

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2014年10月30日(30.10.2014)



(10) 国際公開番号
WO 2014/174876 A1

- (51) 国際特許分類:
H01F 1/11 (2006.01) *H01F 41/02* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2014/053345
- (22) 国際出願日: 2014年2月13日(13.02.2014)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2013-090501 2013年4月23日(23.04.2013) JP
- (71) 出願人: TDK株式会社(TDK CORPORATION)
[JP/JP]; 〒1080023 東京都港区芝浦三丁目9番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 田口 仁(TAGUCHI Hitoshi); 〒1080023 東京都港区芝浦三丁目9番1号 TDK株式会社内 Tokyo (JP). 皆地 良彦(MINACHI Yoshihiko); 〒1080023 東京都港区芝浦三丁目9番1号 TDK株式会社内 Tokyo (JP). 王子 直人(OJI Naoto); 〒1080023 東京都港区芝浦三丁目9番1号 TDK株式会社内 Tokyo (JP). 和田 洪徳(WADA Hironori); 〒1080023 東京都港区芝浦三丁目9番1号 TDK株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 長谷川 芳樹, 外(HASEGAWA Yoshiki et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内二丁目1番1号丸の内 MY PLAZA (明治安田生命ビル) 9階 創英国際特許法律事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第21条(3))



WO 2014/174876 A1

(54) Title: MANUFACTURING METHOD FOR SR-FERRITE SINTERED MAGNET, AS WELL AS MOTOR AND ELECTRIC-AL POWER GENERATOR PROVIDED WITH SR-FERRITE SINTERED MAGNET

(54) 発明の名称: Srフェライト焼結磁石の製造方法、並びにSrフェライト焼結磁石を備えるモータ及び発電機

(57) Abstract: Disclosed is a manufacturing method for a Sr-ferrite sintered magnet in which: in a pulverizing step, a powder of an alkali metal compound having elements from K and/or Na as constituent elements and a powder of a compound having Si as a constituent element are added to a calcined powder; and in a sintering step, the temperature elevation rate from 800°C to sintering temperature is set to be 0.5 to 3.0°C/minute.

(57) 要約: 粉碎工程において、仮焼粉末に、構成元素としてK及びNaの少なくとも一方の元素を有するアルカリ金属化合物の粉末、並びに構成元素としてSiを有する化合物の粉末を添加し、焼成工程において、800°Cから焼成温度までの昇温速度を0.5~3.0°C/分とする、Srフェライト焼結磁石の製造方法が開示される。

明 細 書

発明の名称：

S rフェライト焼結磁石の製造方法、並びにS rフェライト焼結磁石を備えるモータ及び発電機

技術分野

[0001] 本発明はS rフェライト焼結磁石の製造方法、並びに当該製造方法によって得られるS rフェライト焼結磁石を備えるモータ及び発電機に関する。

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B aフェライト、S rフェライト及びC aフェライトが知られている。近年、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S rフェライトが採用されている。M型フェライトは例えば $AFe_{12}O_{19}$ の一般式で表される。S rフェライトは、結晶構造のAサイトにS rを有する。

[0003] S rフェライト焼結磁石の磁気特性を改善するために、Aサイトの元素及びBサイトの元素の一部を、それぞれL a等の希土類元素及びC oで置換することによって、磁気特性を改善することが試みられている。例えば、特許文献1では、Aサイト及びBサイトの一部を特定量の希土類元素及びC oで置換することによって、残留磁束密度（B r）及び保磁力（H c J）を向上する技術が開示されている。

[0004] S rフェライト焼結磁石の代表的な用途としては、モータが挙げられる。モータに用いられるS rフェライト焼結磁石は、B rとH c Jの両特性に優れることが求められるものの、一般に、B rとH c Jは、トレードオフの関係にあることが知られている。このため、B r及びH c Jの両特性を一層向上することが可能な技術を確立することが求められている。

[0005] B r及びH c Jの両特性を考慮した磁気特性を示す指標として、 $B r (kG) + 1 / 3 H c J (kOe)$ の計算式が知られている（例えば、特許文献

1 参照)。この値が高いほど、モータなど高い磁気特性が求められる用途に適した Sr フェライト焼結磁石であるといえる。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特開平11-154604号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 上記特許文献1に示されるように、Sr フェライト焼結磁石を構成する主な結晶粒の組成を制御して磁気特性を改善することは有効である。しかしながら、Sr フェライト焼結磁石の主な用途であるモータや発電機は、高性能化が進んでいることから、従来よりも更に高い磁気特性を有する Sr フェライト焼結磁石が求められている。ところが、従来のように Sr フェライト焼結磁石の結晶粒の組成を制御しても、磁気特性を大きく改善することは難しい状況にある。

