

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2013-145769

(P2013-145769A)

(43) 公開日 平成25年7月25日(2013.7.25)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
HO1F 1/08 (2006.01)	HO1F 1/08 A	4K018
HO1F 1/057 (2006.01)	HO1F 1/04 H	5E040
HO1F 41/02 (2006.01)	HO1F 41/02 G	5E062
C22C 38/00 (2006.01)	C22C 38/00 303D	
B22F 1/00 (2006.01)	B22F 1/00 Y	

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 19 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2010-175039 (P2010-175039)  
 (22) 出願日 平成22年8月4日 (2010.8.4)

(71) 出願人 591167430  
 株式会社 K R I  
 京都府京都市下京区中堂寺南町 1 3 4 番地  
 (72) 発明者 山本 日登志  
 京都市下京区中堂寺南町 1 3 4 番地 株式  
 会社 K R I 内  
 F ターム (参考) 4K018 BA18 BB04 BB06 BC01 BD01  
 CA04 CA23 CA33 GA04 KA46  
 5E040 AA04 BB03 BD01 CA01 HB03  
 5E062 AC15 CE04 CF01

(54) 【発明の名称】 異方性希土類ボンド磁石とその製造方法

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 希土類焼結磁石市中屑を低コストでリサイクルし、高い磁気特性、温度特性、耐食性を具備する異方性ボンド磁石を提供する。

【解決手段】 希土類磁石を不活性雰囲気機械的に粉砕する工程と、粉砕した材料を高真空または不活性雰囲気下で 400 から 600 の温度で保持時間 12 時間以上のひずみ取焼鈍処理する工程と、ひずみ取焼鈍処理した材料とバインダーを混錬し磁場成形する工程を有し、Sm、Nd の分離精製、Niメッキ等の磁石表面処理皮膜、接着剤除去を不要とすることを特徴とする製造方法。

【選択図】 なし

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

回収された希土類異方性焼結磁石から製造した異方性希土類ボンド磁石であって、鉄 (Fe) 以外の成分として、少なくともネオジム (Nd) を 3 ~ 35 wt %、ホウ素 (B) を 0.3 ~ 1.3 wt %、サマリウム (Sm) を 0 ~ 30 wt %、コバルト (Co) を 0 ~ 15 wt %、ニッケル (Ni) を 0 ~ 5.5 wt %、アルミニウム (Al) を 0 ~ 5.5 wt % を含み、かつ、ニッケル (Ni) とアルミニウム (Al) を合わせて 0.3 wt % 以上を含み、最大エネルギー積 (BH) max が 96 から 270 kJ/m<sup>3</sup> の磁気特性を有することを特徴とする異方性希土類ボンド磁石。

## 【請求項 2】

前記希土類異方性焼結磁石が、ネオジム焼結磁石又はネオジム焼結磁石及びサマリウムコバルト焼結磁石であることを特徴とする請求項 1 に記載の異方性希土類ボンド磁石。

## 【請求項 3】

前記異方性希土類ボンド磁石において、粉碎した前記原料の粒子平均粒径が 30 から 200 μm (ミクロン)、かつ各粒子を形成する主相の平均結晶粒径が 1 から 15 μm (ミクロン) の組織構造を有することを特徴とする請求項 1 又は請求項 2 に記載の異方性希土類ボンド磁石。

## 【請求項 4】

希土類異方性焼結磁石を原料として異方性希土類ボンド磁石の製造方法であって、前記希土類異方性焼結磁石を不活性雰囲気下で機械的に粉碎する工程と、前記粉碎した材料を高真空または不活性雰囲気下で 400 から 600 の温度で保持時間 12 時間以上のひずみ取焼鈍処理する工程と、前記ひずみ取焼鈍処理した材料とバインダーを混練し、磁場成型する工程とからなることを特徴とする異方性希土類ボンド磁石の製造方法。

## 【請求項 5】

前記磁場成型の圧縮成型工程において、湿式成型方法を用いることを特徴する請求項 4 に記載の異方性希土類ボンド磁石の製造方法。

## 【請求項 6】

前記磁場成型の圧縮成型工程において、圧縮成型後に CIP 工程を加える 2 段プレス成型を行うことを特徴する請求項 5 に記載の異方性希土類ボンド磁石の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、回収された希土類異方性焼結磁石から製造した異方性希土類ボンド磁石およびその製造方法に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

希土類焼結磁石は省エネ、機器の小型軽量化、高性能化のニーズを背景に家電、パソコン、デジカメ、携帯電話、事務機の OA、モータ等の FA 機器、最近では CO<sub>2</sub> 温暖化問題によりハイブリッド自動車、電気自動車等の用途も加わり、これら需要は益々拡大する勢いでありその消費量も年々増大している。

希土類焼結磁石に含まれる希土類は日本には殆ど無く、中国、米国、オーストラリアから輸入 100% 輸入に依存し、その 95% 以上は中国である。近年長期的な希土類 (以下適宜「RE」と記載する。) 資源の供給が懸念されており、希土類資源問題は日本の先端技術を維持するために極めて重要な課題である。

## 【0003】

上述のように今後廃棄される希土類焼結磁石スクラップ量が増加することが予測され、これら希少資源である希土類元素が相当量含まれるため、その回収と再利用技術が求められている。

## 【0004】

希土類磁石屑は再度溶解し合金化して磁石合金を得る提案が多くなされている（例えば、特許文献 1）。これらは再度磁石製品を製造する為に再溶解、合金化のみならず、さらに粉砕、成型、焼結、熱処理の磁石工程が必要であり、現状 RE 原料新規購入の方がコストメリットが高い。また磁石屑を各希土類に分離した後還元する工程（特許文献 2）や脱炭素処理と Ca 還元工程を取る方法（特許文献 3）、脱炭素、還元、洗浄工程が必要である（特許文献 4）。また工場廃液コストが高く、環境対策上も問題が大きい。あるいはまたこれら回収工程リサイクル時に不純物であるメッキ除去の方法（特許文献 5）や接着剤除去（特許文献 6）も必要でありいまだ実用化されていない。

【0005】

以上の背景の下で希土類磁石市中屑を有効活用して従来以上の高い磁気特性、温度特性、耐食性を具備する異方性ボンド磁石を提供することにある。

10

【先行技術文献】

【特許文献】

【0006】

【特許文献 1】特開 2003 113429

【特許文献 2】特開 2002 60855

【特許文献 3】特開 2004 91811

【特許文献 4】特開 2005 57191

【特許文献 5】特開 2001 40425

【特許文献 6】特開 2003 176459

20

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

上記したように、現状希土類焼結磁石市中屑を低コストかつ有効にリサイクルする方法が見つからない。本発明は希土類焼結磁石をリサイクルした新規な異方性希土類ボンド磁石とその製造方法を提案するものである。

【0008】

以上の背景の下で希土類焼結磁石市中屑を有効活用して従来以上の高い磁気特性、温度特性、耐食性を具備する異方性ボンド磁石を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

30

【0009】

本発明は、高性能な異方性希土類ボンド磁石を提供することを目的として、従来の希土類磁石材料のリサイクル工程を全く用いず、酸等廃液処理問題も全く無く、また Sm、Nd の分離精製工程も不要、Ni メッキ等の磁石表面処理皮膜の剥離も不要、接着剤除去も不要なる磁気特性としては市販の Nd 焼結磁石よりも劣るが、省エネ、省資源で環境に優しい市販の等方性ボンド磁石よりも優れた新規な異方性希土類ボンド磁石およびその製造方法を提供するものであり、以下のような特徴を有する。

