(19)日本国特許庁(JP)　(12)特 許 公 報(B2)　(11)特許番号
特許第4240988号
(P4240988)
(45)発行日 平成21年3月18日(2009.3.18)　(24)登録日 平成21年1月9日(2009.1.9)

(51)Int.Cl.			F I		
B22F	1/00	(2006.01)	B22F	1/00	B
B01J	2/16	(2006.01)	B01J	2/16	
H01F	1/053	(2006.01)	H01F	1/04	H
H01F	1/08	(2006.01)	H01F	1/08	B

請求項の数 16　(全 19 頁)

(21)出願番号 特願2002-298621(P2002-298621)
(22)出願日 平成14年10月11日(2002.10.11)
(65)公開番号 特開2004-131815(P2004-131815A)
(43)公開日 平成16年4月30日(2004.4.30)
審査請求日 平成17年9月12日(2005.9.12)

(73)特許権者 000005083
日立金属株式会社
東京都港区芝浦一丁目２番１号
(74)代理人 100101683
弁理士 奥田 誠司
(72)発明者 國吉 太
大阪府三島郡島本町江川２丁目１５番１７号 住友特殊金属株式会社 山崎製作所内
(72)発明者 大谷 智郁
大阪府三島郡島本町江川２丁目１５番１７号 住友特殊金属株式会社 山崎製作所内

審査官 鈴木 毅

最終頁に続く

(54)【発明の名称】希土類合金の造粒粉の製造方法、希土類合金の造粒粉の製造装置および希土類合金焼結体の製造方法

(57)【特許請求の範囲】
【請求項１】
（ａ）残留磁化を有する希土類合金の粉末を通気性を有する台板上に載置された状態で槽内に用意する工程と、
（ｂ）前記台板の下から上に流れる第１ガス流を前記槽内に生成する工程と、
（ｃ）前記第１ガス流によって前記粉末の粒子に運動エネルギーを与え、前記粉末の残留磁化による凝集力と、前記運動エネルギーによる転動作用とを利用して、外部から磁界を印加することなく、造粒する工程と、
（ｄ）前記台板に対して上から下に向けた第２ガス流を前記槽内に生成する工程と、
（ｅ）　前記粉末からなる粉末層を前記台板上に形成し、前記第２流気によって前記粉末層を圧縮する工程と、
を包含し、
工程（ｄ）の少なくとも一部と工程（ｂ）の少なくとも一部とを同時に実行する、希土類合金の造粒粉の製造方法。
【請求項２】
工程（ｄ）と工程（ｂ）とを同時に実行する期間は、前記第１ガス流の流量を減少させながら前記第２ガス流の流量を増加させる期間を含む、請求項１に記載の造粒粉の製造方法。
【請求項３】
工程（ａ）は、残留磁化を有しない希土類合金の粉末を前記槽内に配置する工程と、前

記槽内に配置された残留磁化を有しない前記粉末に磁界を印加することによって残留磁化を付与する工程とを包含する、請求項１または２に記載の造粒粉の製造方法。
【請求項４】
工程（ａ）は、残留磁化を有する希土類合金の粉末を予め用意する工程と、残留磁化を有する前記粉末を前記槽内に配置する工程とを包含する、請求項１または２に記載の希土類合金の造粒粉の製造方法。
【請求項５】
工程（ｂ）、工程（ｃ）、工程（ｄ）および工程（ｅ）がこの順序で複数回繰り返される、請求項１から４のいずれかに記載の造粒粉の製造方法。
【請求項６】
前記繰り返しの間に、少なくとも１回の工程（ｅ）の後に、
（ｆ）　前記第２ガス流を生成している状態で前記第１ガス流を一旦停止し、その後、前記第２ガス流を停止した状態で、工程（ｃ）における前記第１ガス流の平均流量を超える流量の前記第１ガス流を生成させせることによって、前記台板上に形成された前記粉末層を解砕する工程、
を包含する請求項５に記載の造粒粉の製造方法。
【請求項７】
前記希土類合金は、Ｒ－Ｆｅ－Ｂ系合金である、請求項１から６のいずれかに記載の希土類合金の造粒粉の製造方法。
【請求項８】
前記粉末の平均粒径が１．５μｍ以上６μｍ以下の範囲内にある請求項１から７のいずれかに記載の希土類合金の造粒粉の製造方法。
【請求項９】
平均粒径が０．０５ｍｍ以上３．０ｍｍ以下の範囲内にある造粒粉が製造される、請求項１から８のいずれかに記載の希土類合金の造粒粉の製造方法。
【請求項１０】
請求項１から９のいずれかに記載の希土類合金の造粒粉の製造方法を用いて造粒粉を製造する工程と、
前記造粒粉に脱磁磁界を印加することなく、前記造粒粉を含む希土類合金の粉末をキャビティに充填する工程と、
前記造粒粉を含む希土類合金の粉末に配向磁界を印加した状態でプレス成形することによって成形体を形成する工程と、
前記成形体を焼結する工程と、
を包含する、希土類合金焼結体の製造方法。
【請求項１１】
希土類合金の粉末を受容する台板が設けられた槽と、
前記槽に接続され、前記台板の下から上に流れる第１ガス流を前記槽内に生成することができる第１流路と、
前記槽に接続され、前記台板の上から下に流れる第２ガス流を前記槽内に生成することができる第２流路と、
を有し、
前記第１流路と前記第２流路とは、前記槽に対して互いに独立に接続されている、希土類合金の造粒粉の製造装置。
【請求項１２】
前記第１流路内に調温装置および送風装置を更に備えている、請求項<u>１１</u>に記載の製造装置。
【請求項１３】
前記第２流路内にバッファタンクを更に備えている、請求項１１または１２に記載の製造装置。
【請求項１４】

前記槽内のガスの温度を検出する温度計を有し、検出された温度が所定の温度を超えると少なくとも前記送風装置の動作を停止させる制御回路を備える、請求項１１から１３のいずれかに記載の製造装置。

【請求項１５】

動作中に前記槽内が正圧に維持される、請求項１１から１４のいずれかに記載の製造装置。

【請求項１６】

前記台板上に載置された前記粉末に磁界を印加することができる磁界発生手段を更に備えている、請求項１１から１５のいずれかに記載の製造装置。

【発明の詳細な説明】

【０００１】

【発明の属する技術分野】

本発明は、希土類合金の造粒粉の製造方法、希土類合金の造粒粉の製造装置および希土類合金焼結体の製造方法に関する。

【０００２】

【従来の技術】

希土類合金の焼結磁石（永久磁石）は、一般に、希土類合金の粉末をプレス成形し、得られた粉末の成形体を焼結し、時効処理することによって製造される。現在、希土類・コバルト系磁石と、希土類・鉄・ボロン系磁石の二種類が各分野で広く用いられている。なかでも、希土類・鉄・ボロン系磁石（以下、「Ｒ－Ｆｅ－Ｂ系磁石」と称する。ＲはＹを含む希土類元素、Ｆｅは鉄、Ｂはボロンである。）は、種々の磁石の中で最も高い最大磁気エネルギー積を示し、価格も比較的安いため、各種電子機器へ積極的に採用されている。

【０００３】

Ｒ－Ｆｅ－Ｂ系焼結磁石は、主に$Ｒ_{2}Ｆｅ_{14}Ｂ$の正方晶化合物からなる主相、Ｎｄ等からなるＲリッチ相、およびＢリッチ相から構成されている。なお、Ｆｅの一部がＣｏやＮｉなどの遷移金属と置換されてもよく、ボロン（Ｂ）の一部が炭素（Ｃ）で置換されてもよい。本発明が好適に適用されるＲ－Ｆｅ－Ｂ系焼結磁石は、例えば、特許文献１および特許文献２に記載されている。

【０００４】

このような磁石となるＲ－Ｆｅ－Ｂ系合金を作製するために、従来は、インゴット鋳造法が用いられてきた。一般的なインゴット鋳造法によると、出発原料である希土類金属、電解鉄およびフェロボロン合金を高周波溶解し、得られた溶湯を鋳型内で比較的ゆっくりと冷却することによって合金インゴットが作製される。