[0008] 本発明は上記事情に鑑みてなされたものであり、残留磁束密度 (B_r) を低下させずに、保磁力 ($H_c J$) を向上させる Sr フェライト焼結磁石の製造方法を提供することを目的とする。また、上述の製造方法によって得られる Sr フェライト焼結磁石を用いることによって、効率が高いモータ及び発電機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

[0009] 本発明者らは、Sr フェライト焼結磁石の製造方法について種々検討した。その結果、焼成工程の昇温速度を従来の昇温速度（例えば、 $5^\circ\text{C}/\text{分}$ ）よりも遅くすることによって Sr フェライト焼結磁石の磁気特性を向上できることを見出し、本発明を完成するに至った。

[0010] すなわち、本発明は、鉄化合物の粉末及びストロンチウム化合物の粉末を含む混合粉末を $800\sim 1450^\circ\text{C}$ で仮焼して、六方晶構造を有する Sr フェライトを含む仮焼体を得る仮焼工程と、前記仮焼体を粉砕して仮焼粉末を

得る粉碎工程と、前記仮焼粉末を磁場中成形して得られる成形体を焼結して Sr フェライトを含む焼結体を得る焼成工程と、を有し、前記粉碎工程において、前記仮焼粉末に、構成元素として K 及び Na の少なくとも一方の元素を有するアルカリ金属化合物の粉末、並びに Si を有する化合物の粉末を添加し、前記焼成工程において、800℃から焼成温度までの昇温速度を0.5～3.0℃/分とする、Sr フェライト焼結磁石の製造方法を提供する。

[0011] 上記 Sr フェライト焼結磁石の製造方法によれば、残留磁束密度 (B_r) を低下させずに、保磁力 ($H_c J$) を向上させる Sr フェライト焼結磁石を製造することができる。

[0012] 本発明では、焼結体の Na 及び K の合計含有量が、 Na_2O 及び K_2O にそれぞれ換算して、0.004～0.31 質量%であり、Si の含有量が、 SiO_2 換算で0.3～0.94 質量%であることが好ましい。このような焼結体とすることによって、保磁力 ($H_c J$) がより向上された Sr フェライト焼結磁石を製造することができる。

[0013] 本発明の製造方法では、仮焼工程で得られる仮焼体において、粒径0.5～2.0 μm の一次粒子が、一次粒子全体の90 質量%以上であることが好ましい。このような仮焼体を用いることによって、保磁力 ($H_c J$) が一層向上された Sr フェライト焼結磁石を製造することができる。

[0014] 本発明の製造方法で得られる Sr フェライト焼結磁石は、下記式 (1) を満たすことが好ましい。これによって、一層磁気特性に優れる Sr フェライト焼結磁石が得られる。

$$B_r + 1 / 3 H_c J \geq 5.4 \quad (1)$$

[式 (1) 中、 B_r 及び $H_c J$ は、それぞれ残留磁束密度 (kG) 及び保磁力 (kOe) を示す。]

[0015] また、本発明の製造方法で得られる Sr フェライト焼結磁石は、角型 ($H_k / H_c J$ 、 H_k : 外部磁界強度) が90%以上であることが好ましい。これによって、より一層磁気特性に優れる Sr フェライト焼結磁石が得られる。

[0016] 本発明は、上述の製造方法によって得られるS rフェライト焼結磁石を備えるモータを提供する。本発明のモータは、上述の特徴を有するS rフェライト焼結磁石を備えることから、高い効率を有する。

[0017] 本発明は、上述の製造方法によって得られるS rフェライト焼結磁石を備える発電機を提供する。本発明の発電機は、上述の特徴を有するS rフェライト焼結磁石を備えることから、高い効率を有する。

発明の効果

[0018] 本発明によれば、残留磁束密度 (B_r) を低下させずに、保磁力 ($H_c J$) を向上させるフェライト焼結磁石の製造方法を提供することができる。また、効率が高いモータ及び発電機を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0019] [図1]本発明のS rフェライト焼結磁石の好適な実施形態を模式的に示す斜視図である。

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。

[0021] 本実施形態のS rフェライト焼結磁石の製造方法を以下に説明する。本実施形態のS rフェライト焼結磁石の製造方法は、混合工程、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。

