

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第3548568号

(P3548568)

(45) 発行日 平成16年7月28日(2004.7.28)

(24) 登録日 平成16年4月23日(2004.4.23)

(51) Int. Cl.<sup>7</sup>

F I

HO 1 F	1/053	HO 1 F	1/04	A
B 2 2 D	11/06	B 2 2 D	11/06	3 6 O B
B 2 2 F	9/04	B 2 2 F	9/04	C
C 2 1 D	6/00	C 2 1 D	6/00	B
HO 1 F	1/06	HO 1 F	1/06	A

請求項の数 6 (全 6 頁)

(21) 出願番号 特願2003-45275 (P2003-45275)  
 (22) 出願日 平成15年2月24日(2003.2.24)  
 (62) 分割の表示 特願平4-128936の分割  
 原出願日 平成4年5月21日(1992.5.21)  
 (65) 公開番号 特開2003-303709 (P2003-303709A)  
 (43) 公開日 平成15年10月24日(2003.10.24)  
 審査請求日 平成15年2月24日(2003.2.24)

(73) 特許権者 000176660  
 株式会社三徳  
 兵庫県神戸市東灘区深江北町4丁目14番  
 34号  
 (74) 代理人 100081514  
 弁理士 酒井 一  
 (74) 代理人 100082692  
 弁理士 蔵合 正博  
 (72) 発明者 山本 和彦  
 兵庫県神戸市東灘区深江北町4-14-3  
 4 株式会社三徳内  
 (72) 発明者 三宅 裕一  
 兵庫県神戸市東灘区深江北町4-14-3  
 4 株式会社三徳内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】窒素原子を含む希土類金属-鉄系永久磁石用合金の製造法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

希土類金属-鉄系合金溶融物を、タンディッシュを介した単ロールによるストリップキャストリング法により、冷却速度100~1000 /秒、過冷度200~500 の冷却条件下で均一に凝固させ、短軸方向0.1~100μm、長軸方向0.1~100μmの主相結晶粒径を有する結晶を90容量%以上含有し、且つ前記主相結晶粒内に、包晶核である -Fe及び/又は -Feが粒径20μm未満で微細分散されている希土類金属-鉄系合金鋳塊を得た後、該合金鋳塊100重量部に対して、窒素原子1~5重量部を含有させる窒化処理を行うことを特徴とする窒素原子を含む希土類金属-鉄系永久磁石用合金の製造法。

【請求項2】

前記希土類金属-鉄系合金鋳塊の厚さを0.05~0.5mmにすることを特徴とする請求項1記載の製造法。

【請求項3】

前記希土類金属-鉄系合金鋳塊を得た後、該合金鋳塊を900~1200 で均質化処理することを特徴とする請求項1又は2記載の製造法。

【請求項4】

前記希土類金属-鉄系合金鋳塊を得た後、該合金鋳塊を0.5~50mmに粉碎して粉碎物を得、該粉碎物に対して前記窒化処理を行うことを特徴とする請求項1~3のいずれか1項記載の製造法。

10

20

## 【請求項5】

前記窒化処理を行った後、更に0.5～30 μmに微粉砕することを特徴とする請求項1～4のいずれか1項記載の製造法。

## 【請求項6】

希土類金属がサマリウム(Sm)であることを特徴とする請求項1～5のいずれか1項記載の製造法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

## 【発明の属する技術分野】

本発明は、優れた磁気特性を有する永久磁石を得るための窒素原子を含む希土類金属 - 鉄系永久磁石用合金の製造法に関する。 10

## 【0002】

## 【従来の技術】

従来、永久磁石用合金鑄塊は、熔融した合金を金型に鑄造する金型鑄造法により製造されているのが一般的である。しかし該金型鑄造法により合金熔融物を凝固させる場合、合金熔融物の抜熱過程において、抜熱初期では鑄型伝熱律速であるが、凝固が進行すると、鑄型 - 凝固相間及び凝固相における伝熱が抜熱律速となり、金型冷却能を向上させても鑄塊内部と鑄型近傍の鑄塊では、冷却条件が異なり、特に鑄塊厚が厚いほどこのような現象が生じる。そのため鑄塊の内部と表面付近での冷却条件の相違が大きい場合には、特に磁石組成における高残留磁束密度側の鑄造組織に、粒径10～100 μmの - Fe相が残存し、同時に主相を取り巻く希土類金属に富んだ相の大きさも大きくなる。該 - Fe相及び希土類金属に富んだ大きい相では、通常900～1200 で数～数十時間熱処理することにより行う均質化が困難なため、磁石製造工程における均質化過程が長期化し、結晶粒は更に粗大化する。更にその後の窒素化過程が長期化するため、各粒子における窒素含有量が不均一となる。その結果、その後の粉末配向性及び磁気特性に悪影響を及ぼす等の欠点がある。 20