【0010】

〔1〕回収された希土類異方性焼結磁石から製造した異方性希土類ボンド磁石であって、鉄 (Fe) 以外の成分として、少なくともネオジウム (Nd) を 3 ~ 35 wt %、ホウ素 (B) を 0.3 ~ 1.3 wt %、サマリウム (Sm) を 0 ~ 30 wt %、コバルト (Co) を 0 ~ 15 wt %、ニッケル (Ni) を 0 ~ 5.5 wt %、アルミニウム (Al) を 0 ~ 5.5 wt % を含み、かつ、ニッケル (Ni) とアルミニウム (Al) を合わせて 0.3 wt % 以上を含み、最大エネルギー積 (BH) max が 96 から 270 kJ/m<sup>3</sup> の磁気特性を有することを特徴とする異方性希土類ボンド磁石。

40

【0011】

〔2〕前記希土類異方性焼結磁石が、ネオジウム焼結磁石又はネオジウム焼結磁石及びサマリウムコバルト焼結磁石であることを特徴とする前記〔1〕に記載の異方性希土類ボンド磁石。

【0012】

50

〔 3 〕前記異方性希土類ボンド磁石において、粉碎した前記原料の粒子平均粒径が 30 から 200  $\mu\text{m}$  (ミクロン)、かつ各粒子を形成する主相の平均結晶粒径が 1 から 15  $\mu\text{m}$  (ミクロン) の組織構造を有することを特徴とする前記〔 1 〕又は〔 2 〕に記載の異方性希土類ボンド磁石。

【 0013 】

〔 4 〕希土類異方性焼結磁石を原料として異方性希土類ボンド磁石の製造方法であって、前記希土類異方性焼結磁石を不活性雰囲気下で機械的に粉碎する工程と、前記粉碎した材料を高真空または不活性雰囲気下で 400 から 600 の温度で保持時間 12 時間以上のひずみ取焼鈍処理する工程と、前記ひずみ取焼鈍処理した材料とバインダーを混練し、磁場成型する工程とからなることを特徴とする異方性希土類ボンド磁石の製造方法。

10

【 0014 】

〔 5 〕前記磁場成型の圧縮成型工程において、湿式成型方法を用いることを特徴する前記〔 4 〕に記載の異方性希土類ボンド磁石の製造方法。

【 0015 】

〔 6 〕前記磁場成型の圧縮成型工程において、圧縮成型後に CIP 工程を加える 2 段プレス成型を行うことを特徴する前記〔 5 〕に記載の異方性希土類ボンド磁石の製造方法。

【 発明の効果 】

【 0016 】

本発明によると、従来提案されている希土類焼結磁石のリサイクル手法の一つである希土類磁石屑を再度溶解し合金化して磁石合金を得る必要がなく希土類焼結磁石を再利用することができる。

20

【 0017 】

また、本発明によれば、磁石に付着する接着剤の除去と Ni メッキ、Al メッキあるいはエポキシ樹脂等の表面処理剥離除去の前工程なしに、異方性希土類ボンド磁石を製造できるため製造工程の簡略化ができる。

【 0018 】

さらに、本発明は、希土類焼結磁石の廃磁石に SmCo 磁石が含まれている場合であっても、従来不可避であった SmCo と Nd 磁石屑の RE 精製時の分離工程が全く不要になる。従来は、回収屑を焼結磁石用途への利用を目的としているが、本発明はボンド磁石への適用である。本発明のボンド磁石製造の工程中には、高温処理工程が無く、個々のボンド磁石粉末が独立した磁気特性を示す為任意の混合が可能となる。

30

【 0019 】

すなわち、本発明の特徴は、上述の SmCo 磁石、Nd 磁石の相互の分離回収の問題点が無いこと、現状の磁石再利用工程において不可避である磁石表面処理皮膜の剥離除去が不要、接着剤の除去のほとんど不要かつ再利用出来る磁石材料組成において、表面処理材料である Ni, Al, Cr 量や不純物元素である O や C 量の回収材料制限が全く無く、ほとんどあらゆる希土類焼結磁石市中屑の回収が可能であることである。

【 0020 】

また本磁石の成型工程に関しては、成型時に発生する表面亀裂や破損の極めて少ないために耐食信頼性の優れたボンド磁石粉末を提供できる利点もこの材料が微結晶焼結材料を原料とするという理由で内包する。

40

【 0021 】

本発明の更なる特徴は、このように原料として異方性希土類焼結磁石原料を利用することを特徴とするため為、従来の異方性希土類ボンド磁石よりもはるかに高い保磁力と高い耐熱性(すなわち、後述のように定義する規格化角型比  $p$  値 ( $p = H_k/H_cJ$ ) が高い)が得られることである。

【 0022 】

そして、本発明の希土類系異方性ボンド磁石の性能上の最大の特徴のひとつは耐熱性、具体的には熱減磁特性である。

【 0023 】

50

また、本発明の希土類系異方性ボンド磁石の磁石性能上の更なる特徴の一つは高い耐食性であり、本磁石が長期間の使用に十分適用可能な長期安定性を有していることである。

【発明を実施するための形態】

【0024】

本発明において、使用する原料を市中から回収された異方性希土類焼結磁石のみに限定する。市中回収屑には、等方性Ndボンド磁石、等方性full dense（稠密）Nd磁石もありこれらの回収屑も混合して回収再利用するアイデアもあるが、本発明ではこの再利用方法は取らない。なんとなれば、異方性希土類焼結磁石は合金溶解、粉碎、磁場成型、焼結、熱処理、加工、表面処理の非常に長い工程、即ち屑といえども”付加価値の非常に高い回収屑”であり、リユース、エネルギー再利用効率をそれら混合により低下させるのは望ましくないからである。本発明は高付加価値の異方性希土類焼結磁石材料でかつさまざまな回収屑の素性を考慮し最大限の屑回収再利用を視野に置いたことが特徴である

10

【0025】

本発明の回収された希土類焼結磁石とは、いわゆるNd系焼結磁石であるが、一部市場に使用され回収屑として出回っているSmCo系焼結磁石も原料とすることができることが特徴である。

【0026】

すなわち、最大エネルギー積(BH)maxが96から270kJ/m<sup>3</sup>の磁気特性を有する異方性希土類ボンド磁石を製造するためには、磁石の組成として、鉄(Fe)以外の成分として、少なくともネオジム(Nd)を3~35wt%、ホウ素(B)を0.3~1.3wt%、サマリウム(Sm)を0~30wt%、コバルト(Co)を0~15wt%、ニッケル(Ni)を0~5.5wt%、アルミニウム(Al)を0~5.5wt%を含み、かつ、ニッケル(Ni)とアルミニウム(Al)を合わせて0.3wt%以上を含んでいることが必要である。

20

【0027】

本発明においては、回収された希土類焼結磁石を原料とするため通常ALコーティング、Ni-コーティングがされていることで、AlとNi成分が、通常ニッケル(Ni)とアルミニウム(Al)を合わせて0.3wt%以上、場合によっては、1wt%以上含まれている。AlまたはNiの含有量は、それぞれ最大5.5wt%まで含まれていても十分な磁気特性を発揮することが可能である。

