

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号  
特許第7699724号  
(P7699724)

(45)発行日 令和7年6月27日(2025.6.27)

(24)登録日 令和7年6月19日(2025.6.19)

(51)国際特許分類 F I  
H 0 1 F 1/057(2006.01) H 0 1 F 1/057 1 7 0  
H 0 1 F 41/02 (2006.01) H 0 1 F 41/02 G

請求項の数 10 (全30頁)

(21)出願番号	特願2024-542498(P2024-542498)	(73)特許権者	000006013 三菱電機株式会社 東京都千代田区丸の内二丁目7番3号
(86)(22)出願日	令和4年8月24日(2022.8.24)	(74)代理人	100118762 弁理士 高村 順
(86)国際出願番号	PCT/JP2022/031886	(72)発明者	岩崎 亮人 東京都千代田区丸の内二丁目7番3号 三菱電機株式会社内
(87)国際公開番号	WO2024/042638	(72)発明者	中村 泰貴 東京都千代田区丸の内二丁目7番3号 三菱電機株式会社内
(87)国際公開日	令和6年2月29日(2024.2.29)	(72)発明者	北野 達也 東京都千代田区丸の内二丁目7番3号 三菱電機株式会社内
審査請求日	令和6年8月8日(2024.8.8)	審査官	後藤 嘉宏

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 希土類焼結磁石、希土類焼結磁石の製造方法、回転子および回転機

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

RをNd, Pr以外から選択される1種類以上の希土類元素としたとき、一般式(Nd, Pr, R) - Fe - Bを満たし、Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B結晶構造を基本とする結晶粒を含む主相を有し、

前記主相は、コア部と前記コア部を被覆するシェル部とを有し、

前記主相は、前記コア部のNdの濃度をCNdとし、前記コア部のPrの濃度をCPrとしたとき、CNd > CPrである第1主相と、CNd < CPrである第2主相と、を有し、

前記第1主相と前記第2主相とが混在していることを特徴とする希土類焼結磁石。

10

【請求項2】

前記第1主相の前記コア部のNd濃度をC1Ndとし、前記第2主相の前記コア部のNd濃度をC2Ndとし、前記第1主相の前記コア部のPr濃度をC1Prとし、前記第2主相の前記コア部のPr濃度をC2Prとしたとき、C1Nd > C2Nd、C1Pr < C2Prの関係式を満たすことを特徴とする請求項1に記載の希土類焼結磁石。

【請求項3】

前記第2主相の数よりも前記第1主相の数の方が多きことを特徴とする請求項1に記載の希土類焼結磁石。

【請求項4】

前記シェル部のNdの濃度をSNdとし、前記シェル部のPrの濃度をSPrとしたと

20

き、前記第1主相は $CNd > SNd$ 、 $CP r < SP r$ の関係式を満たし、前記第2主相は $CNd < SNd$ 、 $CP r > SP r$ の関係式を満たすことを特徴とする請求項1に記載の希土類焼結磁石。

【請求項5】

$R = La$ 、 $Sm$ としたとき、主成分が $(Nd, Pr, La, Sm) - O$ として表される酸化物相を基本とする結晶性の第1副相と、主成分が $(Nd, Pr, La) - O$ として表される結晶性の第2副相と、をさらに有し、

$Sm$ の濃度は、前記第2副相に比して前記第1副相の方が高いことを特徴とする請求項1に記載の希土類焼結磁石。

【請求項6】

前記主相に含まれる $La$ 濃度を $X$ とし、前記第1副相に含まれる $La$ 濃度を $X_1$ とし、前記第2副相に含まれる $La$ 濃度を $X_2$ とし、前記主相に含まれる $Sm$ 濃度を $Y$ とし、前記第1副相に含まれる $Sm$ 濃度を $Y_1$ とし、前記第2副相に含まれる $Sm$ 濃度を $Y_2$ としたとき、 $1 < (Y_1 + Y_2) / Y < (X_1 + X_2) / X$ であることを特徴とする請求項5に記載の希土類焼結磁石。

【請求項7】

前記第1主相に含まれる $Nd$ および $Pr$ の濃度は、 $(CNd + SNd) > (X + Y)$ の関係式を満たし、

前記第2主相に含まれる $Nd$ および $Pr$ の濃度は、 $(CP r + SP r) > (X + Y)$ の関係式を満たすことを特徴とする請求項4に記載の希土類焼結磁石。

【請求項8】

請求項1から7のいずれか1つに記載の希土類焼結磁石の製造方法であって、前記希土類焼結磁石を構成する元素を含む希土類焼結磁石合金の原料を溶融する溶融工程と、

前記溶融工程で溶融状態の前記原料を冷却して凝固合金を得る第1次冷却工程と、

前記凝固合金をさらに冷却して希土類焼結磁石合金を得る第2次冷却工程と、

$(Nd, Pr, R) - Fe - B$ を満たす前記希土類焼結磁石合金を粉砕する粉砕工程と、前記粉砕工程で粉砕された前記希土類焼結磁石合金の粉末を成形することによって成形体を調製する成形工程と、

定められた温度である焼結温度で前記成形体を焼結して焼結体を得る焼結工程と、

前記焼結体を前記焼結温度未満の温度である第1次時効温度で保持する第1次時効工程と、

前記第1次時効工程で保持された前記焼結体を前記第1次時効温度未満の温度である第2次時効温度で保持する第2次時効工程と、

前記第2次時効工程で保持された前記焼結体を再び前記第1次時効温度で保持する第3次時効工程と、

前記第3次時効工程で保持された前記焼結体を前記第2次時効温度で保持する第4次時効工程と、

前記第4次時効工程で保持された前記焼結体を冷却する冷却工程と、

を含むことを特徴とする希土類焼結磁石の製造方法。

【請求項9】

回転子鉄心と、

前記回転子鉄心に設けられる請求項1から7のいずれか1つに記載の希土類焼結磁石と、を備えることを特徴とする回転子。

【請求項10】

請求項9に記載の回転子と、

前記回転子が配置される側の内面に、前記回転子に向かって突出したティースに備え付けられる巻線を有し、前記回転子に対向配置される環状の固定子と、

を備えることを特徴とする回転機。

【発明の詳細な説明】

10

20

30

40

50

## 【技術分野】

## 【0001】

本開示は、希土類元素を含む材料を焼結した永久磁石である希土類焼結磁石、希土類焼結磁石の製造方法、回転子および回転機に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

正方晶  $R_2T_{14}B$  金属間化合物を主相とする R - T - B 系永久磁石が知られている。ここで、R が希土類元素であり、T が Fe (鉄) または一部が Co (コバルト) によって置換された Fe などの遷移金属元素であり、B がホウ素である。R - T - B 系永久磁石は、産業用モータを始めとして、種々の高付加価値な部品に用いられている。特に、R が Nd (ネオジウム) である Nd - Fe - B 系焼結磁石は、優れた磁気特性を有するために、種々の部品に用いられている。また、産業用モータは、100 を超えるような高温環境で使用されることが多いため、Nd - T - B 系焼結磁石に Dy (ディスプロシウム) 等の重希土類元素を添加して、保磁力を向上させる試みが行われている。

