O 粉末
- ・ H₃ B O₄ 粉末

【 0 0 9 7 】

[実施例 1]

F e₂ O₃ 粉末 1 0 0 0 g、 S r C O₃ 粉末 1 6 1 g、 C a C O₃ 粉末 1 2 . 1 g、 S i O₂ 粉末 4 . 3 3 g、 Z n O 粉末 3 . 5 g、 及び、 H₃ B O₄ 粉末 3 . 4 8 g を、 湿式アトライタを用いて粉碎しながら混合し、 乾燥及び整粒を行った。 このようにして得られた粉末を、 大気中、 1 2 5 0 で 1 時間焼成し、 顆粒状の仮焼物を得た。 乾式振動ロッドミルを用いて、 この仮焼物を粗粉碎して、 B E T 法による比表面積が 1 m² / g の粉末を調製した。

10

【 0 0 9 8 】

粗粉碎した粉末 2 0 0 g に、 ソルビトールを所定量添加し、 ボールミルを用いて湿式粉碎を 2 4 時間行ってスラリーを得た。 ソルビトールの添加量は、 粗粉碎した粉末の質量を基準として、 0 . 2 5 質量%とした。 粉碎後の微粉末の比表面積は 8 ~ 1 0 m² / g であった。

【 0 0 9 9 】

その後、 スラリーの固形分濃度を調整し、 湿式磁場成形機を用いて 1 2 k O e の印加磁場中で成形を行って成形体を得た。 このような成形体を 3 個作製した。 これらの成形体を、 大気中で、 それぞれ 1 1 8 0、 1 1 9 5、 1 2 1 0 で焼成して円柱形状のフェライト焼結磁石 (実施例 1) を得た。

20

【 0 1 0 0 】

[実施例 2 ~ 6、 比較例 1]

H₃ B O₄ 粉末の添加量を変える以外は実施例 1 と同様にして、 実施例 2 ~ 6、 及び、 比較例 1 の磁石を得た。

【 0 1 0 1 】

[実施例 7 ~ 8]

M n 含有量の異なる原料銘柄を選択することにより M n の添加量を変える以外は実施例 4 と同様にして、 実施例 7、 及び、 8 の磁石を得た。

30

【 0 1 0 2 】

[実施例 9 ~ 1 0]

C r 含有量の異なる原料銘柄を選択することにより C r の添加量を変える以外は実施例 4 と同様にして、 実施例 9、 及び、 1 0 の磁石を得た。

【 0 1 0 3 】

[実施例 1 1 ~ 1 2]

Z n O の添加量を変える以外は実施例 4 と同様にして、 実施例 1 1、 及び、 1 2 の磁石を得た。

【 0 1 0 4 】

[実施例 1 3 ~ 1 4]

S i O₂ の添加量を変える以外は実施例 4 と同様にして、 実施例 1 3、 及び、 1 4 の磁石を得た。

40

【 0 1 0 5 】

[実施例 1 5 ~ 1 6]

C a C O₃ の添加量を変える以外は実施例 4 と同様にして、 実施例 1 5、 及び、 1 6 の磁石を得た。

【 0 1 0 6 】

(フェライト焼結磁石の評価)

< 組成分析 >

作製した各実施例及び各比較例のフェライト焼結磁石の組成を誘導結合プラズマ発光分

50

光分析（ICP分析）によって測定した。フェライト焼結磁石は、Fe, Sr, Si, Ca、Zn、B等の他に、出発原料に含まれる不純物に由来する元素（Ba、Al, Mn, Cr等）が検出された。

【0107】

表1に、検出されたFe, Sr, Ba, Al, Si, Ca, Mn, Zn, Cr, Na及びBを、それぞれFe₂O₃, SrO, BaO, Al₂O₃, SiO₂, CaO, MnO, ZnO, Cr₂O₃, Na₂O、及び、B₂O₃に換算したときの含有量を示す。これらの含有量は、フェライト焼結磁石全体を基準とした値（質量%）である。

【0108】

<磁気特性の評価>

作製した円柱形状の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25kOeのB-Hトレースを用いて磁気特性を測定した。測定では、残留磁束密度(B_r)及び保磁力(H_{cJ})を求めるとともに、残留磁束密度(B_r)の90%になるときの外部磁界強度(H_k)を測定し、これに基づいて角型比(H_k/H_{cJ})(%)を求めた。各実施例及び比較例において、焼成温度1180、1195及び1210でそれぞれ作製したフェライト焼結磁石のうち、最も残留磁束密度(B_r)と角型比(H_k/H_{cJ})のバランスの良い1195で作製したフェライト焼結磁石の磁気特性を表1に示す。