また前記金型鑄造法により得られる鑄塊組織中に、短軸方向0.1～100 μm、長軸方向0.1～100 μmの結晶粒径を有する結晶が存在することが知られているが、該結晶の含有率は、僅かであって、磁気特性に良好な影響を及ぼすには至っていない。

更にまた、希土類金属元素、コバルト及び必要に応じて、鉄、銅、ジルコニウムを添加し、るつぼ中で溶解させた後、双ロール、単ロール、双ベルト等を組み合わせたストリップキャスト法等で0.01～5 mmの厚さとなるように凝固させる希土類金属磁石用合金の製造法が提案されている。 30

該方法では、金型鑄造法に比して組成の均一な鑄塊が得られるが、原料成分が、希土類金属元素、コバルト及び必要に応じて、鉄、銅、ジルコニウムを組み合わせた成分であるために、前記ストリップキャスト法による磁石性能の向上が十分に得られない等の問題がある。

## 【0003】

## 【発明が解決しようとする課題】

本発明の目的は、優れた磁気特性を有する希土類金属 - 鉄系永久磁石を得るための、最も良い影響を与える結晶組織を有する合金鑄塊を用いた窒素原子を含む希土類金属 - 鉄系永久磁石用合金の製造法を提供することにある。 40

## 【0004】

## 【課題を解決するための手段】

本発明によれば、希土類金属 - 鉄系合金熔融物を、タンディッシュを介した単ロールによるストリップキャスト法により、冷却速度100～1000 /秒、過冷度200～500 の冷却条件下で均一に凝固させ、短軸方向0.1～100 μm、長軸方向0.1～100 μmの主相結晶粒径を有する結晶を90容量%以上含有し、且つ前記主相結晶粒内に、包晶核である -Fe及び / 又は -Feが粒径20 μm未満で微細分散されている希土類金属 - 鉄系合金鑄塊を得た後、該合金鑄塊100重量部に対して、窒素原子1～5重 50

量部を含有させる窒化処理を行うことを特徴とする窒素原子を含む希土類金属 - 鉄系永久磁石用合金の製造法が提供される。

【0005】

【発明の実施の形態】

以下本発明を更に詳細に説明する。

本発明の製造法に用いる希土類金属 - 鉄系合金鑄塊は、短軸方向  $0.1 \sim 100 \mu\text{m}$ 、長軸方向  $0.1 \sim 100 \mu\text{m}$  の主相結晶粒径を有する結晶を 90 容量%以上、好ましくは 95 容量%以上含有し、前記主相結晶粒内に包晶核である - Fe 及び / 又は - Fe が粒径  $20 \mu\text{m}$  未満で微細分散されている合金鑄塊である。この際、前記特定の結晶粒径を有する結晶の含有割合が、90 容量%未満の場合には、得られる合金に優れた磁気特性を付与できない。また短軸方向及び長軸方向の長さが前記範囲外である場合、若しくは該 - Fe 及び / 又は - Fe の粒径が  $20 \mu\text{m}$  以上であり、且つ微細分散されていない場合には、均質化熱処理の際の時間が長期化する。また合金鑄塊の厚さは、 $0.05 \sim 0.5 \text{m}$  の範囲であるのが好ましい。

10

【0006】

前記合金鑄塊を形成する原料成分は、希土類金属 - 鉄系であれば特に限定されるものではないが、希土類金属としては特にサマリウムを好ましく用いることができ、また通常製造の際に不可避免的に含まれる他の不純物成分を含んでいても良い。また希土類金属は、単体でも混合物であっても良い。該希土類金属と、鉄との配合割合は、通常永久磁石用合金鑄塊の配合割合と同様で良く、好ましくは重量比で、 $23 \sim 28 : 77 \sim 72$  であるのが好ましい。