10

## 【0003】

近年、Nd - Fe - B 系焼結磁石の生産量は拡大しており、Nd および Dy, Tb (テルビウム) 等の重希土類元素の消費量が増加している。しかし、Nd および重希土類元素は、高価であるとともに、地域偏在性が高く調達リスクがある。このため、Nd および重希土類元素の消費量を減らす方策として、低重希土類相を含む主相を形成する磁石を用いること、R に、Pr (プラセオジウム)、Ce (セリウム)、La (ランタン)、Sm (サマリウム)、Sc (スカンジウム)、Gd (ガドリニウム)、Y (イットリウム) および Lu (ルテチウム) 等の他の希土類元素を使用すること、焼結体に熱間塑性加工を施すような特殊な製造方法で製造すること、等が考えられる。以下では、焼結体に施す熱間塑性加工は、熱間加工と称される。ところが、重希土類元素を少なからず主相に入れることは、保磁力の向上には寄与するものの残留磁束密度が著しく低下してしまう。また、Nd の全部または一部を Pr, Ce, La, Sm, Sc, Gd, Y および Lu 等の元素に代替した場合には、残留磁束密度および保磁力の磁気特性が著しく低下してしまう。さらに、焼結体に熱間加工を施した場合には、結晶粒の微細化により磁石の着磁性が著しく低下してしまう。以上のことから、省重希土類化と優れた磁気特性および着磁性とを両立させることは困難であった。そこで、従来では、これらの元素を Nd - Fe - B 系焼結磁石の製造に使用した場合に、室温における磁気特性を向上させ、温度上昇に伴う磁気特性の低下を抑制することのできる技術の開発が試みられている。特に、現状では、さらなる重希土類元素の低減と優れた磁気特性および着磁性とを両立することのできる希土類磁石が求められている。

20

30

## 【0004】

特許文献 1 には、 $R_2T_{14}B$  結晶からなる主相粒子を含む R - T - B 系焼結磁石であって、R は重希土類元素 RH を必須とする 1 種以上の希土類元素であり、T は Fe または Fe および Co を必須とする 1 種以上の遷移金属元素であり、B はホウ素であり、主相粒子の一部が、その内部に複数の低重希土類元素結晶相を含み、低重希土類元素結晶相は、 $R_2T_{14}B$  結晶からなり、重希土類元素の濃度が主相粒子全体における重希土類元素の濃度に対して相対的に低い相であることを特徴とする R - T - B 系焼結磁石が開示されている。特許文献 1 に記載の技術によれば、磁気特性を向上させ、かつ、低コストである R - T - B 系焼結磁石が得られる。

40

## 【0005】

特許文献 2 には、 $(R_{11-x}R_2)_aTM_bB_cM_d$  の組成式で表され、主相と粒界相とからなる組織を有する焼結体を製造する第 1 ステップ、焼結体に熱間加工を施して希土類磁石前駆体を製造する第 2 ステップ、希土類磁石前駆体に対し、R3 - M 改質合金の融液を希土類磁石前駆体の粒界相に拡散浸透させて希土類磁石を製造する第 3 ステップからなる希土類磁石の製造方法が開示されている。ここで、R1 は Y を含む 1 種以上の希土類元素であり、R2 は R1 と異なる希土類元素であり、TM は Fe, Ni (ニッケル), Co の

50

内の1種以上を含む遷移金属であり、Bはホウ素であり、MはTi(チタン)、Ga(ガリウム)、Zn(亜鉛)、Si(シリコン)、Al(アルミニウム)、Nb(ニオブ)、Zr(ジルコニウム)、Ni、Co、Mn(マンガン)、V(バナジウム)、W(タングステン)、Ta(タンタル)、Ge(ゲルマニウム)、Cu(銅)、Cr(クロム)、Hf(ハフニウム)、Mo(モリブデン)、P(リン)、C(炭素)、Mg(マグネシウム)、Hg(水銀)、Ag(銀)、Au(金)の内の1種類以上である。また、 $x, a, b, c, d$ は、 $0.01 \leq x \leq 1, 1 \leq a \leq 20, b = 100 - a - c - d, 5 \leq c \leq 20, 0 \leq d \leq 3$ であり、いずれもat%である。また、R3はR1、R2を含む希土類元素である。特許文献2に記載の技術によれば、主相率が高い場合でも、磁化のみならず保磁力性能にも優れた希土類磁石を製造することができる。

10

【先行技術文献】

【特許文献】

【0006】

【文献】特開2018-174313号公報

【文献】特開2015-153813号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

しかしながら、特許文献1に記載のR-T-B系焼結磁石は、重希土類元素を含む相が主相内に存在していることから、保磁力を向上させることができても、産業用モータ等に要求される残留磁束密度は得られず、磁気特性が低下してしまう可能性がある。さらに、重希土類元素を使用するため、調達リスクおよびコストの低減ができていないという問題があった。また、特許文献2に記載の製造方法で製造された希土類磁石は、重希土類元素を低減させ、保磁力を向上させることができたとしても、製造方法に熱間加工が含まれる。このため、製造される希土類磁石の残留磁束密度と着磁性とを低下させてしまう可能性があった。

20

【0008】

本開示は、上記に鑑みてなされたものであって、Ndおよび重希土類元素の使用を従来に比して抑えながら、従来に比して磁気特性および着磁性を向上させることができる希土類焼結磁石を得ることを目的とする。

30

【課題を解決するための手段】

【0009】

上述した課題を解決し、目的を達成するために、本開示に係る希土類焼結磁石は、RをNd、Pr以外から選択される1種類以上の希土類元素としたとき、一般式(Nd, Pr, R)-Fe-Bを満たし、Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B結晶構造を基本とする結晶粒を含む主相を有する。主相は、コア部とコア部を被覆するシェル部とを有する。主相は、コア部のNdの濃度をCNdとし、コア部のPrの濃度をCPrとしたとき、CNd > CPrである第1主相と、CNd < CPrである第2主相と、を有する。第1主相と第2主相とが混在している。

【発明の効果】

40

【0010】

本開示に係る希土類焼結磁石は、Ndおよび重希土類元素の使用を従来に比して抑えながら、従来に比して磁気特性および着磁性を向上させることができるという効果を奏する。

【図面の簡単な説明】

【0011】

【図1】実施の形態1による希土類焼結磁石の焼結状態の構造の一例を模式的に示す図

【図2】実施の形態2による希土類焼結磁石の焼結状態の構造の一例を模式的に示す図

【図3】正方晶Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B結晶構造における原子サイトを示す図

【図4】実施の形態3による希土類焼結磁石合金の製造方法の手順の一例を示すフローチャート

50

【図5】実施の形態3による希土類焼結磁石の製造方法の手順の一例を示すフローチャート

【図6】実施の形態4による希土類焼結磁石を搭載した回転子の構成の一例を模式的に示す断面図

【図7】実施の形態5による回転機の構成の一例を模式的に示す断面図

【図8】実施例1から8による希土類焼結磁石の断面をFE-EPMAで分析して得られた組成像をトレースした図

【図9】実施例1から8による希土類焼結磁石の断面をFE-EPMAで分析して得られるNdの元素マッピング

【図10】実施例1から8による希土類焼結磁石の断面をFE-EPMAで分析して得られるPrの元素マッピング

10

【図11】実施例1から8による希土類焼結磁石の断面をFE-EPMAで分析して得られるOの元素マッピング

【図12】実施例1から8による希土類焼結磁石の断面をFE-EPMAで分析して得られるLaの元素マッピング

【図13】実施例1から8による希土類焼結磁石の断面をFE-EPMAで分析して得られるSmの元素マッピング

【発明を実施するための形態】

【0012】

以下に、本開示の実施の形態に係る希土類焼結磁石、希土類焼結磁石の製造方法、回転子および回転機を図面に基づいて詳細に説明する。

20

【0013】

実施の形態1.