30

【0028】

本発明の磁石には、Fe、Nd、B、Sm、Co、Ni及びAl以外の成分も含まれており、通常その成分は以下の組成(wt%)を有する。

Nd;3-35、Pr;0-10、Dy;0-12、Tb;0-3、Sm;0-30、Ce;0-10、B;0.3-1.3、Co;0-15、Nb;0-1.5、Cu;0-10、Al;0-5.5、Ga;0-1.5、Ni0-5.5、Zr;0-0.5、Hf;0-0.5、Fe;bal。

【0029】

さらに高い磁気特性を実現するに望ましい組成は以下である。

Nd;3-33、Pr;0-6、Dy;0-7、Tb;0-1、Sm;0-10、Ce;0-4、B;0.8-1.1、Co;0-5、Nb;0-0.5、Cu;0-4、Al;0-3.5、Ga;0-0.2、Ni0-3.5、Zr;0-0.2、Hf;0-0.2、Fe;bal。

【0030】

本発明の磁石屑は、より高い磁気性能を発揮させるためにNd磁石の屑だけで構成されているのがもっとも好ましいが、Nd磁石の屑にSmCo系の磁石屑を含んでも高い磁気性能を発揮することが可能である。但しSmCo焼結磁石屑の配合比率が増加するにつれて、その際得られる残留磁束密度Brや最大エネルギー積(BH)max等の磁気特性は単調に減少するため、実用上の観点から、或る上限を持つSm含有量に限定している。

40

【0031】

すなわち、ここで本発明の特徴のひとつは、通常のNd系異方性ボンド磁石では実現出来ない組成領域でも高Sm含有量で優れた磁気特性が実現出来ることであり、具体的にはSm量として最大30wt%、のSm含有量でも可能である。

【0032】

50

ここで通常のNd磁石組成と本原料屑の大きな違いは、Sm,Co,Cu含有量であり、これらはNd磁石の通常の組成外である。これは市中屑の全量または大部分がSmCo系の組成である屑についても従来の再溶解、合金手法では不可能な再利用が、本手法で新たに回収が可能となることを特徴としている。

【0033】

なおエポキシ樹脂塗装品も同様に、樹脂剥離除去をすること無く、本発明の方法で全く問題なく優れた異方性希土類ボンド磁石が得られる。

【0034】

本発明の異方性希土類ボンド磁石は、前記のように回収した磁石を前処理、不純物の除去等をせずにそのまま用いるため、比較的高い比率のO(酸素)量、C(炭素)量をふくむこととなるが、その場合であっても、従来の等方性ボンド磁石および異方性ボンド磁石と同等またはそれ以上の性能を有するものである。

10

【0035】

従来の異方性希土類ボンド磁石の原料合金は、優れた磁気特性を得る為、不純物のO(酸素)とC(炭素)量に限定がある。OやCが多いと磁気特性が著しく低下する。異方性希土類ボンド磁石は高純度希土類金属、鉄、ボロン他必須元素は全て高純度原料を用いる為にこれらを用いて溶解精製された磁石合金のO量は少なくとも0.08wt%、以下、通常は0.01wt%以下、C量は少なくとも0.03wt%以下、通常は0.05wt%が不可欠である。

【0036】

一方、本発明の異方性希土類ボンド磁石の原料合金は、回収された希土類異方性焼結磁石を用いるため、焼結磁石製造工程中の酸化やバインダー添加等で増大したO量、C量を本質的に不可避で含み、その量は少なくともO量が1wt%以上、通常は4wt%以上、C量が0.4wt%以上、通常0.5wt%以上である。

20

【0037】

但し、回収原料の状態によっては磁石が著しく酸化、腐食したり、あるいは磁石回収時に著しく接着剤が付着したり、あるいは塗装が付着している回収屑もあり、これらは十分な磁気特性が得られない。従って、本発明の異方性希土類ボンド磁石が、最大エネルギー積(BH)max 96kJ/m<sup>3</sup>以上の磁気特性を保持するためには、上限としてO量は8wt%以下、望むべくは5wt%以下、C量は7wt%以下、望むべくは4wt%以下であることが必要である。

30

【0038】

本発明の異方性希土類ボンド磁石は、通常使用不可の高い量のO,Cを不純物として有する原料を使用しても、従来の等方性ボンド磁石および異方性ボンド磁石と同等またはそれ以上の優れた磁石特性、耐熱特性、耐食性を具備することを特徴のひとつとしている。

【0039】

そして、本発明の異方性希土類ボンド磁石は、優れた磁気特性を得るためその磁石組織構造に特徴を有する。具体的には、本磁石を構成する磁石粉末平均粒径が30から200μm、さらに望ましくは50から170μmでありなおかつ、各粒子を形成する主相の平均結晶粒径が1から15μmの微細組織構造を有する異方性希土類ボンド磁石である。

40

【0040】

希土類磁石の保磁力は、大きい結晶粒径では多磁区構造になるため保磁力は低下、小さい結晶粒径では単磁区構造ではあるものの酸化あるいは加工ひずみにより保磁力が低下する。よって磁石工程に依存する最適な結晶粒径が存在する。

【0041】

本発明の異方性希土類ボンド磁石の各粒子を形成する主相の平均結晶粒径については、1から15μm(ミクロン)の組織構造を有することを特徴とし、さらに優れた高保磁力を得、なおかつ酸素含有量を抑えるためには、1.5から10μm、さらに好ましくは2.0から7.0μmが最も望ましい。ここで主相とはNd系回収屑の場合はNd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B金属間化合物相が主相であり、SmCo系ではSmCo<sub>5</sub>もしくはSm<sub>2</sub>(Fe,Co,Cu)<sub>17</sub>金属間化合物相が主相であ

50

る。主相の体積比は全磁石の90%以上とする。

【0042】

磁石粉末の平均粒径は高密度かつ生産性を考慮したボンド磁石製造条件からの条件である。一方、本磁石は本質的に回収屑原料であるため、従来のナノコンジットやMQI粉末のような急冷プロセス（いわゆるメルトスピニング）でサブミクロン以下の平均結晶粒径を有するボンド磁石と本質的に異なり、またNd系原料のためSmFeNボンドとは磁石組成が異なる。

【0043】

なおここで平均粒径測定は空孔透過方法（フィッシャ・サブサイズ・サイザー等）による測定値であり、結晶粒径は2次元金属組織写真を画像解析して導出した結晶粒径である。

10

【0044】

続いて、異方性希土類ボンド磁石の製造方法について説明する。

本発明の希土類異方性焼結磁石を原料とする異方性希土類ボンド磁石の製造方法は、希土類異方性焼結磁石を不活性雰囲気下で機械的に粉碎する工程と、前記粉碎した材料を高真空または不活性雰囲気下で400から600の温度で保持時間12時間以上のひずみ取焼鈍処理する工程と、前記ひずみ取焼鈍処理した材料とバインダーを混練し、磁場成型する工程とからなることを特徴とする。