【０００５】

近年、合金の溶湯を単ロール、双ロール、回転ディスク、または回転円筒鋳型の内面などと接触させることによって、比較的速く冷却し、合金溶湯から、インゴットよりも薄い凝固合金（「合金フレーク」と称することにする。）を作製するストリップキャスト法や遠心鋳造法に代表される急冷法が注目されている。このような急冷法によって作製された合金片の厚さは、一般に、約０．０３ｍｍ以上約１０ｍｍ以下の範囲にある。急冷法によると、合金溶湯は冷却ロールに接触した面（ロール接触面）から凝固し始め、ロール接触面から厚さ方向に結晶が柱状に成長してゆく。その結果、ストリップキャスト法などによって作製された急冷合金は、短軸方向のサイズが約０．１μｍ以上約１００μｍ以下で、長軸方向のサイズが約５μｍ以上約５００μｍ以下の$Ｒ_{2}Ｆｅ_{14}Ｂ$結晶相と、$Ｒ_{2}Ｆｅ_{14}Ｂ$結晶相の粒界に分散して存在するＲリッチ相とを含有する組織を持つにいたる。Ｒリッチ相は希土類元素Ｒの濃度が比較的高い非磁性相であり、その厚さ（粒界の幅に相当する）は約１０μｍ以下になる。

【０００６】

急冷合金は、従来のインゴット鋳造法（金型鋳造法）によって作製された合金（インゴット合金）に比較して相対的に短い時間（冷却速度：１０^{2}℃／秒以上、１０^{4}℃／秒以下）で冷却されているため、組織が微細化され、結晶粒径が小さいという特徴を有している。

また、粒界の面積が広く、Ｒリッチ相は粒界内に広く広がっているため、Ｒリッチ相の分散性にも優れるという利点がある。これらの特徴が故に、急冷合金を用いることによって、優れた磁気特性を有する磁石を製造することができる。

【０００７】

また、Ｃａ還元法（あるいは還元拡散法）と呼ばれる方法も知られている。この方法は以下の工程を含む。まず、希土類酸化物のうちの少なくとも１種と、鉄粉および純ボロン粉と、フェロボロン粉およびホウ素酸化物のうちの少なくとも１種とを所定の割合で含む混合粉、あるいは上記構成元素の合金粉または混合酸化物を所定の割合で含む混合粉に、金属カルシウム（Ｃａ）および塩化カルシウム（ＣａＣｌ）を混合し、不活性ガス雰囲気下で還元拡散処理を施す。得られた反応生成物をスラリー化し、これを水処理することによって、Ｒ－Ｆｅ－Ｂ系合金の固体が得られる。

【０００８】

なお、本明細書において、固体合金の塊を「合金塊」と呼び、従来のインゴット鋳造法によって得られる合金インゴットおよびストリップキャスト法などの急冷法によって得られる合金フレークなどの溶湯を冷却して得られた凝固合金だけでなく、Ｃａ還元法によって得られる固体合金など、種々の形態の固体合金を含むものとする。

【０００９】

プレス成形に供される合金粉末は、これらの合金塊を、例えば水素吸蔵法および／または種々の機械的粉砕法（例えば、ディスクミルが用いられる）で粉砕し、得られた粗粉末（例えば、平均粒径１０μｍ～５００μｍ）を例えばジェットミルを用いた乾式粉砕法で微粉砕することによって得られる。

【００１０】

プレス成形に供せられるＲ－Ｆｅ－Ｂ系合金粉末の平均粒径は、磁気特性の観点から、１．５μｍ～６μｍの範囲内にあることが好ましい。なお、粉末の「平均粒径」は、特にことわらない限り、ここでは、ＦＳＳＳ粒径を指すことにする。しかしながら、このように平均粒径が小さな粉末を用いると流動性やプレス成形性（キャビティ充填性および圧縮性を含む）が悪く、生産性が悪い。

【００１１】

この問題を解決する方法として、合金粉末粒子の表面を潤滑剤で覆うことが検討されている。例えば、特許文献３および特許文献４には、平均粒径１０μｍ～５００μｍのＲ－Ｆｅ－Ｂ系合金の粗粉末に、少なくとも１種の脂肪酸エステルを液状化した潤滑剤を、０．０２質量％～５．０質量％添加混合後、不活性ガスを用いたジェットミル粉砕を行い、Ｒ－Ｆｅ－Ｂ系合金の微粉末（例えば平均粒径１．５μｍ～５μｍ）を作製する技術が開示されている。

【００１２】

潤滑剤は、粉末の流動性や成形性（圧縮性）を改善するとともに、成形体に固さ（強度）を付与するためのバインダとして機能する一方、焼結体中に残存炭素として残留し磁気特性を低下させる原因となるので、優れた脱バインダ性が要求される。例えば、特許文献５には、脱バインダ性に優れた潤滑剤として、解重合ポリマ、解重合ポリマと炭化水素系溶剤の混合物、および解重合ポリマと低粘度鉱油と炭化水素系溶剤との混合物が開示されている。

【００１３】

しかしながら、上述した潤滑剤を用いる方法によると、ある程度の改善効果は得られるものの、キャビティ内に均一に充填することは難しく、また充分な成形性が得られない。特に、ストリップキャスト法等の急冷法（冷却速度が１０^{2}／秒～１０^{4}／秒）で作製された粉末は、インゴット法によって作製された粉末に比べて、平均粒径が小さいだけでなく粒度分布がシャープ（急峻）なので、特に流動性が悪い。そのため、キャビティに充填される粉末の量が許容範囲を超えてばらついたり、キャビティ内の充填密度が不均一になったりする。その結果、成形体の質量や寸法が許容範囲を超えてばらついたり、成形体に欠けや割れが生じることがある。

【００１４】
Ｒ－Ｆｅ－Ｂ系合金粉末の流動性および成形性を改善するための他の方法として、造粒粉を用いる試みがなされている。
【００１５】
例えば、特許文献６には、室温で液体状態のパラフィン混合物と脂肪族カルボン酸との混合物を粉末に対して０．４～４．０質量％添加し、混練後、造粒することによって得られた造粒粉を用いることによって、成形性を改善できることが開示されている。また、造粒剤としてＰＶＡ（ポリビニルアルコール）を用いる方法も知られている。なお、造粒剤も潤滑剤と同様に成形体に強度を付与するバインダとして機能する。
【００１６】
しかしながら、上記特許文献６に開示されている造粒剤を用いると、脱バインダ性が悪いため、Ｒ－Ｆｅ－Ｂ系焼結磁石の場合、焼結体中に残留する炭素によって磁気特性が低下するという問題がある。
【００１７】
また、ＰＶＡを用いてスプレードライヤ法で製造された造粒粉は、逆に、結合力が強いので、得られた造粒粉が固すぎ、外部磁界を印加しても造粒粉が完全に崩壊しない。従って、１次粒子を充分に磁界配向させることができず、その結果、優れた磁気特性を有する磁石が得られないという問題がある。ＰＶＡも脱バインダ性が悪く、ＰＶＡに由来する炭素が磁石に残存しやすい。この問題を解決するために水素雰囲気下で脱バインダ処理を行う方法もあるが、充分に炭素を除去することは難しい。
【００１８】
また、本願出願人は、造粒粉が配向磁界によって崩壊し難いという問題を解決するために、静磁界を印加した状態で造粒することによって、磁界配向した個々の粒子（１次粒子）が造粒剤で結合された造粒粉を製造する方法を提案した（特許文献７参照）。この造粒粉を用いると、磁界配向していない１次粒子を造粒剤で結合した造粒粉を用いた場合よりも、磁気特性は改善されるものの、プレス成形時に十分に磁界配向させることが困難なため、造粒していない希土類合金粉末を用いた場合よりも磁気特性が低い。
【００１９】
【特許文献１】
米国特許第４，７７０，７２３号明細書
【特許文献２】
米国特許第４，７９２，３６８号明細書
【特許文献３】
特開平０８－１１１３０８号公報
【特許文献４】
米国特許５、６６６、６３５号明細書
【特許文献５】
特開２０００－３０６７５３号公報
【特許文献６】
特開昭６３－２３７４０２号公報
【特許文献７】
特開平１０－１４０２０２号公報
【００２０】
【発明が解決しようとする課題】
上述したように、これまで種々の造粒剤や造粒方法が検討されてきたが、流動性やプレス成形性に優れ、且つ、優れた磁気特性を有する磁石を製造することが可能な希土類合金の造粒粉を工業的に生産できる方法は、まだ開発されていない。
【００２１】
一方で、磁石の小型化・薄型化および高性能化へのニーズが高まっており、小型または薄型の高性能な磁石を高い生産効率で製造できる製造方法の開発が望まれている。一般に、