図1は、実施の形態1による希土類焼結磁石の焼結状態の構造の一例を模式的に示す図である。実施の形態1による希土類焼結磁石1は、一般式(Nd, Pr, R)-Fe-Bを満たし、Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B結晶構造を基本とする結晶粒を含む主相10を有し、主相10は、コア部とコア部を被覆するシェル部とを有する。ここで、RはNd, Pr以外から選択される1種類以上の希土類元素である。シェル部は、コア部とは異なる組成を有し、コア部を覆うように設けられる。また、希土類焼結磁石1は、主相10と主相10との間に存在する副相20をさらに有するが、副相20については、実施の形態2で説明する。

【0014】

30

実施の形態1による希土類焼結磁石1において、コア部のNdの濃度をCNdとし、コア部のPrの濃度をCPrとしたときに、主相10は、CNd > CPrである第1主相11と、CNd < CPrである第2主相12と、を有し、第1主相11と第2主相12とが混在している。第1主相11は、コア部11cと、コア部11cとは組成が異なり、コア部11cを覆うシェル部11sと、を有する。第2主相12は、コア部12cと、コア部12cとは組成が異なり、コア部12cを覆うシェル部12sと、を有する。第1主相11のコア部11cでは、CNd > CPrであり、第2主相12のコア部12cでは、CNd < CPrである。

【0015】

つまり、希土類焼結磁石1には、第1主相11および第2主相12の2種類の主相10が存在し、2種類の主相10のコア部11c, 12cに着目すると、第1主相11ではNd濃度がPr濃度より高く、逆に第2主相12ではPr濃度がNd濃度より高いということを意味している。このように異方性磁界、すなわち磁気異方性が異なるコアシェル構造を有する2種類の主相10を混在させることで、Ndおよび重希土類元素を削減しつつも、良好な着磁性を維持しながら残留磁束密度および保磁力を向上させることができる。さらに、温度変化に伴う磁気特性における低下の抑制にも寄与する。ここで「CNd > CPrである第1主相11と、CNd < CPrである第2主相12」に示される濃度差は電子プローブマイクロアナライザ(Electron Probe Micro Analyzer: EPMA)を用いたマッピング分析により、NdおよびPrの検出強度に明確に差が出ていることを意味する。具体的には、第1主相11の場合を例として挙げると、コア部11cのNdの濃度に

40

50

については、E P M Aの検出強度がN dの検出強度の平均より高く、P rの濃度については、E P M Aの検出強度がP rの検出強度の下限付近を示しているということである。第2主相1 2は第1主相1 1の場合と逆になっているといえる。

**【0016】**

また、実施の形態1による希土類焼結磁石1は、第1主相1 1のコア部1 1 cのN d濃度をC 1 N dとし、第2主相1 2のコア部1 2 cのN d濃度をC 2 N dとし、第1主相1 1のコア部1 1 cのP r濃度をC 1 P rとし、第2主相1 2のコア部1 2 cのP r濃度をC 2 P rとしたとき、 $C 1 N d > C 2 N d$ 、 $C 1 P r < C 2 P r$ の関係式を満たす。つまり、N d濃度については、第2主相1 2のコア部1 2 cに比して第1主相1 1のコア部1 1 cの方が高くなっており、逆にP r濃度については、第1主相1 1のコア部1 1 cに比して第2主相1 2のコア部1 2 cの方が高くなっている。ここでの濃度差も上記のE P M Aを用いたマッピング分析によるN dおよびP rの検出強度に差が出ていることを意味する。具体的に、N dの濃度の場合には、第1主相1 1のコア部1 1 cのN dのE P M Aの検出強度が、N dの検出強度の平均よりも高く、第2主相1 2のコア部1 2 cのN dのE P M Aの検出強度が、N dの検出強度の平均よりも低い状態であることを意味している。P rの濃度の場合には、第2主相1 2のコア部1 2 cのP rのE P M Aの検出強度が、P rの検出強度の平均よりも高く、第1主相1 1のコア部1 1 cのP rのE P M Aの検出強度が、P rの検出強度の平均よりも低い状態になっていることを意味する。つまり、N d濃度が低い第2主相1 2のコア部1 2 cにはP rが多く存在し、反対に、P r濃度が低い第1主相1 1のコア部1 1 cにはN dが多く存在していることになる。このような組織形態に制御することで、優れた磁気特性を有する希土類焼結磁石1を得ることが可能となる。

**【0017】**

また、実施の形態1による希土類焼結磁石1において、 $C N d < C P r$ である第2主相1 2よりも $C N d > C P r$ である第1主相1 1の方を多く存在させる。言い換えれば、 $N d_2 F e_{14} B$ の組成式を有する第1主相1 1の数が、 $P r_2 F e_{14} B$ の組成式を有する第2主相1 2の数よりも多いことを意味している。これは、 $N d_2 F e_{14} B$ の組成式を有する第1主相1 1を増やした方が、 $P r_2 F e_{14} B$ の組成式を有する第2主相1 2を増やすよりもより優れた磁気特性および温度特性が得られるためである。さらに、このような組織形態に制御することで、全体的な結晶粒の微細化も抑制されることから、着磁性を担保しつつ、かつ従来に比して優れた磁気特性を得ることが可能となる。

**【0018】**

また、実施の形態1による希土類焼結磁石1において、コアシェル構造のシェル部1 1 s , 1 2 sに着目し、シェル部1 1 s , 1 2 sのN dの濃度をS N dとし、シェル部1 1 s , 1 2 sのP rの濃度をS P rとしたとき、第1主相1 1は、 $C N d > S N d$ 、 $C P r < S P r$ の関係式を満たし、第2主相1 2は、 $C N d < S N d$ 、 $C P r > S P r$ の関係式を満たす。具体的には、第1主相1 1のシェル部1 1 sはN dの濃度が小さい代わりに、P rの濃度がコア部1 1 cよりも高く、第2主相1 2のシェル部1 2 sはP rの濃度が小さい代わりに、N dの濃度がコア部1 2 cよりも高い。第1主相1 1のようにP rの濃度が高いシェル部1 1 sを有する主相1 0を形成させることで、保磁力を向上させることができる。さらに、第2主相1 2のようにN dの濃度が高いシェル部1 2 sを有する主相1 0を形成させることで、保磁力を維持させつつ残留磁束密度の低下を抑制することができる。このような組織形態となるように選択的に制御することで、希土類焼結磁石1は、従来に比して優れた磁気特性を発揮することが可能となる。