【0045】

要望する最大エネルギー積（BH）maxを得る為に、磁石回収屑の成分分析と磁気特性測定は不可欠である。

20

【0046】

すなわち、最大エネルギー積（BH）maxが96から270kJ/m<sup>3</sup>の範囲の任意の望む磁気特性を有する異方性希土類ボンド磁石を製造するためには、あらかじめ、回収した希土類焼結磁石をサンプリングして、その回収磁石素材の成分分析を行って、磁石の組成として、ネオジウム（Nd）とサマリウム（Sm）の組成を確認しておく必要がある。その分析値から判断して、望む磁気特性を得る為にさらに他の成分が既知の磁石屑を追加配合調整してボンド磁石を作成することが出来る。ただそのためには種々の回収屑で後述するCR値のデータを蓄積する必要がある。

【0047】

なお、回収された希土類異方性焼結磁石が単一の磁石屑である場合は、この成分分析は省略することができるが、特に、回収された希土類異方性焼結磁石が、種々雑多な場合は必須となり、そのサンプリング数も多い方が好ましい。

30

【0048】

なお廃却前の焼結磁石の磁気特性は回収屑が混合市中屑の場合、通常n=3~10ヶサンプリングした磁気特性を代表磁気特性とすることができる。磁石屑成分分析も同様にICP等により、同じくn=3~10ヶサンプリング分析を行う。

【0049】

得られた成分分析値と磁気特性により、1種以上の種類の屑を混合して使用することも可能である。

成分分析によりサマリウム（Sm）が、30wt%以上検出された場合は、サマリウムコバルト焼結磁石の混入率が高く、Nd磁石ベースのよりも高い磁気特性を有する優れた異方性希土類ボンド磁石の製造には適さない原料である。

40

【0050】

すなわち、回収された希土類異方性焼結磁石に成分分析の結果30wt%以上のサマリウムが検出され、サマリウムコバルト焼結磁石の混入が多い場合は、該当回収屑を他のNd磁石ベースの回収屑と希釈混合等することにより使用する。

本回収工程において、回収した希土類焼結磁石素材を有効活用し、最適な製造工程にて処理し最大限の異方性希土類ボンド磁石磁気特性を発揮する為に、用いた磁石素材の成分分析は不可欠である。

【0051】

50

成分分析はICPあるいはX線蛍光分析による。また同様の理由で回収原料の磁気特性測定を行うことを必須とする。必要とする磁気特性を発揮するため、1種以上の磁石素材屑を混合して使用することも可能で、本製造方法の特徴である。成分分析と磁気特性測定により、屑性能評価を行い、用途により使用する屑の選別、配合を調整して最大の最大エネルギー積(BH)maxを得て最適化有効する必要があるためである。

【0052】

前記した希土類異方性焼結磁石を原料とする異方性希土類ボンド磁石の製造方法の工程を以下詳細に述べる。

【0053】

まず回収された磁石を粉砕する。粉砕はボールミル、アトライター、ジョークラッシャ等機械粉砕で行うことが可能である。ジョークラッシャで粗粉砕した後、ボールミル微粉砕するといった2段処理も有効で、粒度分布を均一に出来、磁気特性を向上出来る。なお粉砕雰囲気は酸化防止の為、Ar,N等の不活性雰囲気もしくはアルコール、アセトン等の溶媒中で行う。

10

【0054】

本回収屑は、従来の磁石製造工程で不可欠とされている水素粉砕を一切必要としない粉砕工程を用いる。水素粉砕を用いると、プレス成型時にマイクロクラックを発生して、粉末の著しい酸化により磁気特性が低下するためである。

【0055】

微粉砕は一般のボールミル粉砕等を用いるが、用いる原料が希土類焼結磁石という微結晶で極めて硬い合金のため、従来の高速で2から6時間のボールミルでは無く、12から24時間の低速のボール工程を用いる方が磁気特性が高い。

20

【0056】

なお粉砕粉末の平均粒径は30から200 $\mu\text{m}$ 、さらに望ましくは50から170 $\mu\text{m}$ にすることが必要である。

【0057】

後述するように、プレス成型時に充填密度を上げることにより、磁気特性を向上させるため、粒度の異なる2種類の粉末を用いることも有効である。特に成形性の悪い本粉末は2種類の粉末を用いる等の成型条件改善が重要である。

【0058】

本磁石製造工程の特徴の一つは水素粉砕を用いない工程である。水素粉砕は、Sm磁石やNd磁石が本質的に水素吸蔵、水素脆性を有するため、しばしば用いられている製造手法であるが、希土類屑回収産業が社会スキームとして安価、安全に大量に処理普及出来るべく汎用性のある提案とする為、水素粉砕工程を一切用いない工程を提案している。勿論水素粉砕による粉砕方法を除外するものではない。

30

【0059】

本磁石粉末は粉砕後に高真空または不活性雰囲気中で熱処理が必要不可欠である。熱処理を行わないと、従来特許に見られるように(特願平4-303254)得られる保磁力の値HCJが800kA/m(10kOe)以下と極めて低く、磁石の耐熱特性が低い。

熱処理温度は400~600の熱処理温度であるが、熱処理時間が長時間の12時間以上、望むべくは48時間以上必要である。600を越えると、粉末が溶着、さらに拡散が起こるので、これを防ぐ為に出来れば500以下が望ましい。400の低温ではひずみとり熱処理時間が長く必要であり24時間以上、あるいは48時間以上が望ましい。

40

【0060】

本ひずみとり熱処理は機械粉砕時に生じたマイクロクラック等不可避の機械ひずみの焼鈍が目的であるが、なお熱処理中の磁石粉末の酸化を防ぐ為、Ti等のゲッター粉末を試料別容器に挿入して行うのが望ましい。

【0061】

得られた粉末を次にバインダー混練する。バインダーとしては圧縮成型では、エポキシ樹脂、射出成型ではPA樹脂(ナイロン12等)、耐熱性PPS等の熱可塑性樹脂を用いる。高

50



い磁気特性を維持するために、バインダー量は成形性を損なうことの無い下限の添加量に抑えることが必要で、圧縮成型では3-7wt%、射出成型では5-10wt%にする。そのほか、酸化防止剤、ステアリン酸系の金型潤滑剤等を製品形状寸法に依じて、0.8wt%以下添加してもよい。

#### 【0062】

本粉末の最大の問題点はプレス成型性である。原料は磁石合金屑であり、通常の溶解合金と異なり結晶粒径が非常に均一微細でかつ機械的に硬い。そのため、粉末の粒度分布が非常に急峻で、成形性が極めて困難、通常の希土類焼結磁石の成型圧力の0.5-1.2Ton/cm<sup>2</sup>では十分な成型体密度が得られない。圧縮プレス成型では磁場プレス方式が採用可能で、直角成型、平行成型、ラジアル成型、径2極成型等の磁石形状に対応した成型が可能である。成型圧力は高成型密度化により高い磁気特性を実現するため0.9Ton/cm<sup>2</sup>以上、望ましくは6.5Ton/cm<sup>2</sup>以上、さらに望ましくは8.5Ton/cm<sup>2</sup>以上である。このように通常の焼結磁石製造工程で用いられている成型圧力よりも極めて高い圧力が必要であることが特徴であり、金型の高寿命等は今後の量産上の課題である。

10

#### 【0063】

磁石成型工程において2種類以上の粒度を有する粉末を用いて磁場成型する手法も有効であるが、本原料合金系ではこの手法は極めて有効で、混合する2種の粉末の平均粒度比C<sub>p</sub>がC<sub>p</sub>=0.1~0.3を有する粉末を用いた場合に磁気特性が優れる。なお望ましくはC<sub>p</sub>=0.15~0.25である。