【0109】

<機械強度の評価>

以下の条件により、3点曲げ試験によりフェライト焼結磁石の抗折強度()を測定した。まず、上記円柱形状のフェライト焼結磁石とは別に、図3の(a)に示すような弧状のフェライト焼結磁石S(長さLは34mm、幅Wは25.5mm、厚みTは3.7mm、弧を含む円を想定した場合の円の中心から弧の両端部に引いた接線間の角度Rは130度)を準備した。なお、焼成温度は1195とした。

次に、図3の(b)に示すように、水平な台70の上に弧状のフェライト焼結磁石Sを置き、治具72により上方より下方に向けて矢印の方向に荷重Fを与えて(速度3mm/min)、フェライト焼結磁石Sが破壊されたときの破壊最大荷重F[N]を測定し、下記式より抗折強度()を求めた。抗折強度()は、サンプル30個の平均値である。

$$[N/mm^2] = 3 \times L \times F / (2 \times W \times T^2)$$

【0110】

<フェライト焼結磁石の断面の観察>

得られた異方性焼結フェライト磁石のC軸に平行な断面(すなわちa面)を、STEM(走査透過電子顕微鏡)で観察し、10000倍に拡大したHAADF-STEM像から、76µm²の範囲における1µm以下の主相粒子の個数Qを算出した。

また、上記の断面のSTEM-EDX(走査透過電子顕微鏡に付属のエネルギー分散型X線分析装置)で観察し、10000倍で元素マッピングして得られた画像データの二値化処理により主相と粒界相とを分離し、76µm²の範囲において、粒界多重点の大きさと個数N、P、及び、粒界相の面積の割合Zを算出した。

さらに、上記の断面をTEM(透過電子顕微鏡)で観察し、200万倍~300万倍に拡大したHAADF-STEM像から、2粒子粒界の平均厚みdを測定した。

10

20

30

40

50

【表 1】

表 1	酸化物換算フェライト焼結磁石組成														合計
	Fe ₂ O ₃ 質量%	SrO 質量%	BaO 質量%	Al ₂ O ₃ 質量%	SiO ₂ 質量%	CaO 質量%	MnO 質量%	ZnO 質量%	Cr ₂ O ₃ 質量%	Na ₂ O 質量%	B ₂ O ₃ 質量%				
実施例1	89.038	9.245	0.080	0.075	0.295	0.548	0.349	0.282	0.082	0.000	0.006	100			
実施例2	88.916	9.373	0.074	0.075	0.294	0.540	0.349	0.282	0.082	0.000	0.015	100			
実施例3	88.955	9.321	0.083	0.061	0.293	0.552	0.349	0.272	0.084	0.000	0.030	100			
実施例4	88.943	9.320	0.062	0.072	0.294	0.528	0.349	0.282	0.082	0.000	0.068	100			
実施例5	88.877	9.284	0.084	0.061	0.301	0.552	0.348	0.273	0.079	0.000	0.141	100			
実施例6	88.476	9.276	0.083	0.060	0.301	0.535	0.347	0.280	0.082	0.000	0.560	100			
比較例1	88.966	9.327	0.078	0.063	0.295	0.557	0.350	0.272	0.092	0.000	0.000	100			
実施例7	88.898	9.415	0.085	0.062	0.303	0.542	0.250	0.281	0.096	0.000	0.068	100			
実施例8	87.793	9.290	0.084	0.060	0.299	0.523	1.486	0.280	0.093	0.000	0.067	100			
実施例9	88.991	9.325	0.062	0.072	0.295	0.526	0.349	0.282	0.030	0.000	0.068	100			
実施例10	88.893	9.231	0.081	0.061	0.306	0.534	0.349	0.278	0.200	0.000	0.067	100			
実施例11	89.013	9.379	0.084	0.059	0.301	0.540	0.349	0.103	0.104	0.000	0.068	100			
実施例12	88.754	9.249	0.081	0.061	0.305	0.550	0.349	0.479	0.105	0.000	0.067	100			
実施例13	89.171	9.246	0.080	0.075	0.080	0.554	0.352	0.278	0.096	0.000	0.068	100			
実施例14	88.275	9.266	0.082	0.061	0.973	0.534	0.348	0.287	0.107	0.000	0.067	100			
実施例15	89.135	9.436	0.088	0.063	0.304	0.170	0.352	0.287	0.097	0.000	0.068	100			
実施例16	88.059	9.316	0.084	0.060	0.300	1.390	0.349	0.281	0.094	0.000	0.067	100			