[0022] 混合工程は、仮焼用の混合粉末を調製する工程である。混合工程では、まず、出発原料を秤量して所定の割合で配合し、湿式アトライタ、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う。出発原料としては、主成分であるS rフェライトの構成元素を有する化合物の粉末を準備する。このような粉末としては、鉄化合物の粉末及びストロンチウム化合物の粉末が挙げられる。なお、混合工程では、副成分である SiO_2 、 $CaCO_3$ 等の粉末を添加してもよい。

[0023] S rフェライトの構成元素を有する化合物としては、酸化物又は焼成によ

り酸化物となる、炭酸塩、水酸化物又は硝酸塩等の化合物を用いることができる。このような化合物としては、例えば、 SrCO_3 、 $\text{La}(\text{OH})_3$ 、 Fe_2O_3 、 Co_3O_4 等が挙げられる。出発原料の平均粒径は特に限定されず、例えば $0.1 \sim 2.0 \mu\text{m}$ である。出発原料は、仮焼前の混合工程ですべてを混合する必要はなく、各化合物の一部又は全部を仮焼工程の後に添加してもよい。

[0024] 仮焼工程は、混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中で行うことができる。仮焼温度は、 $800 \sim 1450^\circ\text{C}$ であり、好ましくは $800 \sim 1300^\circ\text{C}$ である。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体における六方晶構造を有するSr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。仮焼体において、粒径 $0.5 \sim 2.0 \mu\text{m}$ の一次粒子が、一次粒子全体の90質量%以上であることが好ましく、92質量%以上であることがより好ましい。

[0025] 粉砕工程は、仮焼体を粉砕してSrフェライトを含む仮焼粉末を得る工程である。粉砕工程は、一段階で行ってもよく、粗粉砕工程と微粉砕工程の二段階に分けて行ってもよい。仮焼体は、通常顆粒状又は塊状であるため、まずは粗粉砕工程を行うことが好ましい。粗粉砕工程では、振動ロッドミル等を使用して乾式で粉砕を行って、平均粒径 $0.5 \sim 5.0 \mu\text{m}$ の粉砕粉を調製する。このようにして調製した粉砕粉を、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砕して、平均粒径が $0.08 \sim 2.0 \mu\text{m}$ 、好ましくは $0.1 \sim 1.0 \mu\text{m}$ 、より好ましくは $0.2 \sim 0.8 \mu\text{m}$ の仮焼粉末（微粉末）を得る。

[0026] 仮焼粉末の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。粉砕時間は、例えば湿式アトライタを用いる場合、30分間～10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、粉砕方法によって適宜調整することが好まし

い。

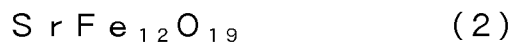
- [0027] 粉碎工程では、仮焼粉末に、構成元素としてK及びNaの少なくとも一方の元素を有するアルカリ金属化合物、並びに構成元素としてSiを有する化合物を添加する。ここで、アルカリ金属化合物としては、 Na_2CO_3 、 K_2CO_3 等が挙げられ、Siを有する化合物としては、 SiO_2 等が挙げられる。仮焼粉末には、アルカリ金属化合物及びSiを有する化合物とともに、 CaCO_3 、 SrCO_3 、 BaCO_3 等の粉末を添加してもよい。Na又はKの構成元素を有するアルカリ金属化合物としては上述の炭酸塩以外に珪酸塩やNa又はKを含む有機化合物（分散剤）を用いることができる。このような副成分を添加することによって、焼結性を向上すること、及び磁気特性を向上することができる。なお、これらの副成分は、湿式で成形を行う場合にスラリーの溶媒とともに流出することがあるため、Srフェライト焼結磁石における目標の含有量よりも多めに配合することが好ましい。
- [0028] Srフェライト焼結磁石の磁氣的配向度を高めるために、上述の副成分に加えて、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0.05～5.0質量%、好ましくは0.1～3.0質量%、より好ましくは0.3～2.0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。
- [0029] 磁場中成形工程は、粉碎工程で得られた仮焼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。
- [0030] 湿式成形用スラリー中における仮焼粉末の含有量は、好ましくは30～85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0.1～0.5トン/cm²であり、印加磁場は例えば5～15kOeである。

[0031] 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。800℃から焼成温度（最高温度）までの昇温速度は、0.5～3.0℃/分であり、好ましくは0.5～2.5℃/分である。以上の工程によって、焼結体を得ることができる。このようにして得られた焼結体を必要に応じて所定の形状に加工して、焼結体からなるSrフェライト焼結磁石を得ることができる。