#### 【0064】

またこの2種の粉末の混合配合比K<sub>p</sub>とすると、K<sub>p</sub>=1.5~4.0に混練すると高密度化され高い優れた磁気特性が得られる。K<sub>p</sub>はさらに望ましくはK<sub>p</sub>=2.0~3.5である。なおK<sub>p</sub>は(粗大粒子重量)/(微小粒子重量)である。本C<sub>p</sub>、K<sub>p</sub>の条件は射出成型プレスにおいても同様である。

20

#### 【0065】

本粉末は成型プレスが非常に困難であることから、成型体密度を上げやすい湿式成型も極めて有効な方法である。湿式成型法は既に希土類焼結磁石の製造方法で用いられているが、通常乾式工程より高コストでありまた焼結時に脱溶媒工程が必要なため限定的に採用されているが、市中回収屑の成型方法として報告された特許は見当たらない。本粉末は、この湿式成型が極めて有効であることを見出した。

30

#### 【0066】

本希土類焼結屑粉末は上述のようにプレス成形性の悪い粉末である為、圧縮成型もしくは湿式成型に続いて冷間等方性プレス(以下CIP)をする2段プレス成型を採用する。CIPによる高成型圧力を印加して成型体を高密度化することにより高磁気特性化することが有効であるからである。CIPが効果のある圧力は200MPa以上、望ましくは300MPa以上である。CIP媒体はグリセリン等の溶媒、CIP圧力印加時間は10から20分である。

#### 【0067】

湿式プレス成型は主として、主として金型表面の摩擦係数の改善による高密度化に、CIPは全方向からの静水圧による高密度化に異なった寄与をするため、湿式成型とCIPを組み合わせた複合的な効果を有する多段プレスが有効である。これら粉体成型は従来の希土類焼結磁石の効果にはほとんど顕在しなかった希土類焼結屑粉末の機械的性質、粒度分布等の粉末物性に固有の特徴である。

40

#### 【0068】

湿式成型に用いる溶媒はアルコール系やアセトン等の有機溶媒あるいは潤滑オイルやガソリン等が可能である。これら溶媒下の磁場成型により、プレス成型圧力を通常の乾式圧力よりも20-30%低減可能であり、かつ成型時の剥離、割れ、欠け等が著しく改善される。湿式成型では本質的に不可避の脱溶媒工程が必要であるが、本提案の異方性希土類ボンド磁石の製造方法において一切不要であるため極めて有効な成型となる。

#### 【0069】

またプレス磁石製造方法において、高密度化を図る為、磁場成型工程中にエアタッピング

50

、超音波タッピング等の粉末充填タッピング工程が高タップ密度を得て本粉末の成型手法として極めて有効である。タッピングは磁場成型の金型に振動伝達盤を取り付ける等により、圧搾空気の圧力振動を伝播して行う。あるいは、予め仮プレスパッケージ内でエアタッピングを行ったグリーン成型体を金型内に挿入することにより、高密度化する。

【0070】

圧縮成型、射出成型で得られた磁石はそのまま製品として実使用可能であるが、Niメッキ、エポキシコーティング、等を行うことにより、腐食性、耐食性を要求される用途への適用も可能である。これら表面処理を施すことにより、通常市販の異方性ボンド磁石と同等またはそれ以上の耐食信頼性を有する。耐食性評価は、具体的には80 x 90 %RH条件において行う。

10

【0071】

以上の異方性希土類ボンド磁石の製造方法により、最大エネルギー積(BH)maxが96から270 kJ/m<sup>3</sup>のエネルギー積と、高い規格角型比p0.70を実現、さらに分析値に基づいて焼結磁石屑を選定する事により、保磁力HcJが800 kA/m以上の優れた磁気特性を実現できる。

【0072】

本発明においては、廃棄される希土類焼結磁石を再利用することを目的とするため、廃棄する前に当初磁石材料が保有していた磁気特性の再現性を確保するのではなく、廃棄磁石材料の形態、不純物、コーティングの有無等に応じて、一段または数段下(カスケード)の磁気特性を有する磁石材料を具現化して有効利用することになるが、それでもその磁力は従来の等方性ボンド磁石および異方性ボンド磁石と同等またはそれ以上の性能を有するものである。

20

【0073】

ここで実施例に示すCR率の定義を以下示す。

廃却前の焼結磁石の最大エネルギー積を、作製された異方性ボンド磁石の最大エネルギー積( )とし、CR率 = /

【0074】

本発明においてCR率は、通常0.3から0.7になる。CR率は、回収した磁石を前処理なしに粉砕するだけで原料とするため0.7が上限であり、通常は0.65もしくは大量生産では最大0.60が量産可能レベルである。下限は磁石コスト/磁気パフォーマンス上、通常0.30以上、望ましくは0.45、さらに望ましくは0.55以上である。CR率が0.3以下では通常の市販等方性ボンド磁石に対してコストメリットが少ない。

30

【0075】

最大エネルギー積(BH)maxが96から270 kJ/m<sup>3</sup>のエネルギー積と、高い規格角型比p0.70を実現、さらに分析値に基づいて焼結磁石屑を選定する事により、保磁力HcJが800 kA/m以上の優れた磁気特性を実現できる。

このことは、永久磁石の実用上極めて重要である耐熱性、具体的には熱減磁特性が十分に高いことを示している。

【0076】

一般に永久磁石の熱減磁特性を上げるには、保磁力HcJと減磁曲線の角型性Hkが大きいことが必要である。ここでHkはJ-H減磁曲線上で磁化Jの値が残留磁束密度(Br)の90%となる磁界Hの値として定義される。ただし、角型性Hkの値は永久磁石材質で異なる為、数値を規格化して評価する必要があり、本発明では、便宜的に保磁力HcJで規格化した値、規格化角型比pをp = Hk/HcJで定義して用いる。

40

【0077】

現在の異方性希土類ボンド磁石の熱減磁特性が実用上いまだ不十分な最大の理由は、保磁力HcJの値が低いことと、規格化角型比p値が低いことである。現在の異方性ボンド磁石はHDDR又はd-HDDRという工程を用いているHDDR型磁石とSmFe合金を窒化処理して作成するSmFeN型の2種類である。これらHDDR型異方性希土類ボンド磁石もSmFeN型異方性

50

希土類ボンド磁石いずれも焼結磁石並みの高い保磁力 $H_cJ$ と高い規格化角型比 $p$ 値は得られていない。

【0078】

特に熱減磁特性に大きく影響する規格化角型比 $p$ 値は、磁石の製造プロセス、均一性に大きく起因する。HDDR磁石ではその再結合過程(Desorption)工程で結晶粒を完全に同一方向に配向形成させる異方性化技術は非常に困難、またSmFeNに関してもSmFe合金に表面から窒素を均一に拡散かつ均一に反応させる技術が非常に難しく、高い規格化角型比 $p$ は得られていない。