**【0019】**

さらに、主相1 0の結晶粒の平均粒径は、 $100 \mu m$ 以下にすることが好ましく、磁気特性向上のために、 $0.5 \mu m$ 以上 $50 \mu m$ 以下にすることがより好ましい。さらには、 $1 \mu m$ 以上 $10 \mu m$ 以下程度とすることで、熱間加工から製造される微細組織とは異なる粒径となり、良好な着磁性能が維持され、従来に比して優れた磁気特性を有する希土類焼結磁石1とすることが可能になる。

**【0020】**

10

20

30

40

50

実施の形態 1 による希土類焼結磁石 1 は、磁気特性をさらに向上させる添加元素 M を含有していてもよい。添加元素 M は、Ga, Cu, Al, Co, Zr, Ti, Nb, Dy, Tb, Mn, Gd および Ho (ホルミウム) の群から選択される 1 種以上の元素である。したがって、実施の形態 1 による希土類焼結磁石 1 は、一般式が  $(Nd_a Pr_b R_c) Fe_d B_e M_f$  で表現され、添加元素 M は Ga, Cu, Al, Co, Zr, Ti, Nb, Dy, Tb, Mn, Gd および Ho の群から選択される 1 種以上の元素である。a, b, c, d, e, f は、以下の関係式を満足することが望ましい。

【0021】

$$5 \leq a + b \leq 20$$

$$0 < c < (a + b)$$

$$70 \leq d \leq 90$$

$$0.5 \leq e \leq 10$$

$$0 \leq f \leq 5$$

$$a + b + c + d + e + f = 100 \text{ 原子\%}$$

【0022】

実施の形態 1 による希土類焼結磁石 1 は、R を Nd, Pr 以外から選択される 1 種類以上の希土類元素とすると、一般式  $(Nd, Pr, R) - Fe - B$  を満たし、 $Nd_2Fe_{14}B$  結晶構造を基本とする結晶粒を含む主相 10 において、コア部とコア部を被覆するシェル部とを有する主相 10 が存在し、主相 10 は、 $CNd > CPr$  である第 1 主相 11 と、 $CNd < CPr$  である第 2 主相 12 と、を有し、第 1 主相 11 と第 2 主相 12 とが混在している。このような構成によって、Nd および重希土類元素の使用を抑えながら、従来に比して磁気特性および着磁性を向上させた希土類焼結磁石 1 を得ることができる。

【0023】

また、第 1 主相 11 および第 2 主相 12 は、 $C1Nd > C2Nd$ 、 $C1Pr < C2Pr$  の関係式を満たすようにした。あるいは、第 2 主相 12 の数よりも第 1 主相 11 の数のほうが多くなるようにした。あるいは、第 1 主相 11 は  $CNd > SNd$ 、 $CPr < SPr$  の関係式を満たし、第 2 主相 12 は  $CNd < SNd$ 、 $CPr > SPr$  の関係式を満たすようにした。これによっても、Nd および重希土類元素の使用を抑えながら、磁気特性および着磁性を向上させた希土類焼結磁石 1 を得ることができる。

【0024】

実施の形態 2 .

図 2 は、実施の形態 2 による希土類焼結磁石の焼結状態の構造の一例を模式的に示す図である。実施の形態 2 による希土類焼結磁石 1 は、主相 10 と、副相 20 と、を有する。主相 10 は、実施の形態 1 で説明したように第 1 主相 11 および第 2 主相 12 を含むが、図 2 では、第 1 主相 11 および第 2 主相 12 をまとめて主相 10 と表記している。副相 20 は、主相 10 間に存在する。

【0025】

実施の形態 2 による希土類焼結磁石 1 では、元素 R に La, Sm を選択する場合を示す。元素 R に La, Sm を選択する場合には、Nd および重希土類元素の使用を抑えながら、磁気特性を向上させ、従来に比して優れた着磁性を有するという効果がさらに大きくなる。この例では、主相 10 は、 $(Nd, Pr, La, Sm)_2Fe_{14}B$  の組成式を有する。正方晶  $R_2Fe_{14}B$  結晶構造を有する希土類焼結磁石 1 の元素 R を La および Sm を含む希土類元素とする理由は、分子軌道法を用いた磁氣的相互作用エネルギーの計算結果から、La と Sm とを添加した組成とすることで、温度上昇に伴う磁気特性の低下を大きく抑制することのできる実用的な希土類焼結磁石 1 が得られるためである。また、La と Sm とを意図的に副相 20 の一例である粒界にも偏析させることによって、相対的に Nd および Pr を主相 10 に拡散させ、主相 10 の結晶磁気異方性を高めることができる。これによって、主相 10 内において磁気異方性の高い部分と低い部分とが存在するコアシェル構造が形成され、 $CNd > CPr$  である第 1 主相 11 と、 $CNd < CPr$  である第 2 主相 12 と、が混在する希土類焼結磁石 1 ができやすい状態を形成する。

10

20

30

40

50

## 【 0 0 2 6 】

なお、L aとS mとの添加量が多過ぎると、磁気異方性定数および飽和磁気分極の高い元素であるN dおよびP rの量が減少し、磁気特性の低下を招いてしまう。このため、N d , P r , L aおよびS mの組成比率をそれぞれA , B , CおよびDとしたとき、 $(A + B) > (C + D)$ とすることが好ましい。

## 【 0 0 2 7 】

実施の形態2による希土類焼結磁石1においては、 $R = L a , S m$ としたとき、実施の形態1における第1主相11および第2主相12に加え、副相20を有する。副相20は、主成分が $(N d , P r , L a , S m) - O$ として表される酸化物相を基本とする結晶性の第1副相21と、主成分が $(N d , P r , L a) - O$ として表される結晶性の第2副相22と、を有する。副相20におけるS mの濃度は、第2副相22に比して第1副相21の方が高いという特徴を有する。これにより、室温の磁気特性のみならず、温度上昇に伴う磁気特性の低下を抑制する効果を奏する。

10

## 【 0 0 2 8 】

ここで、「S mの濃度は、第2副相22に比して第1副相21の方が高い」とは、E P M Aを用いたマッピング分析により、第2副相22よりも第1副相21においてS mの検出強度が平均して高いことを意味する。

## 【 0 0 2 9 】

結晶性の副相20は、結晶性の第1副相21および結晶性の第2副相22の総称であり、主相10の間に存在する。結晶性の第1副相21は、 $(N d , P r , L a , S m) - O$ で表され、結晶性の第2副相22は、 $(N d , P r , L a) - O$ で表される。ここで、 $(N d , P r , L a , S m)$ は、N d , P rの一部がL aおよびS mによって置換されていることを意味している。なお、ここでは主成分の元素を括弧内に記載しているので、第1副相21および第2副相22は、括弧内に示される元素のほかにも他の成分を微量含んでもよい。一例では、 $(N d , P r , L a) - O$ で表される第2副相22は、極微量のS mを含んでいる。