[0032] 図1は、本実施形態の製造方法によって得られるSrフェライト焼結磁石の一例を模式的に示す斜視図である。Srフェライト焼結磁石10は、端面が円弧状となるように湾曲した形状を有しており、一般にアークセグメント形状、C形形状、瓦型形状、又は弓形形状と呼ばれる形状を有している。Srフェライト焼結磁石10は、例えばモータ用の磁石として好適に用いられる。

[0033] Srフェライト焼結磁石10は、主成分として、六方晶構造を有するM型のSrフェライトを含有する。主成分であるSrフェライトは、例えば以下の式(2)で表わされる。



[0034] 上式(2)のSrフェライトにおけるAサイトのSr及びBサイトのFeは、不純物又は意図的に添加された元素によって、その一部が置換されていてもよい。また、AサイトとBサイトの比率が若干ずれていてもよい。この場合、Srフェライトは、例えば以下の一般式(3)で表わすことができる。



上式(3)中、x及びyは、例えば0.1～0.5であり、zは0.7～1.2である。

[0035] 一般式(3)におけるMは、例えば、Co（コバルト）、Zn（亜鉛）、

Ni (ニッケル)、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。また、一般式(3)におけるRは、例えば、La (ランタン)、Ce (セリウム)、Pr (プラセオジウム)、Nd (ネオジウム) 及びSm (サマリウム) からなる群より選ばれる1種以上の元素である。

[0036] Srフェライト焼結磁石10におけるSrフェライトの質量比率は、好ましくは90質量%以上であり、より好ましくは95質量%以上であり、さらに好ましくは97質量%以上である。このように、Srフェライトとは異なる結晶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。

[0037] Srフェライト焼結磁石10は、副成分として、Srフェライトとは異なる成分を含有する。副成分としては、酸化物が挙げられる。酸化物としては、構成元素として、K (カリウム)、Na (ナトリウム)、Si (ケイ素)、Ca (カルシウム)、Sr (ストロンチウム) 及びBa (バリウム) から選ばれる少なくとも一種を有する酸化物並びに複合酸化物が挙げられる。酸化物としては、例えばSiO₂、K₂O、Na₂O、CaO、SrO、BaOが挙げられる。また、ケイ酸ガラスを含んでいてもよい。

[0038] Srフェライト焼結磁石10におけるNa及びKの合計含有量は、Na₂O及びK₂Oにそれぞれ換算して0.004~0.31質量%であることが好ましい。Na及びKの合計含有量の下限は、Na₂O及びK₂Oにそれぞれ換算して、より好ましくは0.01質量%であり、さらに好ましくは0.02質量%であり、特に好ましくは0.03質量%である。Na及びKの合計含有量が低くなり過ぎると、焼成温度を低減することができず、結晶粒が粒成長して十分に高い磁気特性を得ることが困難になる傾向にある。

[0039] Na及びKの合計含有量の上限は、Na₂O及びK₂Oにそれぞれ換算して、より好ましくは0.2質量%であり、さらに好ましくは0.15質量%であり、特に好ましくは0.1質量%である。Na及びKの合計含有量が高くなり過ぎると、Srフェライト焼結磁石10の表面に白色の粉体が生じ易く

なる傾向にある。Srフェライト焼結磁石10の表面に粉体が生じると、例えばモータ部材とSrフェライト焼結磁石10との接着力が低下して、Srフェライト焼結磁石10がモータ部材から剥離する可能性がある。

[0040] Srフェライト焼結磁石10におけるSiの含有量は、SiO₂換算で0.3~0.94質量%であることが好ましい。Siの含有量の下限は、SiO₂換算でより好ましくは0.4質量%であり、さらに好ましくは0.45質量%である。Siの含有量が低くなり過ぎると、焼結体が十分に緻密化せずに優れた磁気特性が損なわれる傾向にある。Siの含有量の上限は、SiO₂換算で、より好ましくは0.9質量%であり、さらに好ましくは0.8質量%である。Siの含有量が高くなり過ぎると、十分に優れた磁気特性が損なわれる傾向にある。

[0041] Srフェライト焼結磁石10におけるSrの含有量は、磁気特性を一層向上する観点から、SrO換算で好ましくは10~13質量%であり、より好ましくは10.3~11.9質量%である。また、Srフェライト焼結磁石10におけるBaの含有量は、同様の観点からBaO換算で好ましくは0.01~2.0質量%であり、より好ましくは0.01~0.2質量%である。

[0042] Srフェライト焼結磁石10におけるCaの含有量は、磁気特性を一層向上する観点から、CaO換算で好ましくは0.05~2質量%であり、より好ましくは0.1~1.5質量%である。また、Srフェライト焼結磁石10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、Ti（チタン）、Cr（クロム）、Mn（マンガン）、Mo（モリブデン）、V（バナジウム）、Al（アルミニウム）等の各酸化物が挙げられる。