希土類合金焼結体（またはこれを着磁した磁石）を機械加工すると加工ひずみの影響で磁気特性が低下するが、小型の磁石においてはこの磁気特性の低下を無視できない。従って、小型の磁石ほど、実質的に機械加工を必要としない程度の寸法精度で、使用される最終形状を有する焼結体を作製することが強く望まれる。このような背景からも、流動性やプレス成形性に優れた希土類合金粉末、特に、Ｒ－Ｆｅ－Ｂ系合金粉末に対する需要が一層強くなっている。

【００２２】

本発明は、上記の諸点に鑑みてなされたものであり、流動性やプレス成形性に優れ、且つ、優れた磁気特性を有する磁石を製造することが可能な希土類合金の造粒粉の製造方法、および高品質の希土類合金焼結体を高い生産効率で製造する方法を提供することを主な目的とする。

【００２３】

【課題を解決するための手段】

本発明の希土類合金の造粒粉の製造方法は、（ａ）残留磁化を有する希土類合金の粉末を通気性を有する台板上に載置された状態で槽内に用意する工程と、（ｂ）前記台板の下から上に流れる第１ガス流を前記槽内に生成する工程と、（ｃ）前記第１ガス流によって前記粉末の粒子に運動エネルギーを与え、前記粉末の残留磁化による凝集力と、前記運動エネルギーによる転動作用とを利用して、実質的にゼロ磁界下で造粒する工程と、（ｄ）前記台板に対して上から下に向けた第２ガス流を前記槽内に生成する工程と、（ｅ）前記粉末からなる粉末層を前記台板上に形成し、前記第２流気によって前記粉末層を圧縮する工程とを包含し、工程（ｄ）の少なくとも一部と工程（ｂ）の少なくとも一部とを同時に実行することを特徴とし、そのことによって上記目的が達成される。

【００２４】

ある好ましい実施形態において、工程（ｄ）と工程（ｂ）とを同時に実行する期間は、前記第１ガス流の流量を減少させながら前記第２ガス流の流量を増加させる期間を含む。

【００２５】

工程（ａ）は、残留磁化を有しない希土類合金の粉末を前記槽内に配置する工程と、前記槽内に配置された残留磁化を有しない前記粉末に磁界を印加することによって残留磁化を付与する工程とを包含してもよい。あるいは、工程（ａ）は、残留磁化を有する希土類合金の粉末を予め用意する工程と、残留磁化を有する前記粉末を前記槽内に配置する工程とを包含してもよい。

【００２６】

ある好ましい実施形態において、工程（ｂ）、工程（ｃ）、工程（ｄ）および工程（ｅ）がこの順序で複数回繰り返される。

【００２７】

ある好ましい実施形態において、前記繰り返しの間に、少なくとも１回の工程（ｅ）の後に、（ｆ）　前記第２ガス流を生成している状態で前記第１ガス流を一旦停止し、その後、前記第２ガス流を停止した状態で、工程（ｃ）における前記第１ガス流の平均流量を超える流量の前記第１ガス流を生成させることによって、前記台板上に形成された前記粉末層を解砕する工程を包含する。

【００２８】

ある好ましい実施形態において、前記希土類合金はＲ－Ｆｅ－Ｂ系合金である。

【００２９】

ある好ましい実施形態において、前記粉末の平均粒径は１．５μｍ以上６μｍ以下の範囲内にある。

【００３０】

ある好ましい実施形態において、平均粒径が０．０５ｍｍ以上３．０ｍｍ以下の範囲内にある造粒粉が製造される。

【００３１】

本発明による希土類合金焼結体の製造方法は、上記のいずれかの希土類合金の造粒粉の製

造方法を用いて造粒粉を製造する工程と、前記造粒粉に脱磁磁界を印加することなく、前記造粒粉を含む希土類合金の粉末をキャビティに充填する工程と、前記造粒粉を含む希土類合金の粉末に配向磁界を印加した状態でプレス成形することによって成形体を形成する工程と、前記成形体を焼結する工程とを包含することを特徴とする。

【００３２】

本発明による希土類合金の造粒粉の製造装置は、希土類合金の粉末を受容する台板が設けられた槽と、前記槽に接続され、前記台板の下から上に流れる第１ガス流を前記槽内に生成することができる第１流路と、前記槽に接続され、前記台板の上から下に流れる第２ガス流を前記槽内に生成することができる第２流路とを有し、前記第１流路と前記第２流路とは、前記槽に対して互いに独立に接続されていることを特徴とし、そのことによって上記目的が達成される。

【００３３】

前記第１流路内に調温装置および送風装置を更に備えていることが好ましい。

【００３４】

前記第２流路内にバッファタンクを更に備えている構成としてもよい。

【００３５】

前記槽内のガスの温度を検出する温度計を有し、検出された温度が所定の温度を超えると少なくとも前記送風装置の動作を停止させる制御回路を備えることが好ましい。

【００３６】

動作中に前記槽内が正圧に維持されることが好ましい。

【００３７】

前記台板上に載置された前記粉末に磁界を印加することができる磁界発生手段を更に備えている構成としてもよい。

【００３８】

【発明の実施の形態】

以下、図面を参照しながら、本発明による実施形態の造粒粉の製造方法ならびに希土類合金焼結体の製造方法を説明する。以下の実施形態の説明においては、磁気特性に優れる反面、特に流動性の低い、ストリップキャスト法で作製されたＲ－Ｆｅ－Ｂ系合金粉末を用いた焼結磁石の製造方法を例に本発明の特徴を説明するが、本発明はこれに限られず、他の方法によって製造された希土類合金粉末を用いてもよい。

【００３９】

本発明による実施形態のＲ－Ｆｅ－Ｂ系合金焼結体の製造方法は、Ｒ－Ｆｅ－Ｂ系合金の粉末（以下、「原料粉末」または「１次粒子粉末」という。）を作製する工程と、原料粉末に残留磁化を付与する工程と、原料粉末の残留磁化による凝集力を利用して造粒する工程と、造粒粉を含むＲ－Ｆｅ－Ｂ系合金粉末に磁界を印加した状態でプレス成形することによって成形体を形成する工程と、成形体を焼結する工程とを包含する。得られた焼結体を公知の方法で着磁することによって、Ｒ－Ｆｅ－Ｂ系焼結磁石が得られる。なお、着磁工程は、焼結後の任意の時点で実行され、例えば、焼結磁石のユーザによって使用の直前に実行されてもよい。ここでは、未着磁のものも焼結磁石と呼ぶ。

【００４０】

本発明による実施形態のＲ－Ｆｅ－Ｂ系合金焼結体の製造方法においては、原料粉末の残留磁化による凝集力を用いて造粒する。従って、造粒剤の添加量を低減したり、あるいは、従来よりも結合力が低い結合剤を用いることができる。さらには、造粒剤の添加を省略することすら可能になる。

【００４１】

図１（ａ）、（ｂ）および（ｃ）を参照しながら、本発明の実施形態による造粒粉の製造方法および得られた造粒粉の特徴を説明する。図１の左側は造粒粉の構造を模式的に示す図であり、図１の右側はプレス成形のためのキャビティ内で配向磁界を印加された後の造粒粉の状態を模式的に示す図である。図１（ａ）は本発明の実施形態による造粒粉１２ａ、（ｂ）は造粒剤を用いた従来の造粒粉１２ｂ、（ｃ）は上述の特許文献７に記載された

方法によって得られた造粒粉１２ｃをそれぞれ示している。

【００４２】

図１（ａ）に示すように、本実施形態の造粒粉１２ａは、残留磁化を有する１次粒子１０ａが磁気的な凝集力によって弱く結合している。ここでは造粒剤を用いない場合を例示している。残留磁化を有する１次粒子１０ａは磁気的な閉回路を形成するように磁気的に結合し、造粒粉１２ａの残留磁化は僅か（例えば０ｍＴ超１０ｍＴ以下（ミリテスラ）程度）である。造粒粉１２ａ中の１次粒子１０ａの残留磁化の方向は、図１（ｃ）に示す造粒粉１２ｃとは異なり、ランダムに向いている。例えば、１次粒子１０ａの平均粒径は、１．５μｍ以上６．０μｍ以下であり、造粒粉１２ａの平均粒径は０．０５ｍｍから３．０ｍｍ程度である。残留磁化は、ガウスメータのプローブを造粒粉中に挿入して測定することができる。