20

【0007】

本発明の製造法において前記合金鑄塊を得るには、希土類金属 - 鉄系合金溶融物を、タンディッシュを介した単ロールによるストリップキャスト法により、冷却速度  $100 \sim 1000$  / 秒、過冷度  $200 \sim 500$  の冷却条件下で均一に凝固させる方法が挙げられる。

この際過冷度とは、(合金の融点) - (合金溶融物の実際の温度) の値である。冷却速度及び過冷度が前記範囲外の場合には、所望の組織を有する合金鑄塊が得られない。

【0008】

前記合金鑄塊を得る方法を更に具体的に説明すると、例えば、真空溶融法、高周波溶融法等により、好ましくはるつぼ等を用いて、不活性ガス雰囲気下、希土類金属 - 鉄系合金溶融物を、タンディッシュを介して単ロール法によるストリップキャスト法で、前記条件下連続的に凝固させ、所望の結晶組織を有する合金鑄塊を得ることができる。この際、合金鑄塊の厚さを、好ましくは  $0.05 \sim 0.5 \text{mm}$  の範囲となるように、鑄造温度及び注湯速度等を適宜選択し、前記条件下処理するのが最も容易な方法である。また所望に応じて得られた合金鑄塊を、好ましくは  $900 \sim 1200$  において、 $5 \sim 40$  時間、均質化処理することもできる。

30

【0009】

本発明の製造法では、前記合金鑄塊又は均質化処理した合金鑄塊を、好ましくは粒径  $0.5 \sim 50 \text{mm}$  に粉碎して粉碎物を得、該合金鑄塊又は粉碎物 100 重量部に対して、窒素原子 1 ~ 5 重量部を含有させる窒化処理を行う。具体的には例えば、 $300 \sim 600$  にて前記窒素原子を含有するガス 1 気圧雰囲気数時間 ~ 数十時間熱処理を行うことによつて、窒素原子を含む希土類金属 - 鉄系永久磁石用合金を得ることができる。また、得られた窒素原子を含む合金又は粉碎物を、好ましくは  $0.5 \sim 30 \mu\text{m}$  に微粉碎することもできる。

40

【0010】

本発明の製造法により得られた窒素原子を含む希土類金属 - 鉄系永久磁石用合金を、例えば磁場プレス、射出成型等の公知の方法により、成型することにより永久磁石とすることができる。

【0011】

50

## 【発明の効果】

本発明の窒素原子を含む希土類金属 - 鉄系永久磁石用合金の製造法では、磁石特性に優れた永久磁石を得るための合金を容易に得ることができる。

## 【0012】

## 【実施例】

以下、本発明を実施例及び比較例により更に詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

## 実施例 1

サマリウム 24.5 wt%、鉄 75.5 wt% からなる合金を、アルゴンガス雰囲気中で、アルミナるつぼを使用して高周波溶融法により溶融物とした。次いで、得られた溶融物を図 1 に示す装置を用いて以下の方法に従って合金鑄塊を得た。

図 1 は、単ロールを用いたストリップキャスト法により合金鑄塊を製造するための概略図であって、1 は前記高周波溶融法により溶融した溶融物の入ったるつぼである。1500 に保持された溶融物 2 を、タンディッシュ 3 上に連続的に流し込み、次いで約 1 m / 秒で回転するロール 4 上において、冷却速度 1000 / 秒、過冷度 200 の冷却条件となるように急凝固させ、ロール 4 の回転方向に連続的に溶融物 2 を落下させて、厚さ 0.5 mm の合金鑄塊 5 を製造した。

## 【0013】

次に得られた永久磁石用合金鑄塊に 1100 にて、20 時間の均質化処理を施し、均質化処理開始後 5 時間、10 時間、20 時間、30 時間及び 40 時間での鑄塊に残留する  $\alpha$ -Fe の量を測定した。結果を表 1 に示す。また  $\alpha$ -Fe が消失した時点での鑄塊の結晶粒径を測定し、その結果を表 2 に示す。その後、前記鑄塊を 0.5 ~ 5 mm に粉碎し、得られた粉末を 500 にて 3 時間、窒素ガス 1 気圧雰囲気中にて窒化処理を施した。得られた窒化粉末を、アルコール中において、遊星ボールミルを用いて更に平均粒径 2  $\mu$ m 程度まで微粉碎した。次いで得られた微粉末を、150 MPa、2400 K a m<sup>-1</sup> の条件下、磁場プレスし、圧粉体を得た。得られた圧粉体の磁気特性を直流磁気測定装置により測定した。結果を表 3 に示す。