[0043] 副成分は、主に、Srフェライト焼結磁石10におけるSrフェライトの結晶粒の粒界に含まれる。副成分に含まれる各元素の比率が変わると、粒界の組成が変化し、その結果Srフェライト焼結磁石10の磁気特性に影響を及ぼす場合がある。本実施形態の製造方法によって得られるSrフェライト

焼結磁石10は、副成分に含まれる特定の元素の比率を所定の範囲に調整することによって、優れた磁気特性を有する。なお、Srフェライト焼結磁石10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。

[0044] Srフェライト焼結磁石10は、磁気特性及び信頼性を一層向上させる観点から、下記式（4）を満たすことが好ましい。

$$1. 3 \leq (S r_F + B a + C a + 2 N a + 2 K) / S i \leq 5. 7 \quad (4)$$

[0045] 上式（4）中、 $S r_F$ は、Srフェライトを構成するSrを除いたSrのモル基準の含有量を示し、Ba、Ca、Na及びKは、それぞれの元素のモル基準の含有量を示す。 $S r_F$ は、Srフェライト焼結磁石10の製造過程において、Fe源に対するSr源の割合を、Srフェライトの量論比 $[S r F e_{12} O_{19}$ 又は $R_x S r_{1-x} (F e_{12-y} M_y)_z O_{19}]$ よりも多くした場合に生じる。Srの含有量がSrフェライトの量論比 $[S r F e_{12} O_{19}$ 又は $R_x S r_{1-x} (F e_{12-y} M_y)_z O_{19}]$ よりも少ない場合は、 $S r_F$ は0未満の数値、すなわちマイナスの数値となる。この場合も上記式（4）を満足することが好ましい。

[0046] Srフェライト焼結磁石10の粒界には、副成分として挙げた元素を構成元素とするケイ酸ガラスが生成していると考えられる。Srフェライト焼結磁石10は、上記式（4）を満足することによって、800℃から焼成温度（最高温度）まで0.5～3.0℃/分、好ましくは0.5～2.5℃/分の昇温速度で昇温した場合に粒界の組成が安定化し、高い磁気特性を得ることができる。

[0047] Srフェライト焼結磁石10におけるSrフェライトの結晶粒の平均粒径は、好ましくは2.0μm以下であり、より好ましくは1.0μm以下であり、さらに好ましくは0.3～1.0μmである。Srフェライトの結晶粒の平均粒径が2.0μmを超えると、十分に優れた磁気特性を得ることが困難になる傾向にある。一方、Srフェライトの結晶粒の平均粒径が0.3μm未満のSrフェライト焼結磁石10は、製造することが困難となる傾向に

ある。

[0048] Srフェライト焼結磁石10のSrフェライトの結晶粒の平均粒径は以下の手順で測定することができる。Srフェライト焼結磁石10の断面を、鏡面研磨してフッ酸等の酸でエッチング処理する。そして、エッチング面をSEMなどで観察する。数百個の結晶粒を含む観察画像において、結晶粒の輪郭を明確化したのち、画像処理などを行って、c面の粒径分布を測定する。本明細書における「粒径」は、a面における長径（a軸方向の径）をいう。この長径は、各結晶粒に外接する「面積が最小となる長方形」の長辺として求められる。また、「面積が最小となる長方形」の短辺に対する長辺の比が「アスペクト比」である。なお、酸によるエッチングに代えて、試料を加熱してエッチングする、いわゆるサーマルエッチングを行ってもよい。

[0049] 測定した個数基準の粒径分布から、結晶粒の粒径の個数基準の平均値を算出する。また、測定した粒径分布と平均値から標準偏差を算出する。本明細書では、これらをSrフェライトの結晶粒の平均粒径及び標準偏差とする。Srフェライト焼結磁石10において、Srフェライトの結晶粒全体に対する該結晶粒の粒径が2.0 μ m以上である結晶粒の個数基準の割合は1%以下であることが好ましく、0.9%以下であることがより好ましい。これによって、十分に高い磁気特性を有するフェライト焼結磁石とすることができる。同様の観点から、各結晶粒のアスペクト比の個数平均値（平均アスペクト比）は、約1.0であることが好ましい。