【００４３】

この造粒粉１２ａは適度な粒径を有するので、流動性に優れ、且つ残留磁化も低いので、ブリッジングを起こすことなくキャビティに容易に均一に充填される。さらに、１次粒子１０ａは磁気的な凝集力によって結合しているだけなので、図１（ａ）の左側に図示するように、配向磁界（例えば０．１Ｔ～０．８Ｔ）の印加によって確実に１次粒子１０ａに崩壊し、１次粒子１０ａは磁界配向する。また、造粒剤を含まないので、焼結体の炭素含有量を増加させることもない。この造粒粉１２ａを用いて製造された焼結体を着磁することによって得られる磁石は、原料粉末（残留磁化は実質的にゼロ）を造粒せずに用いて得られる磁石と実質的に同じ磁気特性を有する。すなわち、本発明の実施形態の造粒粉を用いることによって、磁気特性を低下させること無く、流動性および成形性を改善することができる。勿論、成形体の強度を向上するためなどの目的で、造粒剤を添加しても良い。造粒剤は補助的に用いられるので強い結合力は不要であり、磁気特性を低下させないように、その量や種類を選択すればよい。

【００４４】

これに対し、図１（ｂ）に示したように、原料粉末の１次粒子１０ｂを造粒剤１４によって結合した造粒粉１２ｂは、配向磁界では十分に崩壊せず、その結果、得られる焼結磁石の磁気特性が低下する。原料粉末を造粒せずに用いた場合に比べて、例えば、残留磁化は１％～１０％程度低下する。なお、図１（ｂ）の造粒粉１２ｂ中の１次粒子１０ｂは、残留磁化を有していないので、矢印を記載していない。

【００４５】

また、図１（ｃ）に示したように、静磁界中で１次粒子１０ｃを配向させながら、造粒剤１４で１次粒子１０ｃを結合、固定した造粒粉１２ｃを用いると、磁気特性の低下は抑制されるものの、造粒粉１２ｃが完全に１次粒子１０ｃまで崩壊しないので、原料粉末を造粒せずに用いた場合に比べて、例えば、残留磁化は１％～数％程度低下する。また、図１（ｃ）に模式的に示したように、造粒粉１２ｃは磁極の方向に沿った細長い形状になり、流動性の観点から不利である。さらに、造粒粉１２ｃは比較的大きな残留磁化を有しているので、一旦、脱磁（消磁）しないと、ブリッジングを起こすのでキャビティに充填できない。

【００４６】

これに対し、本発明の実施形態による造粒粉１２ａは、球形に近く、且つ、残留磁化も小さいので脱磁を必要とせず、キャビティに容易に均一に充填することができる。従って、予め所定の質量の造粒粉を計量してからキャビティに充填する、いわゆる計量充填法を採用することができる。上述したように、本発明の実施形態の造粒粉１２ａは、流動性およびキャビティへの充填性に優れ、且つ、実質的に磁気特性の低下がない焼結磁石を製造することができる。

【００４７】

本発明の実施形態の造粒粉は、残留磁化を有する原料粉末の粒子に運動エネルギーを与え、粒子が与えられた運動エネルギーによる転動作用によって成長する過程を含む造粒方法によって得られる。また、必要に応じて、造粒剤を添加しても良い。

【００４８】
本発明の実施形態による造粒粉の製造方法において、原料粉末に残留磁化を付与する工程は、造粒装置の槽（造粒槽）に原料粉末を充填する前に行っても良いし、槽内に装填した後に行っても良い。但し、本実施形態による造粒粉１２ａの１次粒子１０ａは、残留磁化による磁気的な凝集力で結合しているので、外部から磁界を印加すると造粒粉１２ａは崩壊する。従って、粒子の成長過程は実質的にゼロ磁界下で行われるようにする。これは、図１（ｃ）に示した造粒粉１２ｃの製造方法では、造粒粉１２が最終的に造粒剤１４によって固定されるまで、１次粒子１０ｃを配向させるために磁界を印加し続ける必要があるのと対照的である。なお、本明細書における「実質的なゼロ磁界」とは、粒子が転動作用によって成長する過程で、粉末の残留磁化によって磁気的な閉回路が形成された造粒粉が得られる程度および粉末の残留磁化に影響を及ぼさない程度の弱い磁界をいう。
【００４９】
残留磁化を付与するために印加する磁界は種々の磁界を用いることができる。なお、１次粒子が有する残留磁化はわずかでよいので、交番減衰磁界を用いることが好ましい。なお、残留磁化を付与するための磁界は、交番減衰磁界に限られず、単調減衰磁界や他のパルス磁界や静磁界を用いてもよい。
【００５０】
なお、残留磁化を付与しても原料粉末の保磁力が小さいと、最終的な造粒粉が得られるまでの間に消磁してしまい、造粒粉の形状を維持できないことがある。従って、原料粉末の保磁力が比較的高いものが好ましい。具体的には、原料粉末を嵩密度が２．０ｇ／ｃm^3となるように容器に充填し、ＢＨトレーサで測定した保磁力の値を原料粉末の見掛け上の保磁力とすると、原料粉末は、７０ｋＡ／m以上の保磁力を有することが好ましく、８０ｋＡ／m以上の保磁力を有することがさらに好ましい。例えば、Ｒ－Ｆｅ－Ｂ系合金の場合には、Ｄｙを２質量％以上、またはＴｂを１質量％以上、またはＤｙとＴｂとの合計を１質量％以上含む合金が好ましい。
【００５１】
プレス成形に供せられるＲ－Ｆｅ－Ｂ系合金の粉末としては、上述のようにして製造された造粒粉のみを用いることが流動性や成形性の観点からは好ましいが、造粒粉と原料粉末（１次粒子粉末）とを混合して用いることもできる。但し、原料粉末の割合が増えると流動性が低下するので、造粒による流動性の改善効果を十分に得るためには、実質的に造粒粉のみを用いることが好ましい。また、造粒粉に混合して原料粉末を用いる場合には、粒子表面が潤滑剤で被覆されていることが好ましい。１次粒子の表面を潤滑剤で被覆することによって、Ｒ－Ｆｅ－Ｂ系粉末の流動性を改善することができるとともに、Ｒ－Ｆｅ－Ｂ系合金の酸化を防止することができる。また、磁界プレス工程における配向性も改善される。なお、本願明細書においては、実質的に希土類合金のみの粉末（表面の酸化物層は含み得る）だけでなく、希土類合金の粉末とともに造粒剤や潤滑剤を含むプレス成形に供せられる粉末も希土類合金の粉末と呼ぶことにする。
【００５２】
本発明による実施形態のＲ－Ｆｅ－Ｂ系合金焼結体を用いた磁石の製造方法を工程順に説明する。
【００５３】
まず、ストリップキャスト法を用いて、Ｒ－Ｆｅ－Ｂ系合金フレークを作製する（例えば、米国特許第５，３８３，９７８号参照）。具体的には、公知の方法によって製造された、Ｒ－Ｆｅ－Ｂ系合金を高周波溶解により溶湯とする。なお、Ｒ－Ｆｅ－Ｂ系合金としては、上記の他に、例えば米国特許第４，７７０，７２３号および米国特許第４，７９２，３６８号の明細書に記載されている組成のものを好適に用いることができる。Ｒ－Ｆｅ－Ｂ系希土類合金の典型的な組成では、ＲとしてＮｄまたはＰｒが主に用いられ、Ｆｅは部分的に遷移元素（例えばＣｏ）に部分的に置換されてもよく、ＢはＣによって置換されてもよい。
【００５４】

この合金の溶湯を１３５０℃に保持した後、ロール周速度を約１ｍ／秒、冷却速度５００℃／秒、過冷度２００℃の条件で単ロール上で急冷し、厚さ０．３ｍｍの合金フレークを得る。この合金フレークに水素を吸蔵させ、脆化させることによって合金粗粉末を得る。この合金粗粉末をジェットミル装置を用いて窒素ガス雰囲気中で微粉砕することによって、例えば平均粒径が１．５μｍ～６μｍで、ＢＥＴ法による比表面積が約０．４５m^2／ｇ～約０．５５m^2／ｇの合金粉末（原料粉末）が得られる。この原料粉末の真密度は、７．５ｇ／cm^3である。