20

## 【 0 0 3 0 】

実施の形態2による希土類焼結磁石1において、主相10と副相20とでは、L aおよびS mの濃度差が存在し、L aおよびS mは、主相10よりも副相20に偏析している。つまり、第1副相21および第2副相22におけるL aの濃度の和は、主相10におけるL aの濃度以上であり、第1副相21および第2副相22におけるS mの濃度の和は、主相10におけるS mの濃度以上である。具体的には、副相20のL aおよびS mの濃度は、主相10のL aおよびS mの濃度以上である。ここでの主相10のL aの濃度は、第1主相11のL aの濃度と第2主相12のL aの濃度との和である。つまり、第1副相21および第2副相22におけるL aの濃度の和は、第1主相11および第2主相12におけるL aの濃度の和よりも高い。また、主相10のS mの濃度は、第1主相11のS mの濃度と第2主相12のS mの濃度との和である。つまり、第1副相21および第2副相22におけるS mの濃度の和は、第1主相11および第2主相12におけるS mの濃度の和よりも高い。

30

## 【 0 0 3 1 】

ここで、主相10に含まれるL a濃度をXとし、第1副相21に含まれるL a濃度を $X_1$ とし、第2副相22に含まれるL a濃度を $X_2$ とし、主相10に含まれるS m濃度をYとし、第1副相21に含まれるS m濃度を $Y_1$ とし、第2副相22に含まれるS m濃度を $Y_2$ としたときに、次式(1)の関係が満たされる。

40

## 【 0 0 3 2 】

$$1 < (Y_1 + Y_2) / Y < (X_1 + X_2) / X \quad \dots (1)$$

## 【 0 0 3 3 】

さらに、磁気特性向上の観点から、主相10に含まれるN dおよびP rの濃度に対しては、次式(2)、(3)の関係が満たされる。

## 【 0 0 3 4 】

50

$$(C_{Nd} + S_{Nd}) > (X + Y) \dots (2)$$

$$(C_{Pr} + S_{Pr}) > (X + Y) \dots (3)$$

## 【0035】

なお、上記では、主相10のLaの濃度は、第1主相11および第2主相12におけるLaの濃度の和であり、主相10のSmの濃度は、第1主相11および第2主相12におけるSmの濃度の和であるとした。これは、La, Smが、ともに主相10よりも副相20に偏析していることを示すものである。ただし、局所的に見た場合には、第1主相11および第2主相12におけるLaおよびSmのそれぞれの濃度の和と、第1副相21および第2副相22におけるLaおよびSmのそれぞれの濃度の和と、が上記した関係を満たさない場合もあり得る。このため、より具体的には、主相10のLaの濃度は、第1主相11および第2主相12におけるLaの濃度の平均を示し、主相10のSmの濃度は、第1主相11および第2主相12におけるSmの濃度の平均を示すものである。この場合には、副相20のLaの濃度、すなわち第1副相21および第2副相22におけるLaの濃度の和は、第1副相21および第2副相22におけるLaの濃度の平均を意味し、副相20のSmの濃度、すなわち第1副相21および第2副相22におけるSmの濃度の和は、第1副相21および第2副相22におけるSmの濃度の平均を意味するものとなる。

10

## 【0036】

Laは、製造工程、特に熱処理過程で粒界に高濃度に存在することによって、相対的にNdおよびPrを主相10に拡散させる。この結果、実施の形態2における希土類焼結磁石1は、主相10のNdおよびPrが粒界で消費されずに結晶磁気異方性が向上する。Smにおいても、主相10に比して副相20、特に第1副相21に高濃度に存在するため、Laと同様に相対的にNdを主相10に拡散させ、結晶磁気異方性を向上させる。

20

## 【0037】

次に、LaおよびSmが正方晶 $R_2Fe_{14}B$ 結晶構造のどの原子サイトにおいて置換されているかについて説明する。図3は、正方晶 $Nd_2Fe_{14}B$ 結晶構造における原子サイトを示す図である。なお、図3に示される結晶構造は、一例では、下記に示す参考文献1のFIG. 1に記載されている。置換されるサイトは、バンド計算およびハイゼンベルグモデルの分子場近似によって、置換による安定化エネルギーを求め、そのエネルギーの数値によって判断される。

(参考文献1) J.F.Herbst et al. "Relationships between crystal structure and magnetic properties in  $Nd_2Fe_{14}B$ ". PHYSICAL REVIEW B. 1984, Vol. 29, No.7, p. 4176-4178.

30

## 【0038】

まず、Laにおける安定化エネルギーの計算方法について説明する。Laにおける安定化エネルギーは、 $Nd_8Fe_{56}B_4$ 結晶セルを用いて、 $(Nd_7La_1)Fe_{56}B_4 + Nd$ と、 $Nd_8(Fe_{55}La_1)B_4 + Fe$ と、のエネルギー差によって求めることができる。エネルギーの値が小さいほど、そのサイトに原子が置換された場合に、より安定である。すなわち、Laは、原子サイトの中で、エネルギーが最も小さくなる原子サイトに置換されやすい。この計算では、Laが元の原子と置換された場合に、正方晶 $R_2Fe_{14}B$ 結晶構造における格子定数は、原子半径の違いによって変わらないとしている。表1は、環境温度を変えた場合の各置換サイトにおけるLaの安定化エネルギーを示す表である。

40

## 【0039】

【表 1】

(表1)

Laの置換サイト	温度					
	293K	500K	1000K	1300K	1400K	1500K
Nd(f)	-136.372	-84.943	-48.524	-40.132	-38.132	-35.451
Nd(g)	-132.613	-82.740	-47.442	-38.211	-36.358	-34.753
Fe(k1)	-135.939	-80.596	-41.428	-32.390	-30.237	-17.095
Fe(k2)	-127.480	-75.638	-38.948	-30.482	-28.466	-26.719
Fe(j1)	-124.248	-73.076	-38.003	-29.754	-27.791	-26.089
Fe(j2)	-117.148	-71.400	-35.923	-28.816	-26.917	-25.271
Fe(e)	-130.814	-77.593	-39.926	-31.235	-29.164	-27.371
Fe(c)	-148.317	-87.850	-45.055	-35.179	-32.828	-30.789

単位:eV

## 【 0 0 4 0 】

表 1 によると、La の安定な置換サイトは、1000 K 以上の温度では、Nd ( f ) サイトであり、温度 293 K および 500 K では、Fe ( c ) サイトである。実施の形態 2 による希土類焼結磁石 1 は、後述するように、希土類焼結磁石 1 の原料を 1000 K 以上の温度に加熱して溶融した後、急冷される。このため、希土類焼結磁石 1 の原料は、1000 K 以上、すなわち 727 °C 以上、好ましくは 1300 K 程度、すなわち 1027 °C の状態が維持されていると考えられる。その際、La は Nd ( f ) サイトまたは Nd ( g ) サイトに置換されていると考えられる。ここで、エネルギー的に安定な Nd ( f ) サイトに優先的に La が置換されると考えられるが、La の置換サイトの中でエネルギー差の小さい Nd ( g ) サイトへの置換もあり得る。このため、Nd ( g ) サイトも La の置換サイトの候補として挙げられている。