【0079】

一方、希土類焼結磁石は数ミクロンの微小単結晶に機械的に微粉碎された粉末を磁場成型しているため極めて結晶粒配向度が高く、かつ本発明は粉末粒子平均結晶粒径が30から200ミクロンと当初の結晶粒よりもはるかに大きいため、結晶粒配向度を乱すことなく高い規格化角型比 $p$ がそのまま比較的容易に実現可能である。本発明磁石は通常工程においても規格化角型比0.70以上、最大0.90以上を有する極めて $p$ 値の高い、即ち熱減磁等の温度特性の優れた異方性希土類ボンド磁石となる。優れた耐熱性を有するためには、保磁力が高いことに加えて、規格化角型比 $p$ が高いことが不可欠である。

10

【0080】

本発明は、このように原料として異方性希土類焼結磁石原料を利用することを特徴とするため、従来の異方性希土類ボンド磁石よりも本質的にはるかに高い保磁力とかつ高い $p$ 値が得られる。

20

【0081】

現在の市販の異方性ボンド磁石の保磁力 $H_cJ$ は1,100から1,500kA/m、規格化角型比 $p$ は、0.2から0.3、最大でも0.4である。この等方性ボンド磁石耐熱性、具体的には熱減磁は大よそ約120 - 140 である。

一方、本発明の異方性ボンド磁石は、保磁力 $H_cJ$ が最大で2,000kA/m、規格化角型比 $p$ は通常工程でも0.70-0.85、最大で焼結磁石並みの0.90以上が可能である。保磁力が2,000kA/m、規格化角型比 $p$ が0.85の優れた特性を有する本発明磁石によれば、耐熱性200 が実現可能である。このように極めて高い角型性を有する異方性焼結磁石材料を原料とするため、本発明の磁石は本質的に極めて優れた規格化角型比 $p$ を有する高耐熱性の異方性希土類ボンド磁石となる。

30

【0082】

このように、本発明の希土類系異方性ボンド磁石の性能上の最大の特徴のひとつは耐熱性、具体的には熱減磁特性である。

【0083】

熱減磁特性は或る $P_c$ (パーミアンス係数、通常 $P_c=1$ もしくは2)で高温、長時間(通常1000hr)後の磁束の減少量で評価される。その磁束減少量の目安が通常5%となる最高温度で耐熱性を評価する。現在異方性希土類ボンド磁石の耐熱性は通常約120 である、と言われるのは、1000hr後の磁束減少量が120 で5%となるため、実用上はこの120 温度が使用可能上限温度であるという意味である。

40

【0084】

現状市販の異方性希土類ボンド磁石耐熱性は大よそ約120 - 140 である。たとえば異方性のSmFeNボンド磁石は、量産レベルで高々130 、研究レベルで最高温度150 が報告されている。(例えば日本ボンド磁性材料協会 BMNews、No43, 2010)。

【0085】

本発明は、回収屑に含まれるNd磁石回収屑が量的に多い市場であることから基本的にNd基の材料系であり、その耐熱性が通常でも140 、さらに180 を越える良好な温度特性を有する異方性ボンド磁石である。

【0086】

本発明は具体的には $P_c=2$ , 140 x 1000hr条件で熱減磁5%以下、さらには同上条件下で160 を超えるもの、さらに回収屑を選別利用かつバインダー種類と添加量等の磁粉以

50

外の製造条件も併せて選定することにより耐熱性180 を超えるきわめて優れた耐熱性を提供することができる。

【0087】

一方では、現在市販されている HDDRの製造方法による異方性ボンド磁石の熱減磁特性は $P_c=2, 150 \times 1000hr$ で、熱減磁約11%と大きいことが知られている。

【0088】

本発明の希土類系異方性ボンド磁石の磁石性能上のもう一つの特徴は高い耐食性であり、本磁石が長期間の使用に十分適用可能な長期信頼性と安定性を有していることである。

【0089】

圧縮成型、射出成型で得られた本磁石はそのまま製品として実使用可能であるが、Niメッキ、エポキシコーティング、等の表面処理を施すことにより、通常市販の異方性ボンド磁石以上の高耐食信頼性を有する。耐食性評価は、通常実施されている80 x 90%RH条件において行い、通常異方性希土類ボンド磁石材料は200から400時間が耐食性の限界であることが知られている。

10

【0090】

本発明の希土類異方性ボンド磁石は80 x 90%RH条件下での耐食性が約300時間以上有する。さらに十分な表面処理を施すことにより最長で500時間まで外貌変化の無い優れた耐食性を有するものも可能である。

【0091】

温度と湿度の腐食加速試験から推定される寿命予測に参考までに換算すると、80 x 90%RH x 500時間は、例えば23.8 x 78%RHで約20年、16.2 x 67%RHで約115年に相当し、本希土類異方性ボンド磁石が実用上十分な長期耐食性、長期信頼性を有していることがわかる。

20

【0092】

通常市販の異方性ボンド磁石材料では200から400時間が耐食性の限界であることが知られている。本発明の異方性ボンド磁石はこれらより同等またはそれ以上の約300時間、さらに十分な表面処理を施すことにより最長で500時間まで外貌変化の無い優れた長期耐食性、長期信頼性を有する磁石も可能である。

【実施例】

【0093】

30

<実施例1>

出発原料の市中回収屑の磁気特性測定とICP成分分析(n=3)を行い、以下の特性と分析値を得た(表1-1、表1-2)。この回収屑のO量、C量の分析値は、おのおの4.3wt%、0.8wt%であった。また平均結晶粒径はn=5測定により、6.2μmであった。この合金粉末をアセトン中でボールミル粉碎行い、プレス成型粉末を得た。平均粒度は75μmである。得られた粉末は550 x 24hrでTiゲッター材を入れた高真空中で熱処理後、この成型粉末にエポキシバインダーを4.5t%添加して混練してコンパウンドを得、磁場中で4.0Ton/cm<sup>2</sup>で圧縮成型した後、さらに300MPaの圧力で10分間CIP処理する。得られた異方性ボンド磁気特性と回収した磁石の磁気特性(n=5)測定した平均磁気特性と共に以下示す。

40

本回収屑はNd磁石単独の成分であり得られたCRは0.64であった。

【表1】

表1-1 成分分析

成分	Nd	Pr	Dy	Tb	Sm	Ce	B	Co	Nb	Cu	Al	Ga	Ni	Zr	Hf
(wt%)	27.4	1.4	2.1	0	0	0	1.1	1.2	0.3	0.3	0.2	0.1	0	0	0

残部; Fe

## 【表 2】

表 1-2 磁気特性

磁気特性	Br (T)	HcJ (kA/m)	p	(BH) <sup>max</sup> (kJ/m <sup>3</sup> )	CR
回収屑原料	1.37	980	0.87	360	-
本発明の異方性ボンド磁石	1.03	910	0.79	232	0.64

10

## 【0094】

## &lt;実施例 2&gt;

出発原料の市中回収屑の磁気特性測定と ICP 成分分析 (n=3) を行い、以下の特性と分析値を得た (表 2-1、表 2-2)。この回収屑の O 量、C 量の分析値は、おのおの 4.8 wt%、0.9 wt% であった。また平均結晶粒径は n=5 測定により、8.2 μm であった。この合金粉末をアセトン中でボールミル粉碎行い、プレス成型粉末を得た。平均粒度は 51 μm である。得られた粉末は 550 x 24hr で Ti ゲッター材を入れた高真空中で熱処理後、この成型粉末にエポキシバインダーを 4.5% 添加して混練してコンパウンドを得、4.0 Ton/cm<sup>2</sup> で磁場中圧縮成型した後、さらに 300 MPa の圧力で 10 分間 CIP 処理する。