## 【0014】

## 実施例 2

サマリウム 25.00 wt%、鉄 75 wt% からなる合金を用いた以外は、実施例 1 と同様に行い、合金鑄塊を得、均質化処理を施した後、 $\alpha$ -Fe 残留量を測定し、更に圧粉体を製造した。 $\alpha$ -Fe 残留量を表 1 に、結晶粒径を表 2 に、磁気特性を表 3 に示す。

## 【0015】

## 比較例 1 ~ 2

実施例 1 及び 2 で製造した合金と同じ組成を有する合金を、高周波溶融法により溶解し、金型鑄造法により冷却速度 10 / 秒、過冷度 20 の条件下、厚さ 30 mm の合金鑄塊を得た。得られた合金鑄塊の均質化処理後の  $\alpha$ -Fe 残留量の測定を実施例 1 と同様に行い、更に実施例 1 と同様な方法にて圧粉体を製造した。 $\alpha$ -Fe 残留量を表 1 に、結晶粒径を表 2 に、磁気特性を表 3 に示す。なお比較例 1 では、40 時間の均質化処理でも  $\alpha$ -Fe が消失しなかったために、均質化処理開始後 40 時間での結晶粒径の値とした。

## 【0016】

## 【表 1】

実施例/比較例	$\alpha$ -Fe 残留量 (%)				
	5時間	10時間	20時間	30時間	40時間
実施例 1	2	0.5	0	0	0
実施例 2	2	0	0	0	0
比較例 1	10	9	8	5	3
比較例 2	8	7	4	2	0

10

20

30

40

【 0 0 1 7 】

【 表 2 】

実施例／比較例	粒径平均値 ( $\mu\text{m}$ )	標準偏差 ( $\mu\text{m}$ )
実施例 1	46	22
実施例 2	58	28
比較例 1	120	50
比較例 2	130	35

【 0 0 1 8 】

10

【 表 3 】

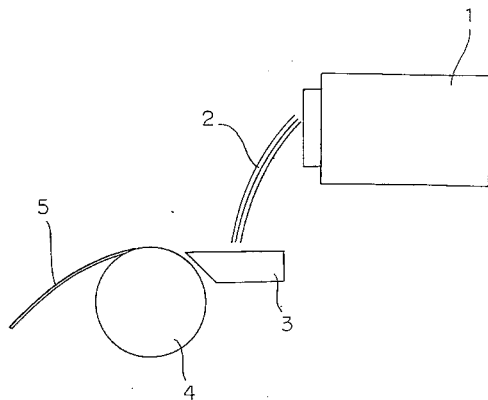
実施例／比較例	$4\pi J_s$ (KG)	$B_r$ (KG)	$i H_c$ (KOe)
実施例 1	12.0	9.5	10.0
実施例 2	11.5	9.0	11.0
比較例 1	10.5	7.5	8.5
比較例 2	8.5	6.0	9.0

【 図面の簡単な説明 】

20

【 図 1 】 図 1 は、実施例 1 で用いたストリップキャスト法により合金鑄塊を製造する際の概略図である。

【 図 1 】



---

フロントページの続き

(72)発明者 岡田 力  
兵庫県神戸市東灘区深江北町4 - 1 4 - 3 4 株式会社三徳内

審査官 山田 正文

(56)参考文献 特開平03 - 1 4 1 6 0 8 ( J P , A )  
特開平03 - 1 4 1 6 0 9 ( J P , A )  
特開平03 - 1 3 3 5 5 2 ( J P , A )  
特開平04 - 0 2 8 4 5 8 ( J P , A )  
特開昭60 - 0 8 9 5 4 6 ( J P , A )

(58)調査した分野(Int.Cl.<sup>7</sup>, DB名)

H01F 1/00- 1/117

B22F 9/00- 9/30

B22D 11/00-11/20