【００５５】

次に、得られた原料粉末に残留磁化を付与する。ここでは、ピーク磁界が１．０Ｔの交番減衰磁界を印加する。

【００５６】

次に、残留磁化を有する原料粉末を造粒する。ここでは、流動層造粒法を用いる。流動層造粒法を用いると、球形に近い形状の造粒粉を得ることができるとともに、適度な固さの造粒粉を得ることができる。造粒粉が球形に近い形状を有していると、流動性および成形性に優れる。また、造粒粉の固さは、造粒剤の影響も受けるが、上述したように固すぎても柔らか過ぎても不都合を生じる。

【００５７】

なお、従来の流動槽造粒法においては、槽内を下から上に流れるガス流によって粉末を流動（「整流」ともいう。）させる工程（流動過程）と、上から下に流れるガス流によって粉末の層を圧縮する工程（圧密過程）とが独立して行われていた。例えば、特許第３０１９９５３号公報（例えば図３）に記載されている流動圧縮装置では、流動過程を行わせるためのガス流（「第１ガス流」ということにする。）と、圧密過程を行わせるためのガス流（「第２ガス流」ということにする。）とが切替えられる構成になっており、槽内に両方のガス流を発生させることができなかった。

【００５８】

本発明者が種々実験を行った結果、流動過程を行わせる第１ガス流と、圧密過程を行わせる第２ガス流とを槽内に同時に存在させることによって、希土類合金の造粒粉をより効率的に製造できることがわかった。

【００５９】

これは、希土類合金の真比重が７．５ｇ／cm^3と大きいこと、および／または、残留磁化という比較的弱い力を利用して造粒粉を製造するためと考えられる。これは、結合剤を用いない場合には、第１ガス流と第２ガス流とが槽内に共存した状態を経てから、圧密過程を実行しないと、造粒粉の製造歩留まりが低下するのに対し、結合剤を用いた場合には、従来法との優位差が確認されなかったという実験事実に基づいている。しかしながら、第１ガス流と第２ガス流とが共存することによって、造粒粉の製造効率が向上する理由は良くわかっていない。

【００６０】

図２および図３をしながら、本発明の実施形態による造粒粉の製造方法および製造装置を詳細に説明する。

【００６１】

図２は、本発明の実施形態による造粒粉の製造方法に好適に用いられる造粒粉の製造装置１００の構造を模式的に示す図であり、図３（ａ）および（ｂ）は、本発明の実施形態による造粒粉の製造方法における槽内の流気の状態（流量の時間変化）を模式的に示すグラフである。

【００６２】

図２に示した造粒粉の製造装置１００は、槽（流動槽）１０と、槽１０に接続され下から上に流れる第１ガス流を槽１０内に生成することができる第１流路２０（ａ）と、槽１０に接続され上から下に流れる第２ガス流を槽１０内に生成することができる第２流路３０（ｂ）とを有しており、第１流路２０（ａ）と第２流路３０（ｂ）とは槽１０に対して互いに独立に接続されている。なお、参照符号２０および３０は、それぞれ第１流路および

第２流路を構成する物理的な構造を主に指す場合に用い、参照符号ａおよびｂは、それぞれ第１流路および第２流路におけるガス流の経路を主に指す場合に用いる。

【００６３】

槽１０は、その底部に希土類合金の粉末が充填された容器４２を受容する構造を有している。容器４２の底板（台板）４２ｂは通気性を有しており、例えば網や布で形成され得る。作業性の観点から、上述のような容器４２を用いることが好ましいが、槽１０が通気性の台板を有していれば他の構造であってもよい。

【００６４】

容器４２の底板４２ｂ上に載置された希土類合金の粉末は、底板４２ｂに対して下から上に流れる第１ガス流によって運動エネルギーが与えられ、流動化する。このとき、希土類合金の粉末の残留磁化による凝集力と、第１ガス流によって粉末に与えられた運動エネルギーによる転動作用とを利用して、実質的にゼロ磁界下で造粒過程が行われる。また、粉末の自重および／または第２ガス流によって底板４２ｂ上に粉末層が形成され、第２流気によってこの粉末層を圧縮することによって圧密過程が行われる。

【００６５】

第１流路２０は、調温装置２２、送風装置（例えば送風用ブロア）２４および配管２６を有し、バルブ２７および２８によって槽１０に接続（連結）されており、槽１０内のガスを循環させる第１流路ａを形成している（図２中の矢印Ａ１およびＡ２参照）。希土類合金粉末の酸化を抑制するために、不活性ガス（希ガスまたは窒素ガス）を用いることが好ましく、ここでは窒素ガスを用いる。なお、ガスに含まれる酸素ガスの体積分率は０．１％以下に制御することが好ましい。

【００６６】

また、希土類合金の粉末の温度が高くなりすぎると保磁力が低下し、粉末の凝集力が低下する結果、造粒粉が形成され難くなるため、および／または希土類合金の粉末の酸化を抑制するために、ガスの温度を１０℃以上４０℃以下の範囲内に制御することが好ましく、２０℃以上３０℃以下の範囲内に制御することがさらに好ましい。勿論、必要に応じて、ガスから水分を除去するために調湿装置を設けても良い。

【００６７】

送風装置２４は、調温装置２２によって温度制御されたガスを用いて第１ガス流を生成する。槽１０内に生成される第１ガス流の流量は、送風装置２４の出力および／またはバルブ２７の開度を調整することによって行われる。

【００６８】

第２流路３０は、バッファタンク３２および配管３６を有し、バルブ３７および３８によって槽１０に接続（連結）されており、槽１０内のガスを循環させる第２流路ｂを形成している（図２中の矢印Ｂ１およびＢ２参照）。なお、バッファタンク３２はレギュレータ３３を介して元配管（例えば工場用窒素ガス配管）３４に接続されている。元配管３４に供給される窒素ガスの圧力は例えば約７ｋｇ／ｃｍ^{2}であり、レギュレータ３３によって数ｋｇ／ｃｍ^{2}に降圧されている。槽１０内に生成される第２ガス流の流量は、バルブ３７および３８の開度を調整することによって行われる。

【００６９】

第１流路２０および第２流路３０の両端はそれぞれ槽１０に接続されており、ガスの流路は実質的にクローズとなっている。従って、槽１０内の窒素ガスの状態（温度・湿度）などを効率良く制御できるとともに、窒素ガスの消費量を低減することができる。しかしながら、完全なクローズシステムとすると、ガス流の調節が難しいので、バルブ４６を介して排気管４４を槽１０に接続し、所定の抵抗で槽１０内の窒素ガスを排気する構成を採用することが好ましい。このとき、少なくとも動作時に、槽１０内の圧力が槽１０外の雰囲気の圧力（大気圧）よりも高く維持されるように、排気管４４の抵抗を調整することが好ましい。

【００７０】

さらに、希土類合金の粉末は酸化されやすいため、温度が異常に上昇すると爆発の危険す

らある。従って、槽１０内の温度を検出するための温度計１８を設け、槽１０内の温度が予め決められた温度を超えた場合に、少なくとも送風装置２４の動作を停止する制御回路を設けることが好ましい。もちろん、バルブ２７、２８、３７、３８および４６を電磁バルブで構成し、予め決められた温度を超えた場合にはこれらを閉じるように制御してもよい。種々の経験から、Ｒ－Ｆｅ－Ｂ系合金を用いる場合、５０℃を超えると急激な酸化（発火や爆発を伴う場合もある）が起こる可能性が高くなるので、上記の停止動作を開始させる温度は５０℃に設定することが好ましい。

【００７１】

なお、槽１０は、容器４２を受容する底部およびその付近と、これらの上部に位置する胴体部において、内径が異なっている。図２に示したように、槽１０の底部の内径Ｄ１は胴体部の内径Ｄ２よりも小さく、胴体部に近づくほど大きくなっている。このような構造の槽１０を用いると、第１流路２０によって槽１０内に生成される第１流気の流速が、上方に行くに連れて低下するので、第１流気によって浮遊させられた粉末を効率良く落下させることができる。胴体部の内径Ｄ２よりも内径が小さい底部の長さ（高さ）は、例えば、槽１０の全体の長さの２０％程度であり、底部の内径Ｄ１の最小値（底板４２ｂが位置する部分の内径）は、例えば、Ｄ２の５０％程度である。