## 【 0 0 4 1 】

さらに、後述する製造方法によって希土類焼結磁石 1 を製造した場合には、焼結時には 1000 K 以上であるものの、第 1 次時効工程、第 2 次時効工程、さらには第 3 次時効工程、第 4 次時効工程および冷却工程を経ることで、幾度となく表 1 に記載の Fe ( c ) サイトがエネルギー的に安定な温度帯で保持される。言い換えれば、主相 10 の Nd サイトにおける La の置換は不安定なエネルギー状態で保たれていることになる。つまり、希土類焼結磁石 1 の原料段階においては、La は主相 10 の Nd サイトに主に置換されていたが、後述する製造方法で作製された希土類焼結磁石 1 では、主相 10 の Nd サイトに対して、敢えて不安定なエネルギー状態の温度域で幾度となく保持することにより、主相 10 の Nd サイトからある程度の La が選択的に放出された結果、La は副相 20 に偏析することになる。この結果、主相 10 はコアシェル構造という特徴的な構造形成を促進していることになる。

## 【 0 0 4 2 】

次に、Sm における安定化エネルギーの計算方法について説明する。Sm の安定化エネルギーについては、 $(Nd_7Sm_1)Fe_{56}B_4 + Nd$  と、 $Nd_8(Fe_{55}Sm_1)B_4 + Fe$  と、のエネルギー差によって求めることができる。原子が置換されることによって、正方晶  $R_2$

10

20

30

40

50

Fe<sub>14</sub>B結晶構造における格子定数が変化しないとした点については、Laの場合と同様である。表2は、環境温度を変えた場合の、各置換サイトにおけるSmの安定化エネルギーを示す表である。

【0043】

【表2】

(表2)

Smの置換サイト	温度					
	293K	500K	1000K	1300K	1400K	1500K
Nd(f)	-164.960	-101.695	-56.921	-46.589	-44.128	-41.976
Nd(g)	-168.180	-103.583	-57.865	-47.315	-44.803	-42.626
Fe(k1)	-136.797	-81.098	-41.679	-32.583	-17.350	-16.343
Fe(k2)	-127.769	-75.808	-38.482	-29.603	-28.528	-25.696
Fe(j1)	-122.726	-73.304	-37.783	-28.392	-26.525	-24.681
Fe(j2)	-124.483	-73.883	-38.072	-28.483	-26.610	-24.985
Fe(e)	125.937	72.525	35.301	26.633	24.450	22.782
Fe(c)	-155.804	-94.457	-48.359	-37.720	-35.187	-32.992

単位:eV

【0044】

表2によると、Smの安定な置換サイトは、Laとは異なり、いずれの温度においても、Nd(g)サイトである。Smにおいても、エネルギー的に安定なNd(g)サイトに優先的に置換されると考えられるが、Smの置換サイトの中でエネルギー差の小さいNd(f)サイトへの置換もあり得る。

【0045】

後述する製造方法によって希土類焼結磁石1を製造した場合には、エネルギー的には主相10のNd(g)サイトへの置換が最も安定である。しかし、上記した通り、Laにおいて主相10のNdサイトへの置換が不安定になる温度域で保持することで、一部のSmもLaと一緒に主相10のNdサイトから放出され、副相20に偏析する。この結果、LaおよびSmの濃度は主相10と副相20とで濃度差が存在し、第1副相21および第2副相22におけるLaの濃度の和は、主相10におけるLaの濃度以上であり、第1副相21および第2副相22におけるSmの濃度の和は、主相10におけるSmの濃度以上である。より具体的には、第1副相21および第2副相22におけるLaの濃度の平均は、第1主相11および第2主相12におけるLaの濃度の平均以上であり、第1副相21および第2副相22におけるSmの濃度の平均は、第1主相11および第2主相12におけるSmの濃度の平均以上である。つまり、LaおよびSmは、副相20に偏析するといえる。

【0046】

LaおよびSmで比較すると、エネルギー的な観点から、不安定なエネルギー状態の温度域で保持されるLaの方が、圧倒的に副相20に偏析しやすいことがわかる。これにより、LaおよびSmの濃度を同程度で調製された希土類焼結磁石1の場合、希土類焼結磁石1に存在するLaとSmとでは、Laの方が副相20への偏析割合が大きくなる。この温度領域で幾度となく保持されることにより、副相20において、偏析割合の少ないSmの濃

度差が生まれ、第1副相21と第2副相22とが形成される。これにより、主相10におけるコアシェル構造の形成を促進させていることになる。

【0047】

今回、図3に示されるように代表的にNdについての説明とするが、Di(ジジム)に代表されるように、NdとPrとは混合物として産出されることから、NdおよびPrのエネルギー準位が近いと考えられる。このため、NdをPrに置き換えた場合でも同様のことがいえる。NdおよびPrの2種類を存在させることで、2種類のコアシェル構造を有する主相10を形成させることができる。

【0048】

以上のように、実施の形態2の希土類焼結磁石1は、RはNd, Pr以外から選択される1種類以上の希土類元素である場合に、一般式(Nd, Pr, R) - Fe - Bを満たし、Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B結晶構造を基本とする結晶粒を含む主相10を有し、主相10は、コア部とコア部を被覆するシェル部とを有し、R = La, Smとしたとき、実施の形態1における第1主相11および第2主相12に加え、副相20を有する。副相20は、主成分が(Nd, Pr, La, Sm) - Oで表される酸化物相を基本とする結晶性の第1副相21と、主成分が(Nd, Pr, La) - Oで表される結晶性の第2副相22と、を有し、Smの濃度については、第2副相22に比して第1副相21の方が高くなるようにした。つまり、2種類の主相10および2種類の副相20が存在するようにした。これより、磁気特性の温度特性など、磁気特性が従来に比して優れた希土類焼結磁石1の提供が可能になる。また、RをLa, Smとすることで、主相10は、C<sub>Nd</sub> > C<sub>Pr</sub>である第1主相11と、C<sub>Nd</sub> < C<sub>Pr</sub>である第2主相12と、が混在している状態となる。言い換えれば、希土類焼結磁石1には2種類の第1主相11および第2主相12を有する主相10が存在し、2種類の主相10のコア部に着目すると、第1主相11ではNd濃度がPr濃度より高く、逆に第2主相12ではPr濃度がNd濃度より高くなるような、2種類のコアシェル構造を有する主相10が生じやすくなる。この結果、Ndおよび重希土類元素の使用を抑えながら、磁気特性を向上させ、従来に比して優れた着磁性を有するという効果をさらに高めることができる。

【0049】

実施の形態3 .

実施の形態3では、実施の形態1または実施の形態2で説明した希土類焼結磁石1を製造する方法について、希土類焼結磁石1の原料となる希土類焼結磁石合金の製造方法と、希土類焼結磁石合金を用いた希土類焼結磁石1の製造方法と、に分けて説明する。

【0050】

図4は、実施の形態3による希土類焼結磁石合金の製造方法の手順の一例を示すフローチャートである。まず、図4に示されるように、希土類焼結磁石1の原料となる希土類焼結磁石合金の製造方法は、希土類焼結磁石1を構成する元素を含む希土類焼結磁石合金の原料を1000K以上の温度に加熱して溶融する溶融工程(ステップS1)と、溶融状態の原料を回転する回転体上で冷却して凝固合金を得る第1次冷却工程(ステップS2)と、凝固合金を容器の中でさらに冷却する第2次冷却工程(ステップS3)と、を含む。これにより、希土類焼結磁石合金を製造することができる。以下、各工程について説明する。