本回収屑は Nd 磁石と Sm を一部含有する成分であり得られた CR は 0.69 であった。

20

## 【表 3】

表 2-1 成分分析

成分	Nd	Pr	Dy	Tb	Sm	Ce	B	Co	Nb	Cu	Al	Ga	Ni	Zr	Hf
(wt%)	23.5	0.8	0.6	0	3.7	0	0.8	7.8	0.6	6.3	1.2	0.2	0	0.3	0

残部 ; Fe

## 【表 4】

表 2-2 磁気特性

磁気特性	Br (T)	HcJ (kA/m)	p	(BH) <sup>max</sup> (kJ/m <sup>3</sup> )	CR
回収屑原料	1.28	850	0.83	305	-
本発明の異方性ボンド磁石	1.05	682	0.72	210	0.69

30

## 【0095】

## &lt;実施例 3&gt;

出発原料の市中回収屑の磁気特性測定と ICP 成分分析 (n=3) を行い、以下の特性と分析値を得た (表 3-1、表 3-2)。この回収屑の O 量、C 量の分析値は、おのおの 3.5 wt%、2.4 wt% であった。また平均結晶粒径は n=5 測定により、9.5 μm であった。この合金粉末をアセトン中でボールミル粉碎行い、プレス成型粉末を得た。平均粒度は 85 μm である。得られた粉末は 550 x 24hr で Ti ゲッター材を入れた高真空中で熱処理後、この成型粉末にナイロン 12 バインダーを 6.5 wt% 添加して混練してコンパウンドを得、磁場中で射出成型した。得られた異方性ボンド磁気特性の回収した磁石の磁気特性から導出した CR は 0.47 であった。

40

本回収屑は Nd 磁石と Sm を一部含有する成分であるが、SmCo 磁石の含有量は実施例 2 よりも多く、得られた CR は 0.47 であった。

## 【表 5】

表 3-1 成分分析

成分	Nd	Pr	Dy	Tb	Sm	Ce	B	Co	Nb	Cu	Al	Ga	Ni	Zr	Hf
(wt%)	24.9	0	0.5	0	5.1	0	0.9	10.6	0.7	8.5	0.7	0.5	0	0.5	0

残部 ; Fe

## 【表 6】

表 3-2 磁気特性

磁気特性	Br (T)	HcJ (kA/m)	p	(BH) <sub>max</sub> (kJ/m <sup>3</sup> )	CR
回収屑原料	1.12	924	0.81	228	-
本発明の異方性ボンド磁石	0.79	820	0.7	108	0.47

10

## 【 0 0 9 6 】

## &lt; 実施例 4 &gt;

出発原料の市中回収屑の磁気特性測定と I C P 成分分析 (n=3) を行い、以下の特性と分析値を得た (表 4-1、表 4-2)。この回収屑の O 量、C 量の分析値は、おのおの 6.9 wt%、3.2 wt% であった。なお用いた市中屑はほとんど全量 Ni メッキ品の回収屑である。また平均結晶粒径は n=5 測定により、7.0 μm であった。この合金粉末をまずジョークラッシュャで粗粉碎した後、アセトン中でボールミル微粉碎行い、プレス成型粉末を得た。平均粒度は 63 μm である。得られた粉末は 550 x 24hr で Ti ゲッター材を入れた高真空中で熱処理後、この成型粉末にエポキシバインダーを 4.5 t % 添加して混練してコンパウンドを得、3.5 Ton/cm<sup>2</sup> で磁場中圧縮射出成型した後、さらに 3 0 0 MPa の圧力で 1 0 分間 C I P 処理する。

20

またエアタッピング効果を検証する為、磁場成型時に圧搾空気を用いたエアタッピングを行って、成型前のグリーン密度を高めた後に成型しさらに圧縮成型後、さらに 3 0 0 MPa の圧力で 1 0 分間 C I P 処理して異方性ボンド磁石を作成した。

30

本回収屑は全量 Nd 磁石屑の成分であった。

得られた異方性ボンド磁気特性の C R は 0.61, エアタッピングすると CR は 0.68 と向上することがわかった。エアタッピング有り無しにかかわらず、Ni メッキ回収屑も良好な磁気特性が得られることを確認した。

## 【表 7】

表 4-1 成分分析

成分	Nd	Pr	Dy	Tb	Sm	Ce	B	Co	Nb	Cu	Al	Ga	Ni	Zr	Hf
(wt%)	28.4	1.3	0.6	0	0	0	1	1.2	0.4	0.1	0.2	0	4.8	0	0

残部 ; Fe

40

【表 8】  
表 4-2

磁気特性	Br (T)	HcJ (kA/m)	p	(BH) <sub>max</sub> (kJ/m <sup>3</sup> )	CR
回収屑原料 (Niメッキ)	1.23	804	0.96	271	-
本発明の異方性ボンド磁石	0.95	605	0.9	166	0.61
本発明の異方性ボンド磁石 (成型時エアタッピング処理)	1.02	613	0.92	185	0.68

10

## 【0097】

## &lt; 実施例 5 &gt;

出発原料の市中回収屑の磁気特性測定と ICP 成分分析 (n=3) を行い、以下の特性と分析値を得た (表 5-1、表 5-2)。この回収屑の O 量、C 量の分析値は、おのおの 5.8 wt%、1.8 wt% であった。また平均結晶粒径は n=5 測定により、8.7 μ であった。この合金粉末をアセトン中でボールミル粉碎行い、プレス成型粉末を得た。平均粒度は 95 ミクロンである。得られた粉末は 550 °C x 24hr で Ti ゲッター材を入れた高真空中で熱処理後、この成型粉末に PPS バインダーを 6.5 wt% 添加して混練してコンパウンドを得、磁場中で射出成型した。成型後にエポキシスプレーコーティングを施して信頼性も確認した。本回収屑は Nd 磁石と Sm 等を一部含有する成分であり得られた CR は 0.49 であった。また本発明の磁石の耐食性、信頼性を市販の SmFeN 異方性ボンド磁石と共に評価した (表 5-3)。比較例の市販 SmFeN 異方性ボンド磁石は入手後、本発明磁石と同一エポキシスプレーコーティング条件で処理した。耐食性を 80 °C x 90% RH の条件で試験したところ、市販の SmFeN 赤点錆発生磁石は 300 時間で既に微小赤点錆発生、一方本発明磁石は 600 時間まで錆発生は起こらず、現状市販異方性ボンド磁石よりも極めて優れた長期耐食性、長期安定性を有することがわかった。これは用いた原料が微細かつ均一な組織を有する焼結磁石のため、結晶粒界等からの腐食とその内部進行が非常に起こりにくい為と推定している。

20

30

## 【表 9】

表 5-1 成分分析

成分	Nd	Pr	Dy	Tb	Sm	Ce	B	Co	Nb	Cu	Al	Ga	Ni	Zr	Hf
(wt%)	23	2.9	1.5	0	5.1	0.5	0.8	10.8	0.1	8.9	0.2	0.2	0.3	0.1	0