【００７２】

造粒粉製造装置１００は、容器４２内に充填された希土類合金の粉末に磁界を印加することができる磁界発生手段４０を更に備えている。磁界発生手段４０は、例えば、コイルとヨークとを有する電磁石であり、交番減衰磁界を発生し得るものが好ましい。勿論、槽１０の外部で残留磁化を与えた希土類合金の粉末を用いる場合には、磁界発生手段４０を省略することができる。

【００７３】

次に、図３（ａ）および（ｂ）を参照しながら、本発明の実施形態における造粒粉の製造方法における槽１０内の流気の状態を説明する。図３（ａ）は動作開始時点からの一連の工程（１サイクル）を示しており、図３（ｂ）は解砕工程を含む一連の工程（１サイクル）を示している。

【００７４】

まず、図３（ａ）を参照ながら、残留磁化を有する希土類合金の粉末が充填された容器４２が装置１００の所定の位置にセットされた後の槽１０内の流気の状態を説明する。

【００７５】

容器４２がセットされた直後は、第１流気ａの流量$ａ_0$および第２流気の流量$ｂ_0$はいずれもゼロである。温調装置２２および送風装置２４の動作を開始し、バルブ２７および２８を開け、槽１０内に第１流気ａを生成させる。第１流気ａの流量は徐々に上昇し、定常状態の流量$ａ_1$に到達する。この状態で、粉末は槽１０内で転動作用を受けながら残留磁化による凝集力によって造粒される。この間、槽１０の中央付近に存在する粉末（造粒過程にある粒子を含む）は第１流気ａによって重力に逆らいながら浮遊させられ、流速が低い弱い槽１０の内壁付近の粉末は自重によって落下する。

【００７６】

第１流気ａの流量を所定の時間（例えば約２０分間）だけほぼ一定に維持した状態で、バルブ３７および３８を開け、第２流気ｂの生成を開始する（開始点における流量ｂ１）。第２流気ｂの流量を徐々に増加させ、定常的な流量$ｂ_2$に到達する前に、第１流気ａの流量を減少させる（減少開始点の流量を$ａ_2$）。すなわち、第１流気ａの流量を減少させながら第２流気ｂの流量を増加させる期間（図３（ａ）における$ａ_2$～$ｂ_2$に相当する期間）がある。このように、第１流気ａと第２流気ｂとが槽１０内に同時に存在する期間が存在することによって、希土類合金の造粒粉をより効率的に製造できる。この理由は必ずしも明らかではないが、第１流気ａを急激に停止したり、あるいは、第１流気ａの流量に対して第２流気ｂの流量が多くなりすぎると造粒粉が急激に落下するので、衝撃によって造粒粉が破壊されるためと考えられる。また、第１流気ａを完全に停止した後で、第２流気ｂの生成を開始すると、槽１０内が負圧になり、圧力の制御が難しくなるので、好ましくな

い。

【００７７】

上述したように、第１流気ａの流量を徐々に減少させながら、第２流気ｂの流量を増加させると、造粒粉が底板４２ｂ上に落下した際に衝撃によって破壊されること無く、粉末層が形成され、その後、第２流気ｂによって圧縮され、粉末層が圧密化される。この圧密化過程によって造粒粉の固さが増加する。

【００７８】

図３（ａ）に示したサイクルを繰り返すことによって、適度な固さの造粒粉を得ることができる。但し、２回目以降のサイクルの開始時点における第１流気ａの流量は図３（ａ）に示したようにゼロ（$ａ_0$）である必要は無く、図３（ａ）に示したサイクルの終了時点の流量$ａ_3$であってもよい。

【００７９】

図３（ａ）に示したサイクルを繰り返すだけでは、底板４２ｂ上で圧縮された粉末層を十分に解砕できず、粗大粒が生成されることがある。そこで、粉末層をより確実に解砕するために、図３（ｂ）に示したサイクルを実行することが好ましい。

【００８０】

図３（ｂ）における点$ｂ_1$’以降の工程から説明する。ここでは、図３（ｂ）における点$ｂ_1$’までは、図３（ａ）における点$ｂ_1$までの工程が実行され、その後に、図３（ｂ）の工程が実行される場合を説明する。

【００８１】

上述したのと同様にして、第２流気ｂの生成を開始（開始時点の流量$ｂ_1$’）し、第２流気ｂの流量が定常状態の流量$ｂ_2$’に到達する前に、第１流気ａの流量を減少し始める（減少開始時点の流量$ａ_2$’）。その後、バルブ２７および２８を閉じ、第１流気ａを停止した状態を維持する（図３（ａ）中の点$ａ_3$’～点$ａ_4$’：α分間）。この間に送風装置２４を運転しつづけると送風装置２４からバルブ２７までの配管２６内のガス圧が上昇する。逆に言うと、粉末層を解砕するための所定の圧力が得られるまでの間、バルブ２７を閉じておく。その後、バルブ３７および３８を閉じて第２流気ｂを停止（図３（ｂ）の点$ｂ_0$’）するとともに、バルブ２７および２８を開け、第１流気ａを発生させる（図３（ｂ）の点$ａ_0$’）。このときに槽１０内に生成される第１流気ａの流量$ａ_0$’は、図３（ａ）における定常的な第１ガス流ａの流量$ａ_1$（＝$ａ_2$）を超える流量となり、効率的に粉末層を解砕することができる。転動作用を得るための第１流気ａの流量は、典型的には図３（ａ）に示したようにほぼ一定（$ａ_1$＝$ａ_2$）に保たれるが、変動してもよい。この場合、粉末層を解砕するための第１流気ａの流量は、転動作用を得るための第１流気ａの平均流量よりも多いことが好ましい。

【００８２】

上記の例では、バルブ３７および３８を操作することによって、流用$ａ_0$’の第１流気ａを生成させたが、送風装置２４の送風能力を制御することによって第１流気ａの流量を調節しても良いし、バルブ操作と組み合わせてもよい。なお、図３（ｂ）中の流量$ａ_1$’および流量$ａ_2$’は、それぞれ図３（ａ）の流量$ａ_1$および流量$ａ_2$と同じであってよい。

【００８３】

残留磁化を利用して形成される造粒粉は、ある適度大きくなると、磁気的な閉回路を形成するので、造粒粉間に働く磁気的な吸引力が弱くなるので、図３（ｂ）に示した解砕用のサイクルが必要なくなる。従って、例えば、図３（ａ）の示した基本的なサイクルと、図３（ｂ）に示した解砕用のサイクルとを合計で３０回繰り返すことによって所定の造粒粉が得られるプロセスでは、最初の２０回のサイクル内に、解砕用のサイクルを５回～１０回含めることが好ましい。

【００８４】

なお、残留磁化を有する原料粉末を用いると、残留磁化を有しない原料粉末を用いた場合よりも短時間（例えば約半分の時間）で所望の造粒粉が得られる。これは、残留磁化を有する原料粉末を用いると、造粒粉を生成するための核が１次粒子間の磁気的な凝集力によ

って容易に生成されるためと推察される。

【００８５】

造粒粉の平均粒径は０．０５ｍｍ～３．０ｍｍの範囲内にあることが好ましい。一般に、造粒粉に含まれる１次粒子はわずかであり、また３次粒子以上の高次の造粒粉も非常に少ないので、実質的に２次粒子の平均粒径が造粒粉の平均粒径を代表するものとして扱うことができる。ここでは、造粒粉の平均粒径として、顕微鏡観察によって求めた２次粒子の平均粒径を用いる。造粒粉の平均粒径が０．０５ｍｍより小さいと、流動性の改善効果が低く、十分な密度で均一な成形体を得ることが難しい。一方、造粒粉の平均粒径が３ｍｍより大きいと、キャビティへの充填性が低下し、十分な密度で均一な成形体を得ることが難しい。造粒粉の平均粒径は、０．１ｍｍ～２．０ｍｍの範囲内にあることがさらに好ましい。