【 0 1 1 1 】

10

20

30

40

50

【 表 2 】

表2	フェライト焼結磁石の組織構造						磁気特性			強度 σ N/mm ²
	N 個	P 個	Z %	d nm	Q 個	Br mT	HcJ kA/m	Hk/HcJ %		
実施例1	6	21	2.87	0.701	38	446.2	260	85.5	176	
実施例2	2	40	3.01	0.720	50	445.8	284.8	89.3	180	
実施例3	3	57	3.31	0.740	68	450.2	281.9	91.7	185	
実施例4	2	55	3.29	0.739	64	453.1	285	93.3	189	
実施例5	2	51	3.36	0.770	72	450.7	288.3	91.1	188	
実施例6	2	53	3.41	0.798	69	440.1	295.2	90.5	186	
比較例1	8	7	2.51	0.683	26	447.2	180.9	76.7	145	
実施例7	2	56	3.32	0.718	69	452.2	280.1	91.2	174	
実施例8	3	49	3.30	0.718	68	450.1	289.5	90.1	188	
実施例9	2	53	3.29	0.768	58	453.1	285	93.3	172	
実施例10	3	61	3.27	0.759	61	450.3	288.7	90.3	185	
実施例11	3	60	3.4	0.748	84	445.3	301.2	92.2	181	
実施例12	2	48	3.59	0.823	47	451.8	271.4	89.7	189	
実施例13	2	29	3.02	0.702	48	452.4	260.1	85.1	177	
実施例14	3	59	3.61	0.817	92	420.2	298.6	95.1	175	
実施例15	4	44	3.31	0.744	76	440.1	264.2	92.9	172	
実施例16	2	46	3.46	0.786	31	452.8	263.3	86.3	182	

【 0 1 1 2 】

表1及び表2に示す通り、実施例のフェライト焼結磁石は、残留磁束密度（Br）が420mT以上であった。また、保磁力（HcJ）も260kA/m以上となり、角型比（Hk/HcJ）も85%以上となった。また、強度も172N/mm²以上を示した。すなわち、本発明のフェライト焼結磁石は、Nが6個以下であることで、優れた磁気特性と強度を発揮することが確認された。

【 符号の説明 】

【 0 1 1 3 】

4...M型フェライト粒子（主相）、6...粒界相、6a...2粒子粒界、6b...多粒子粒界、100...フェライト焼結磁石又はボンド磁石。

10

20

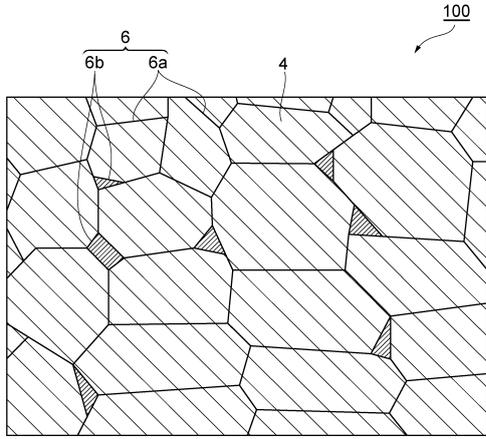
30

40

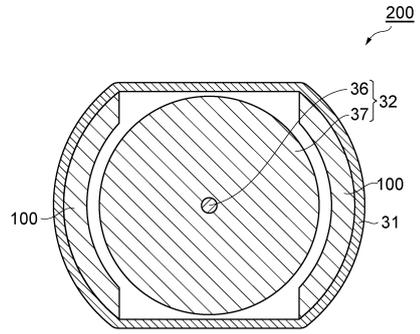
50

【図面】

【図 1】



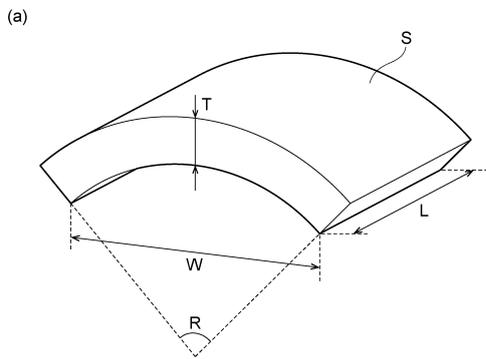
【図 2】



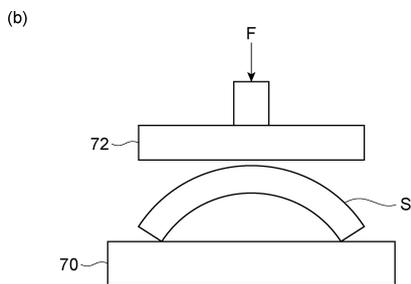
10

20

【図 3】



30



40

50

フロントページの続き

- (72)発明者 森田 啓之
東京都中央区日本橋二丁目5番1号 TDK株式会社内
- (72)発明者 池田 真規
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 井上 健一
- (56)参考文献 国際公開第2012/090935(WO, A1)
国際公開第2014/021149(WO, A1)
国際公開第2014/050433(WO, A1)
国際公開第2011/001831(WO, A1)
特開2017-005004(JP, A)
特開2015-181147(JP, A)
特開2017-126719(JP, A)
国際公開第2018/216594(WO, A1)
- (58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)
- | | |
|------|---------|
| H01F | 1 / 10 |
| H01F | 41 / 02 |
| C04B | 35 / 26 |
| H01F | 1 / 11 |