【0051】

ステップS1の溶融工程では、Ar(アルゴン)などの不活性ガスを含む雰囲気中または真空中で、希土類焼結磁石合金の原料を坩堝の中で1000K以上の温度に加熱して溶融する。これによって、希土類焼結磁石合金が溶融した合金溶湯が調製される。原料としては、Nd, Pr, La, Sm, FeおよびBを用いることができる。また、原料として、Bの代わりにFeBを用いてもよい。このとき、添加元素MとしてAl, Co, Zr, Ti, Nb, Dy, Tb, Mn, GdおよびHoの群から選択される1種以上の元素を、原料に含めてもよい。

【0052】

次いで、ステップS2の第1次冷却工程では、溶融工程で調製された合金溶湯を、タン

10

20

30

40

50

ディッシュに流し、続けて、回転体である単ロールの上に流す。これによって、合金溶湯は定められた方向に回転する単ロール上で急速に冷却され、合金溶湯からインゴット合金よりも厚さの薄い凝固合金が単ロール上で調製される。ここでは、回転する回転体として、単ロールを用いたが、これに限定されるものではなく、双ロール、回転ディスク、回転円筒鑄型等に接触させて急速に冷却させてもよい。厚さの薄い凝固合金を効率良く得る観点から、第1次冷却工程における冷却速度は、 $10^7$  /秒以上 $10^7$  /秒以下とすることが好ましく、 $10^3$  /秒以上 $10^4$  /秒以下とすることがより好ましい。凝固合金の厚さは、 $0.03$  mm以上 $10$  mm以下の範囲にある。合金溶湯は、単ロールと接触した部分から凝固が始まり、単ロールとの接触面から厚さ方向に結晶が柱状または針状に成長する。

10

#### 【0053】

その後、ステップS3の第2次冷却工程では、第1次冷却工程で調製された厚さの薄い凝固合金をトレイ容器の中に入れて冷却する。厚さの薄い凝固合金は、トレイ容器に入る際に砕けて鱗片状の希土類焼結磁石合金となって冷却される。冷却速度によっては、リボン状の希土類焼結磁石合金が得られることもあり、鱗片状に限定されるものではない。磁気特性の温度特性が良好な組織構造を有する希土類焼結磁石合金を得る観点から、第2次冷却工程における冷却速度は、 $10^{-2}$  /秒以上 $10^5$  /秒以下とすることが好ましく、 $10^{-1}$  /秒以上 $10^2$  /秒以下とすることがより好ましい。

#### 【0054】

これらの工程を経て得られる希土類焼結磁石合金は、短軸方向サイズが $3 \mu\text{m}$ 以上 $10 \mu\text{m}$ 以下であり、かつ長軸方向サイズが $10 \mu\text{m}$ 以上 $300 \mu\text{m}$ 以下である。実施の形態2の場合、 $(\text{Nd}, \text{Pr}, \text{La}, \text{Sm}) - \text{Fe} - \text{B}$ 結晶相と、 $(\text{Nd}, \text{Pr}, \text{La}, \text{Sm}) - \text{O}$ で示される酸化物の結晶性の副相20と、を含有する微細結晶組織を有する。以下では、 $(\text{Nd}, \text{Pr}, \text{La}, \text{Sm}) - \text{O}$ で示される酸化物の結晶性の副相20は、 $(\text{Nd}, \text{Pr}, \text{La}, \text{Sm}) - \text{O}$ 相と称される。 $(\text{Nd}, \text{Pr}, \text{La}, \text{Sm}) - \text{O}$ 相は、希土類元素の濃度が比較的高い酸化物からなる非磁性相である。 $(\text{Nd}, \text{Pr}, \text{La}, \text{Sm}) - \text{O}$ 相の厚さは、粒界の幅に相当し、 $10 \mu\text{m}$ 以下である。以上の製造方法によって製造された希土類焼結磁石合金は、急速に冷却される工程を経ているため、鑄型鑄造法によって得られる希土類焼結磁石合金と比較して、組織が微細化されている。

20

#### 【0055】

次に、希土類焼結磁石合金を用いた希土類焼結磁石1の製造方法について説明する。図5は、実施の形態3による希土類焼結磁石の製造方法の手順の一例を示すフローチャートである。図5に示されるように、希土類焼結磁石1の製造方法は、 $(\text{Nd}, \text{Pr}, \text{La}, \text{Sm}) - \text{Fe} - \text{B}$ 結晶相と、 $(\text{Nd}, \text{Pr}, \text{La}, \text{Sm}) - \text{O}$ 相と、を有する希土類焼結磁石合金を粉砕する粉砕工程(ステップS21)と、粉砕された希土類焼結磁石合金の粉末を成形することによって成形体を調製する成形工程(ステップS22)と、定められた温度である焼結温度で成形体を焼結して焼結体を得る焼結工程(ステップS23)と、希土類焼結磁石1の保磁力等の磁気特性を高めるために焼結体を時効する時効工程(ステップS24)と、時効処理された焼結体を冷却する冷却工程(ステップS25)と、を含む。以下、各工程について説明する。

30

#### 【0056】

ステップS21の粉砕工程では、図4の希土類焼結磁石合金の製造方法に従って製造された $(\text{Nd}, \text{Pr}, \text{R}) - \text{Fe} - \text{B}$ を満たす希土類焼結磁石合金を粉砕し、粒径が $200 \mu\text{m}$ 以下、好ましくは $0.5 \mu\text{m}$ 以上 $100 \mu\text{m}$ 以下、さらに着磁性能を考慮した場合、さらには、 $1 \mu\text{m}$ 以上 $10 \mu\text{m}$ 以下程度である希土類焼結磁石合金粉末を得る。希土類焼結磁石合金の粉砕は、一例では、めのう乳鉢、スタンプミル、ジョークラッシャまたはジェットミルを用いて行われる。特に、粉末の粒径を小さくする場合には、希土類焼結磁石合金の粉砕を、不活性ガスを含む雰囲気中で行うことが好ましい。希土類焼結磁石合金の粉砕を、不活性ガスを含む雰囲気中で行うことによって、粉末中への酸素の混入を抑制することができる。ただし、粉砕を行う際の雰囲気が磁石の磁気特性に影響を与えない場合

40

50

には、希土類焼結磁石合金の粉碎を大気中で行ってもよい。

【 0 0 5 7 】

ステップ S 2 2 の成形工程では、希土類焼結磁石合金の粉末を、磁場をかけた金型の中で圧縮成形し、成形体を調製する。ここで、印加する磁場は、一例では 2 T とすることができる。なお、成形は、磁場中ではなく、磁場を印加せずに行ってもよい。

【 0 0 5 8 】

ステップ S 2 3 の焼結工程では、圧縮成形された成形体を 9 5 0 以上 1 3 0 0 以下、好ましくは 1 0 0 0 以上 1 1 5 0 未満の範囲内の焼結温度で 0 . 1 時間以上 1 0 時間以内の範囲内の時間、好ましくは 1 . 0 時間以上 6 . 0 時間以内で保持することで、焼結体を得る。焼結は、酸化抑制のために、不活性ガスを含む雰囲気中または真空中で行われることが好ましい。焼結は、磁場を印加しながら行ってもよい。