【００８６】

次に、得られた造粒粉をプレス成形することによって成形体を形成する。ここでは、造粒粉だけを用いて成形体を形成する。プレス成形には公知のプレス成形装置を用いることができ、典型的には、上下パンチで金型のキャビティ（ダイホール）内の粉末をプレスする一軸プレス成形装置が用いられる。造粒粉末の移送は、例えば、気密性の高い容器内に窒素ガスを充満または流気させた状態で、バッチごとに行う。

【００８７】

一軸プレス成形機の金型のキャビティに造粒粉を充填する。造粒粉をキャビティに充填する工程は、例えば、ふるいを用いた充填方法や、特公昭５９－４０５６０号公報、特開平１０－５８１９８号公報、実開昭６３－１１０５２１号公報や特開２０００－２４８３０１号公報に開示されているようなフィーダボックスを用いた充填方法（これらを総称して「落とし込み方法」ということもある。）を用いて実行することができる。

【００８８】

特に、小さい成形体を形成する場合、キャビティの内容積に対応する量の造粒粉を、キャビティを用いて計量することが好ましい。例えば、下方に開口部を有するフィーダボックスをキャビティ上に移動させ、造粒粉を重力落下（自然落下）させた後、キャビティに供給された余剰の造粒粉をすりきることによって、比較的均一に、所定量の造粒粉を充填することができる。勿論、別途計量した造粒粉を漏斗などを用いてキャビティに充填しても良い。

【００８９】

キャビティ内に造粒粉を充填した後、一軸プレス装置の上パンチを降下し、キャビティの開口部を塞いだ状態で、配向磁界を印加し、造粒粉を１次粒子に崩壊させるとともに、１次粒子を磁界配向させる。本発明の実施形態による造粒粉は、０．１Ｔ～０．８Ｔの比較的弱い磁界で確実に１次粒子に崩壊する。但し、充分な配向度を考慮すると、０．５Ｔ～１．５Ｔ程度が望ましい。磁界の方向は、例えばプレス方向と垂直方向である。このように磁界を印加しながら、例えば９８ＭＰａの圧力で、上下パンチで粉末を一軸プレスする。その結果、相対密度（成形体密度／真密度）が０．５～０．７の成形体が得られる。なお、磁界の方向は、必要に応じてプレス方向に対して平行としてもよい。

【００９０】

次に、得られた成形体を、真空中または不活性ガス雰囲気中で、例えば約１０００℃～約１１８０℃の温度で、約１時間から６時間焼結する。本実施形態の造粒粉は、造粒剤を含まない、あるいは、焼結工程に実質的に除去され得る程度の造粒剤しか含まないので、脱バインダ工程を別途設ける必要がない。なお、従来の典型的な脱バインダ工程は、約２００℃～８００℃の温度で、約２Ｐａの圧力の不活性ガス雰囲気下で、約３時間～約６時間実行されている。

【００９１】

得られた焼結体を、例えば約４５０℃～約８００℃の温度で、約１時間～８時間時効処理することによって、Ｒ－Ｆｅ－Ｂ系焼結磁石が得られる。この後、任意の段階で、着磁することによってＲ－Ｆｅ－Ｂ系焼結磁石が最終的に完成する。

【００９２】
本発明によると、上述したように流動性および成形性に優れた造粒粉を用いるので、充填量のばらつきが少なく、且つキャビティ内に均一に充填される。従って、プレス成形によって得られた成形体の質量および寸法のばらつきが少ない。また、成形体に欠けや割れが発生することも少ない。
【００９３】
さらに、本実施形態の造粒粉の１次粒子は、実質的に残留磁化の磁気的な凝集力によって結合しているので、配向磁界の印加によって１次粒子に確実に崩壊する。従って、１次粒子の配向度が低下することがない。また、造粒剤の炭素が焼結体中に残存することによる磁気特性の低下も最小限に抑制されるので、優れた磁気特性を有する焼結磁石を得ることができる。このように、本発明によると、高品質のＲ－Ｆｅ－Ｂ系合金焼結磁石を高い生産効率で製造することができる。
【００９４】
【実施例】
以下、本発明の実施例を説明する。
【００９５】
Ｒ－Ｆｅ－Ｂ系合金粉末を以下の様にして作製した。出発原料として、純度９９．９％の電解鉄、Ｂを１９．８％含有するフェロボロン合金、純度９９．７％以上のＮｄおよびＤｙを用いて、合金溶湯を調製した。この合金溶湯からストリップキャスト法で３０．０質量％Ｎｄ、５．０質量％Ｄｙ、６４．０質量％Ｆｅ、１．０質量％Ｂの組成のＲ－Ｆｅ－Ｂ系合金のフレークを得た。これをジェットミルを使用し、不活性ガス（例えば$Ｎ_2$ガス、ガス圧５８．８ＭＰａ）中で微粉砕し、平均粒径が約３μｍの原料粉末を得た。
【００９６】
次に、実施例用の原料粉末に、交番減衰磁界（ピーク磁界１．０Ｔ）を印加し、残留磁化を付与した。
【００９７】
次に、上述した製造装置１００を用いて造粒粉を製造した。
【００９８】
槽１０の内径（Ｄ２）は、３００ｍｍ、内容積は約$７×１０^4ｃｍ^3$、図３（ａ）および（ｂ）における流量$ａ_1＝ａ_2＝ａ_1'＝ａ_2'$は約$１ｍ^3$／ｍｉｎ、流量$ａ_0'$は約２．$０ｍ^3$／ｍｉｎ、流量$ｂ_2＝ｂ_3＝ｂ_2'＝ｂ_3'$は約０．$７５ｍ^3$／ｍｉｎとした。希土類合金の原料粉末の投入量は、約５ｋｇとし、窒素ガスの温度は約３０℃に制御した。
【００９９】
なお、実施例２から３および比較例２および３の造粒粉の製造には、本願出願人らによる特願２００１－９６５７２号に記載されているポリブテンとイソパラフィンを造粒剤として用いた。
【０１００】
実施例および比較例のいずれの場合も、造粒粉の平均粒径が０．５ｍｍとなるように条件を設定した。得られた造粒粉の残留磁化は０．２ｍＴ程度であった。実施例１から３の造粒工程は約１５分であり、比較例２および３の造粒工程は約３０分を要した。なお、比較例１は、原料粉末（磁界の印加を行っていない）を造粒することなしに用いた。実施例１から３および比較例１から３のそれぞれにプレス用粉末の調製条件を表１にまとめて示す。
【０１０１】
【表１】

プレス用粉末	造粒	残留磁化	造粒剤	安息角
実施例１	有り	有り	０質量％	約４５°
実施例２	有り	有り	１質量％	約４５°
実施例３	有り	有り	２質量％	約４４°
比較例１	無し	無し	０質量％	約５２°
比較例２	有り	無し	１質量％	約４９°
比較例３	有り	無し	２質量％	約４４°

【０１０２】
また、表１には、それぞれのプレス用粉末の安息角をあわせて示す。安息角が大きい粉末は流動性が悪く、安息角が小さいものほど流動性が優れている。比較例１として示したように、原料粉末を造粒しないと安息角は約５２°と大きく、流動性が低い。これに対し、造粒を行った実施例１～３、比較例２および３のいずれのプレス粉末も安息角は５０°未満まで低下している。特に、実施例１および２のプレス粉末は、比較例２のプレス粉末（造粒剤の添加量１質量％）よりも安息角が小さく、流動性が優れている。すなわち、残留磁化を利用することによって、従来よりも少ない造粒剤の添加によって、流動性が改善されることがわかる。なお、造粒剤の添加量が２質量％の実施例３および比較例３では、流動性に差が見られなった。
【０１０３】
表１に示したそれぞれのプレス用粉末を、上述したフィーダボックスを用いた方法で、縦２０ｍｍ、横１５ｍｍ、深さ１０ｍｍのキャビティ内に充填し、一軸プレス成形（９８ＭＰａ、配向磁界（０．８Ｔ）をプレス方向に直角に印加）を行った。この充填工程およびプレス成形工程は、全ての実施例および比較例について同じ条件で行った。なお、プレス条件を変えて成形体密度（グリーン密度）の異なる成形体を形成した。
【０１０４】
実施例１と比較例１のプレス成形体の質量ばらつき（％）と充填量ばらつき（σ）を評価した。成形体の質量ばらつきは、｛（最大質量－最小質量）／平均質量（ｎ＝５０）｝×１００（％）で求めた。また、充填量ばらつき（σ）は、５０個の成形体の質量分布の標準偏差を示している。実施例１の成形体の質量ばらつきは約４％であり、比較例１の質量ばらつき約１５％に比べて著しく改善されている。これは、充填量ばらつき（σ）についても同様で、比較例１の充填量ばらつき（σ）が約０．３３であるのに対し、実施例１の充填量ばらつき（σ）は０．１６と大きく改善されており、造粒によって流動性が改善されたことがわかる。勿論、造粒によって、成形性も同様に改善されており、成形体に欠けや割れが発生する割合も、比較例１に比べ著しく少なかった。これらの造粒の効果は、他の実施例についても確認された。
【０１０５】
得られた成形体をＡｒ雰囲気中で、１０６０℃にて約４時間焼結したあと、６００℃で１時間の時効処理を施し、焼結体を得た。さらに、この焼結体を２３８７ｋＡ／ｍの条件で着磁することによって、焼結磁石を得た。それぞれの実施例および比較例について、サンプル数は５０個とした。
【０１０６】
得られた焼結磁石の残留磁化Ｂｒ（Ｔ）を図４に示す。図４からわかるように、実施例１（図４中の黒丸）のＢｒは、比較例１（図４中の白丸）のＢｒと実質的な差異は認められず、優れた磁気特性を有している。造粒剤を添加した実施例２および実施例３のＢｒは、