残部 ; Fe

## 【表 10】

表 5-2 磁気特性

磁気特性	Br (T)	HcJ (kA/m)	p	(BH) <sub>max</sub> (kJ/m <sup>3</sup> )	CR
回収屑原料	1.06	870	0.85	196	-
本発明の異方性ボンド磁石	0.63	810	0.74	96	0.49

40

## 【表 1 1】

表 5-3 耐食信頼性 80°C x 90%RH

保持時間 (hr)	300	500	600
本発明の異方性ボンド磁石	外貌変化無し	外貌変化無し	赤色点錆発生
(比較例) 市販SmFeN異方性ボンド磁石	微小赤点錆発生	赤色点錆発生	赤色点錆発生

## 【 0 0 9 8 】

## &lt; 実施例 6 &gt;

出発原料の市中回収屑の磁気特性測定とICP成分分析(n=3)を行い、以下の特性と分析値を得た(表 6-1、表 6-2)。この回収屑のO量、C量の分析値は、おのおの4.1wt%、2.6wt%であった。Nd磁石の一部は大部分Al(アルミニウム)表面処理の回収屑であった。また平均結晶粒径はn=5測定により、6.3μmであった。この合金粉末をアセトン中でボールミル粉碎を行い、粉碎時サンプリングにより、プレス成型粉末を得た。各々平均粒度は14.59μmである。(Cp=0.24)

これら得られた粉末は550 x24hrでTiゲッター材を入れた高真空中で熱処理後、この2種の粉末をKp=2.0で配合し混合、さらにこの成型粉末にエポキシバインダーを4.5wt%添加して混練してコンパウンドを得、4.0Ton/cm<sup>2</sup>で磁場中圧縮成型、その後さらに300MPaの圧力で10分間CIP処理する。

得られた異方性ボンド磁気特性のCRは0.43であり、回収屑はAl表面処理したNd磁石、一部SmCo磁石であったが、良好な異方性ボンド磁石の磁気特性が得られている。

## 【表 1 2】

表 6-1 成分分析

成分	Nd	Pr	Dy	Tb	Sm	Ce	B	Co	Nb	Cu	Al	Ga	Ni	Zr	Hf
(wt%)	20.1	0	4.7	1.2	2.6	0	0.9	5.4	0.2	4.4	3.2	0	0	0.2	0

残部; Fe

## 【表 1 3】

表 6-2 磁気特性

磁気特性	Br (T)	HcJ (kA/m)	p	(BH) <sub>max</sub> (kJ/m <sup>3</sup> )	CR
回収屑原料	1.18	1750	0.79	255	-
本発明の異方性ボンド磁石	0.71	1509	0.71	110	0.43

得られた異方性ボンド磁石の熱減磁特性を比較の為市販の等方性ボンド磁石、異方性ボンド磁石と比較評価した(表 6-3)。熱減磁評価条件はPc=2, 保持温度が140 もしくは180 で1,000hrである。本表にあるように、本発明磁石は140 で1.8%、180 においても3.6%という極めて低い熱減磁量を達成していることがわかる。一方、比較例の市販の等方性、異方性いずれの磁石においても熱減磁量が140、180 いずれの温度においても極めて熱減磁量が大きく、本発明磁石が優れた耐熱使用温度を具備していることがわかる。この理由は、用いた回収焼結磁石屑が成分分析結果からわかるようにDyやTb等の多い高耐熱性を有する磁石成分であることに大きく起因していると推測する。

10

20

30

40



## 【表 1 4】

表 6 - 3 熱減磁特性比較

単位 ; %

磁石材料	140℃	180℃
本発明	1.8	3.6
(比較例 1) MQ I 社製等方性ボンド磁石	4.6	9.2
(比較例 2) 市販異方性SmFeNボンド磁石	5.2	10.3

10

## 【 0 0 9 9 】

## &lt; 実施例 7 &gt;

出発原料の市中回収屑の磁気特性測定と I C P 成分分析 (n=3) を行い、以下の特性と分析値を得た (表 7 - 1、表 7 - 2)。この回収屑の O 量、C 量の分析値は、おのおの 3.7 wt%、2.1 wt% であった。また平均結晶粒径は n=5 測定により、7.2 μm であった。この合金粉末をアセトン中でボールミル粉碎行い、プレス成型粉末を得た。平均粒度は 58 μm である。得られた粉末は 550 x 24hr で Ti ゲッター材を入れた高真空中で熱処理後、この成型粉末にエポキシバインダーを 4.5 wt% 添加して混練してコンパウンドを得、さら

20

## 【表 1 5】

表 7 - 1 成分分析

成分	Nd	Pr	Dy	Tb	Sm	Ce	B	Co	Nb	Cu	Al	Ga	Ni	Zr	Hf
(wt%)	21.4	0	8.5	0.8	0	0	1.2	1.5	0.4	0.2	0.3	0.4	0	0	0

残部 ; Fe

## 【表 1 6】

表 7 - 2 磁気特性

磁気特性	Br (T)	HcJ (kA/m)	p	(BH) <sup>max</sup> (kJ/m <sup>3</sup> )	CR
回収屑原料	1.14	2180	0.9	245	-
本発明の異方性ボンド磁石	0.96	1980	0.73	152	0.62

30

得られた異方性ボンド磁石の熱減磁特性を比較の為市販の等方性ボンド磁石、異方性ボンド磁石と比較評価した (表 7 - 3)。熱減磁評価条件は Pc=2、保持温度が 140 もしくは 180 で 1,000hr である。本表にあるように、本発明磁石は 140 で 2.3%、180 においても 4.2% という極めて低い熱減磁量を達成していることがわかる。一方、比較例の異方性 SmFeN ボンド磁石は熱減磁量が 140、180 いずれの温度でも極めて大きく、本発明磁石が優れた耐熱使用温度を具備していることがわかる。この理由は、用いた回収焼結磁石屑が成分分析からわかるように Dy や Tb 等の多い高耐熱性を有する焼結磁石であることに大きく起因していると推測する。

40

## 【表 17】

表 7-3 熱減磁特性比較

単位； %

磁石材料	140℃	180℃
本発明	2.3	4.2
(比較例1) 市販異方性SmFeNボンド磁石	5.1	11.7

10

## 【産業上の利用可能性】

## 【0100】

希土類ボンド磁石の市場は、JABM（日本ボンド磁性材料協会）によれば、2008年統計では国内市場が約100億、全世界での市場は約500億と推定されている。また市場の伸び率は年間約11%、今後も需要拡大が予測されている。

現在の市販の希土類ボンド磁石は大部分が等方性ボンド磁石である。異方性ボンド磁石は現在までその市場性、磁石材料性能、量産コスト等理由で大量に普及可能な材料が無いのが現状であり、希土類異方性ボンド磁石の希土類ボンド磁石の全市場に対する現在の市場占有率は数%と非常に低い。

本発明の磁石材料が入手可能となれば、まず等方性から本発明の異方性ボンド磁石への転換が急速に進むであろう。即ち等方性から異方性への転換により、電子部品の小型、軽量、省資源、省エネルギー、高効率化が可能となる。

また従来等方性ボンド磁石では実現不可能であった新規な用途、分野への適用も可能となる。

20

フロントページの続き

(51) Int.Cl.			F I			テーマコード(参考)
<b>B 2 2 F</b>	<b>3/00</b>	<b>(2006.01)</b>	<b>B 2 2 F</b>	<b>3/00</b>	<b>C</b>	