[0050] Srフェライト焼結磁石10は、下記式（1）を満足することが好ましい。Srフェライト焼結磁石10は、Srフェライトの結晶粒が十分に微細であるうえに、特定の組成を有するものであることから、式（1）を満足するような高い磁気特性を有する。この式（2）を満足するSrフェライト焼結磁石10は、十分に優れた磁気特性を有する。このようなSrフェライト焼結磁石10によって、一層高い効率を有するモータを提供することができる。

$$B r + 1 / 3 H c J \geq 5. 4 \quad (1)$$

式(1)中、 B_r 及び $H_c J$ は、それぞれ残留磁束密度(kG)及び保磁力(kOe)を示す。

[0051] Srフェライト焼結磁石10の角型は好ましくは90%以上であり、より好ましくは95%以上である。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。

[0052] Srフェライト焼結磁石10は、例えば、フェューエルポンプ用、パワーウィンドウ用、ABS(アンチロック・ブレーキ・システム)用、ファン用、ワイパ用、パワーステアリング用、アクティブサスペンション用、スタータ用、ドアロック用、電動ミラー用等の自動車用モータの磁石として使用することができる。また、FDDスピンドル用、VTRキャプスタン用、VTR回転ヘッド用、VTRリール用、VTRローディング用、VTRカメラキャプスタン用、VTRカメラ回転ヘッド用、VTRカメラズーム用、VTRカメラフォーカス用、ラジカセ等キャプスタン用、CD/DVD/MDスピンドル用、CD/DVD/MDローディング用、CD/DVD光ピックアップ用等のOA/AV機器用モータの磁石として使用することができる。さらに、エアコンコンプレッサー用、冷凍庫コンプレッサー用、電動工具駆動用、ドライヤーファン用、シェーバー駆動用、電動歯ブラシ用等の家電機器用モータの磁石としても使用することができる。さらにまた、ロボット軸、関節駆動用、ロボット主駆動用、工作機器テーブル駆動用、工作機器ベルト駆動用等のFA機器用モータの磁石としても使用することが可能である。

[0053] Srフェライト焼結磁石10は、上述のモータの部材に接着してモータ内に設置されてもよい。このようなモータは、優れた磁気特性を有するSrフェライト焼結磁石10を備えるため、高い効率を有する。また、Srフェライト焼結磁石10は、発電機の部材に接着して発電機内に設置されてもよい。このような発電機は、優れた磁気特性を有するSrフェライト焼結磁石10を備えるため、高い効率を有する。

[0054] Srフェライト焼結磁石10の用途は、モータ及び発電機に限定されるものではなく、例えば、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部材として用いることもできる。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。

[0055] 以上、本発明の好適な実施形態を説明したが、本発明のSrフェライト焼結磁石の製造方法、並びにモータ及び発電機は、上述のものに限定されない。例えば、Srフェライト焼結磁石の形状は、図1の形状に限定されず、上述の各用途に適した形状に適宜変更することができる。

実施例

[0056] 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。

[0057] [実施例1～9、比較例1～9]

(Sr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： $2\ \mu\text{m}$ ）
- ・ SiO_2 粉末（一次粒子径： $0.01\ \mu\text{m}$ ）
- ・ CaCO_3 粉末
- ・ Na_2CO_3 粉末
- ・ K_2CO_3 粉末

[0058] Fe_2O_3 粉末1000g、 SrCO_3 粉末161.2g、及び SiO_2 粉末2.3g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、表1に示す仮焼温度で3時間焼成し、顆粒状の仮焼体を得た。仮焼体中における粒径 $0.5\sim 2.0\ \mu\text{m}$ の一次粒子の質量比率を表1に示す。なお、一次粒子径は、100個の粒子について走査型電子顕微鏡により測定した。次いで、乾式振動ロッドミルを用いて、この仮焼体を粗粉碎して、BET法による比表面積が $1\ \text{m}^2/\text{g}$

の仮焼粉末を調製した。

[0059] 粗粉碎した仮焼粉末130gに、ソルビトール、 SiO_2 粉末及び CaCO_3 粉末を所定量添加し、ボールミルを用いて湿式粉碎を21時間行って、仮焼粉末を含むスラリーを得た。ソルビトールの添加量は、仮焼粉末の質量を基準として、1質量%とした。湿式粉碎後の仮焼粉末の比表面積は $6\sim 8\text{ m}^2/\text{g}$ であった。湿式粉碎終了後のスラリーに対して Na_2CO_3 粉末及び K_2CO_3 粉末を所定量添加して攪拌した。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12kOeの印加磁場中で成形を行って成形体を得た。これらの成形体を、大気中で、 800°C から表1に示す焼成温度まで、表1に示す昇温速度で昇温して焼成し、実施例1～9及び比較例1～9のSrフェライト焼結磁石を得た。