同量の造粒剤を添加し残留磁化を有していない原料粉末を用いた比較例２および比較例３のＢｒとほぼ同等であった。残留磁化を利用して造粒する場合においても、造粒剤はできるだけ少ない方が好ましい。

【０１０７】

上述したように、１次粒子の残留磁化による磁気的な凝集力を利用して造粒粉を作製することによって、造粒剤の結合力のみを用いて造粒粉を用いる場合に比べて、造粒剤の添加量を減らしても同等以上の流動性を得ることができるので、従来の同等以上の生産性で、従来よりも優れた磁気特性を有する焼結磁石を製造することができる。さらに、１次粒子の残留磁化のみを用いて造粒粉を作製すれば、磁気特性の低下を実質的に無くすことができる。

【０１０８】

【発明の効果】

本発明によると、流動性やプレス成形性に優れ、且つ、優れた磁気特性を有する磁石を製造することが可能な希土類合金の造粒粉の製造方法が提供される。この造粒粉を用いることによって、高品質の希土類合金焼結体を高い生産効率で製造する方法が提供される。

【０１０９】

本発明によると、磁気特性を低下させることなく、希土類合金粉末の流動性および成形性を改善することができるので、従来は磁気特性を犠牲にしていたプレス成形が困難な形状の焼結磁石の磁気特性を向上することができる。さらに、造粒時間の短縮や、脱バインダ工程の省略が可能となり、希土類焼結磁石の生産性を向上することができる。

【図面の簡単な説明】

【図１】（ａ）は、本発明の実施形態による造粒粉の構造を模式的に示す図であり、（ｂ）および（ｃ）は比較のための従来の造粒粉の構造を模式的に示す図である。

【図２】本発明による実施形態のＲ－Ｆｅ－Ｂ系合金造粒粉の製造に用いられる造粒装置１００を模式的に示す図である。

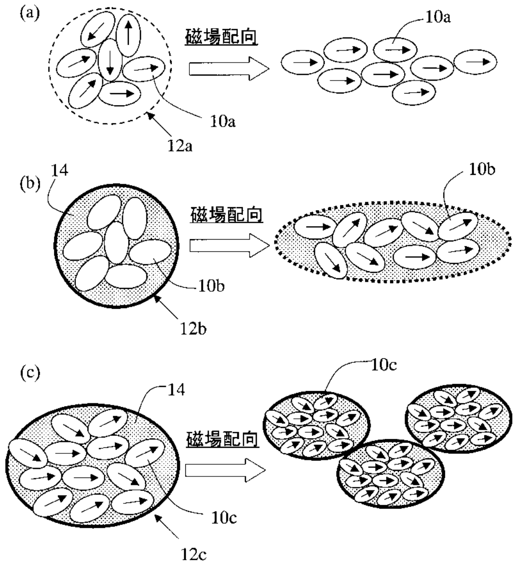
【図３】（ａ）および（ｂ）は、本発明の実施形態による造粒粉の製造方法における槽内の流気の状態（流量の時間変化）を模式的に示すグラフである。

【図４】本発明の実施例の造粒粉および比較例の造粒粉を用いて得られた焼結磁石の残留磁束密度Ｂｒを示すグラフである。

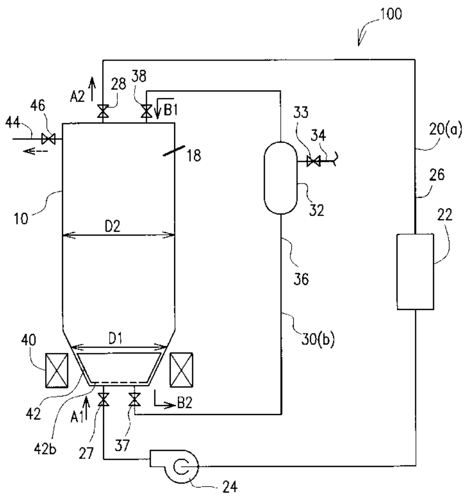
【符号の説明】

１０ａ、１０ｂ、１０ｃ　１次粒子
２０ａ、２０ｂ、２０ｃ　造粒粉
１０　槽（流動槽）
２０　第１流路
２２　調温装置
２４　送風装置
２６、３６　配管
２７、２８　バルブ
３０　第２流路
３７、３８　バルブ
４０　磁界発生装置
４２　容器
４２ｂ　底板
４４　排気管
４６　バルブ

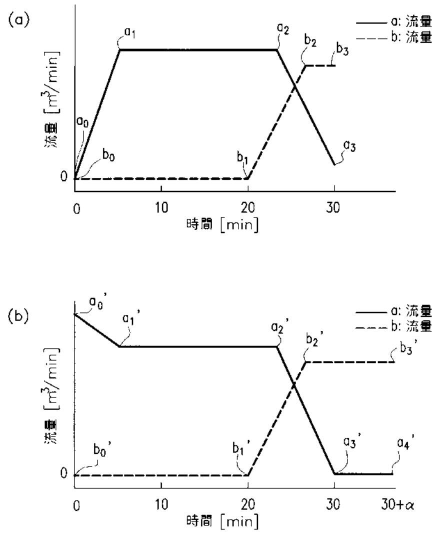
【図１】


(a)
磁場配向
10a
12a
(b)
14
10b
12b
(c)
10c
12c

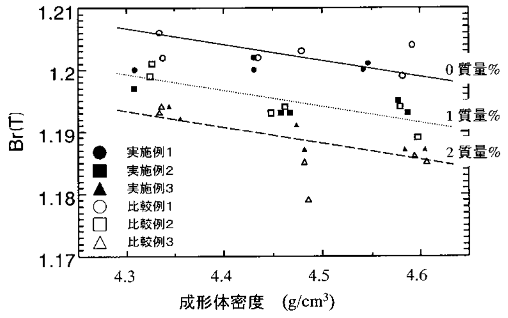
【図２】


100
A2
28
38
B1
46
44
33
34
20(a)
18
32
26
10
D2
22
36
30(b)
D1
40
42
A1
B2
42b
27
37
24

【図３】


(a)
a: 流量
b: 流量
流量 [m3/min]
時間 [min]
(b)
30+α

【図４】


Br(T)
0 質量%
1 質量%
2 質量%
実施例1
実施例2
実施例3
比較例1
比較例2
比較例3
成形体密度 (g/cm3)

フロントページの続き

(56)参考文献　特開平１１－１３１１０１（ＪＰ，Ａ）
特開平０４－１００５３２（ＪＰ，Ａ）
特開平１０－１４０２０２（ＪＰ，Ａ）
特公平０６－０２８２１３（ＪＰ，Ｂ２）
特開昭５１－０２０５９３（ＪＰ，Ａ）
特開昭４９－１１９１９３（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)
B22F 1/00
B22F 9/00 - 9/30
H01F 1/06 - 1/08
H01F 41/00 - 41/02
B01J 2/00 - 2/30