[0060] (Srフェライト焼結磁石の評価)

<磁気特性の評価>

作製した各実施例及び各比較例の円柱形状のSr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、 B_r 、 bH_c 、 H_cJ 、 $(BH)_{\text{max}}$ 及び $B_r + 1/3H_cJ$ を求めるとともに、 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 H_k/H_cJ (%)を求めた。表1にその結果を示す。

[0061]

[表1]

仮焼温度 °C	0.5-2.0 μm の粒子比率 質量%	焼成温度 °C	昇温速度 °C/分	磁気特性						
				Br G	bHc Oe	HcJ Oe	(BH) _{max} MGOe	Hk/HcJ %	Br+1/3HcJ	
1250	92	1200	0.05	4127	3705	3847	4.07	96.0	5.41	比較例1
			0.5	4125	3806	3952	4.11	95.9	5.44	実施例1
			1.0	4128	3816	3962	4.09	96.3	5.45	実施例2
			3.0	4126	3806	3952	4.12	95.8	5.44	実施例3
			5.0	4125	3695	3836	4.10	95.1	5.40	比較例2
			10	4126	3654	3794	4.08	95.4	5.39	比較例3
1290	84	1200	0.05	4123	3301	3427	4.14	96.0	5.27	比較例4
			0.5	4126	3315	3438	4.12	96.1	5.27	実施例4
			1.0	4127	3321	3448	4.12	96.2	5.28	実施例5
			3.0	4129	3319	3440	4.09	95.8	5.28	実施例6
			5.0	4124	3311	3433	4.10	95.5	5.27	比較例5
			10	4125	3301	3427	4.08	95.9	5.27	比較例6
1250	93	1220	0.05	4165	3533	3669	4.11	95.2	5.39	比較例7
			0.5	4164	3695	3836	4.90	95.5	5.44	実施例7
			1.0	4166	3705	3847	4.12	96.0	5.45	実施例8
			3.0	4162	3695	3836	4.09	95.8	5.44	実施例9
			5.0	4163	3594	3732	4.08	96.0	5.41	比較例8
			10	4165	3563	3700	4.10	95.9	5.40	比較例9

[0062] 表1に示すとおり、焼成工程における昇温速度を0.5~3.0°C/分とすることにより、仮焼温度及び焼成温度によらず、保磁力(HcJ)が臨界的に向上することが分かる。また、仮焼体中において、粒径0.5~2.0 μmの一次粒子の比率を90質量%以上とすることにより、焼成温度が同じであっても、保磁力(HcJ)が向上することが分かる。

[0063] <組成の評価>

各実施例及び各比較例のSrフェライト焼結磁石の組成を誘導結合プラズマ発光分光分析(ICP分析)及び蛍光X線分析によって測定した。フェライト焼結磁石は、Fe、Sr、Si、Caの他に、出発原料に含まれる不純物に由来する元素(Ba等)が検出された。各実施例及び各比較例のSrフェライト焼結磁石のNa及びKの合計含有量は、Na₂O及びK₂Oにそれぞれ換算して、0.004~0.31質量%の範囲内であった。また、Siの含有量は、SiO₂換算で0.3~0.94質量%であり、上記式(4)で算出されるSr_F+Ba+Ca+2Na+2Kの値は1.3~5.7の範囲内であった。

産業上の利用可能性

[0064] 本発明によれば、残留磁束密度 (B_r) を低下させずに、保磁力 ($H_c J$) を向上させるフェライト焼結磁石の製造方法を提供することができる。また、効率が高いモータ及び発電機を提供することができる。

符号の説明

[0065] 10...Srフェライト焼結磁石。

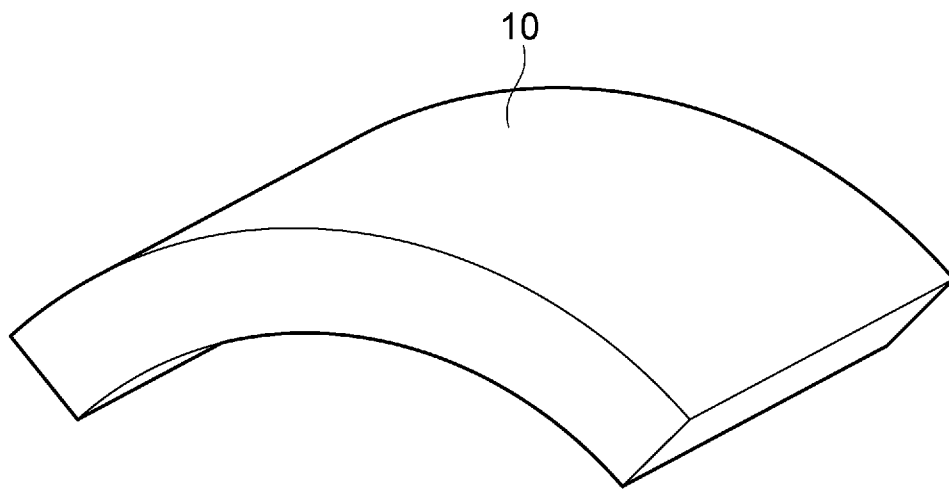
請求の範囲

- [請求項1] 鉄化合物の粉末及びストロンチウム化合物の粉末を含む混合粉末を800～1450℃で仮焼して、六方晶構造を有するSrフェライトを含む仮焼体を得る仮焼工程と、
前記仮焼体を粉砕して仮焼粉末を得る粉砕工程と、
前記仮焼粉末を磁場中成形して得られる成形体を焼結してSrフェライトを含む焼結体を得る焼成工程と、を有し、
前記粉砕工程において、前記仮焼粉末に、構成元素としてK及びNaの少なくとも一方の元素を有するアルカリ金属化合物の粉末、並びに構成元素としてSiを有する化合物の粉末を添加し、
前記焼成工程において、800℃から焼成温度までの昇温速度を0.5～3.0℃/分とする、Srフェライト焼結磁石の製造方法。
- [請求項2] 前記焼結体のNa及びKの合計含有量が、Na₂O及びK₂Oにそれぞれ換算して、0.004～0.31質量%であり、Siの含有量が、SiO₂換算で0.3～0.94質量%である、請求項1に記載のSrフェライト焼結磁石の製造方法。
- [請求項3] 前記仮焼体において、粒径0.5～2.0μmの一次粒子が、一次粒子全体の90質量%以上である、請求項1又は2に記載のSrフェライト焼結磁石の製造方法。
- [請求項4] 下記式(1)を満たす、請求項1～3のいずれか一項に記載のSrフェライト焼結磁石の製造方法。
$$Br + 1 / 3 Hc J \geq 5.4 \quad (1)$$

[式(1)中、Br及びHcJは、それぞれ残留磁束密度(kG)及び保磁力(kOe)を示す。]
- [請求項5] 角型が90%以上である、請求項1～4のいずれか一項に記載のSrフェライト焼結磁石の製造方法。
- [請求項6] 請求項1～5のいずれか一項に記載の製造方法で得られるSrフェライト焼結磁石を備えるモータ。

[請求項7] 請求項1～5のいずれか一項に記載の製造方法で得られるS rフェライト焼結磁石を備える発電機。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2014/053345

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
H01F1/11(2006.01)i, H01F41/02(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
H01F1/11, H01F41/02

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2014
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2014	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2014

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2001-223104 A (TDK Corp.), 17 August 2001 (17.08.2001), claims 1 to 3; paragraphs [0024], [0028], [0042] to [0050] (Family: none)	1-7
A	JP 2003-297623 A (TDK Corp.), 17 October 2003 (17.10.2003), entire text; all drawings (Family: none)	1-7

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 08 May, 2014 (08.05.14)	Date of mailing of the international search report 20 May, 2014 (20.05.14)
--	---

Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） Int.Cl. H01F1/11(2006.01)i, H01F41/02(2006.01)i										
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） Int.Cl. H01F1/11, H01F41/02										
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2014年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2014年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2014年</td> </tr> </table>			日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2014年	日本国実用新案登録公報	1996-2014年	日本国登録実用新案公報	1994-2014年
日本国実用新案公報	1922-1996年									
日本国公開実用新案公報	1971-2014年									
日本国実用新案登録公報	1996-2014年									
日本国登録実用新案公報	1994-2014年									
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）										
C. 関連すると認められる文献										
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号								
X	JP 2001-223104 A（ディーディーケイ株式会社）2001.08.17, 請求項1-3,段落【0024】 , 【0028】 , 【0042】 - 【0050】 （ファミリーなし）	1-7								
A	JP 2003-297623 A（TDK株式会社）2003.10.17, 全文,全図（ファミリーなし）	1-7								
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。										
* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願		の日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」同一パテントファミリー文献								
国際調査を完了した日 08.05.2014	国際調査報告の発送日 20.05.2014									
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ISA/J P） 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官（権限のある職員） 小池 秀介 電話番号 03-3581-1101 内線 3551	5D 3662								