10

【 0 0 5 9 】

ステップ S 2 4 の時効工程は、図 5 の場合には、ステップ S 2 4 - 1 の第 1 次時効工程、ステップ S 2 4 - 2 の第 2 次時効工程、ステップ S 2 4 - 3 の第 3 次時効工程、およびステップ S 2 4 - 4 の第 4 次時効工程を含む。時効は、酸化抑制のために、不活性ガスを含む雰囲気中または真空中で行われることが好ましい。

【 0 0 6 0 】

ステップ S 2 4 - 1 の第 1 次時効工程の条件は、得られた焼結体を焼結温度未満の温度である第 1 次時効温度で、具体的には 7 0 0 以上 9 5 0 未満の範囲内で 0 . 1 時間以上 1 0 時間以下、好ましくは 0 . 5 時間以上 5 時間以下の範囲内で焼結体を保持する。

20

【 0 0 6 1 】

ステップ S 2 4 - 2 の第 2 次時効工程の条件は、第 1 次時効工程後、第 1 次時効工程で保持された焼結体を、第 1 次時効温度未満の温度である第 2 次時効温度で、具体的には 4 5 0 以上 7 0 0 未満の範囲内で 0 . 1 時間以上 1 0 時間以下、好ましくは 1 . 0 時間以上 7 時間以下の範囲内で保持する。

【 0 0 6 2 】

ステップ S 2 4 - 3 の第 3 次時効工程の条件は、第 2 次時効工程後、第 2 次時効工程で保持された焼結体を、再び第 1 次時効温度、具体的には 7 0 0 以上 9 5 0 未満の範囲内の温度に昇温し、第 1 次時効温度で 0 . 1 時間以上 1 0 時間以下、好ましくは 0 . 5 時間以上 5 時間以下の範囲内で保持する。

30

【 0 0 6 3 】

ステップ S 2 4 - 4 の第 4 次時効工程の条件は、第 3 次時効工程後、第 3 次時効工程で保持された焼結体を、再び第 2 次時効温度、具体的には 4 5 0 以上 7 0 0 未満の範囲内で 0 . 1 時間以上 1 0 時間以下、好ましくは 1 . 0 時間以上 7 時間以下の範囲内で保持する。

【 0 0 6 4 】

最後に、ステップ S 2 5 の冷却工程では、第 4 次時効工程で保持された焼結体を、第 2 次時効温度未満の温度で、具体的には、2 0 0 以上 4 5 0 未満の範囲内で 0 . 1 時間以上 5 時間以下の範囲内で保持する。その後、室温まで冷却することにより、希土類焼結磁石 1 が完成する。冷却も酸化抑制のために、不活性ガスを含む雰囲気中または真空中で行われることが好ましい。

40

【 0 0 6 5 】

以上のように、焼結工程、時効工程および冷却工程での温度と時間とを制御することにより、不安定なエネルギー状態の温度域で幾度となく焼結体を保持することとなる。この結果、 $CNd > CP_r$  からなる第 1 主相 1 1 と、 $CNd < CP_r$  からなる第 2 主相 1 2 と、を混在させることが可能となる。言い換えれば、希土類焼結磁石 1 には第 1 主相 1 1 および第 2 主相 1 2 の 2 種類の主相 1 0 が存在し、2 種類の主相 1 0 のコア部に着目すると、第 1 主相 1 1 は Nd 濃度が Pr 濃度より高く、逆に第 2 主相 1 2 は Pr 濃度が Nd 濃度より高いという特徴を有する希土類焼結磁石 1 を製造することができる。

【 0 0 6 6 】

50

さらに、実施の形態 1 における第 1 主相 1 1 および第 2 主相 1 2 に加え、主成分が (Nd, Pr, La, Sm) - O で表される酸化物相を基本とする結晶性の第 1 副相 2 1 と、主成分が (Nd, Pr, La) - O で表される結晶性の第 2 副相 2 2 と、を有し、Sm の濃度については、第 2 副相 2 2 に比して第 1 副相 2 1 の方が高くなる希土類焼結磁石 1 を製造することができる。

【0067】

これよって、Nd および重希土類元素の使用を抑えながら、従来に比して優れた着磁性能および磁気特性を有する希土類焼結磁石 1 の提供が可能になる。

【0068】

実施の形態 3 では、(Nd, Pr, La, Sm) - Fe - B 結晶相と (Nd, Pr, La, Sm) - O 相とを有する希土類焼結磁石合金を粉砕した希土類焼結磁石合金粉末を成形し、成形した成形体を焼結して焼結体を形成した後に、焼結体を時効して、希土類焼結磁石 1 を製造する。これによつて、実施の形態 2 による希土類焼結磁石 1 を製造することができる。

【0069】

また、第 1 次時効工程にて、得られた焼結体を焼結温度未満の温度である第 1 次時効温度で、具体的には 700 以上 950 未満の範囲内で 0.1 時間以上 10 時間以下、好ましくは 0.5 時間以上 5 時間以下の範囲内で焼結体を保持する。第 2 次時効工程にて、第 1 次時効温度未満の温度である第 2 次時効温度で、具体的には 450 以上 700 未満の範囲内で 0.1 時間以上 10 時間以下、好ましくは 1.0 時間以上 7 時間以下の範囲内で焼結体を保持する。第 3 次時効工程にて、再び第 1 次時効温度、具体的には 700 以上 950 未満の範囲内の温度に昇温し、第 1 次時効温度で 0.1 時間以上 10 時間以下、好ましくは 0.5 時間以上 5 時間以下の範囲内で焼結体を保持する。第 4 次時効工程にて、再び第 2 次時効温度、具体的には 450 以上 700 未満の範囲内で 0.1 時間以上 10 時間以下、好ましくは 1.0 時間以上 7 時間以下の範囲内で焼結体を保持する。このように、第 1 次時効工程および第 2 次時効工程を 2 セット実施するように、温度および時間を制御することによつて、不安定なエネルギー状態の温度域で幾度となく焼結体を保持する状態が作り出される。この結果、 $C_{Nd} > C_{Pr}$  からなる第 1 主相 1 1 と、 $C_{Nd} < C_{Pr}$  からなる第 2 主相 1 2 と、が混在している希土類焼結磁石 1 を得ることができる。言い換えれば、希土類焼結磁石 1 は、第 1 主相 1 1 および第 2 主相 1 2 の 2 種類の主相 1 0 が存在し、2 種類の主相 1 0 のコア部に着目すると、第 1 主相 1 1 は Nd 濃度が Pr 濃度よりも高く、逆に第 2 主相 1 2 は Pr 濃度が Nd 濃度よりも高くなる希土類焼結磁石 1 を選択的に製造することができる。

【0070】

さらに、上記の製造工程により、主成分が (Nd, Pr, La, Sm) - O で表される酸化物相を基本とする結晶性の第 1 副相 2 1 と、主成分が (Nd, Pr, La) - O で表される結晶性の第 2 副相 2 2 と、を有し、Sm の濃度は、第 2 副相 2 2 に比して第 1 副相 2 1 の方が高くなるという特徴的な組織構造を有する希土類焼結磁石 1 を選択的に製造することができる。

【0071】

実施の形態 4 .

実施の形態 4 では、実施の形態 3 の製造方法で製造された実施の形態 1 または実施の形態 2 における希土類焼結磁石 1 を用いた回転子について説明する。図 6 は、実施の形態 4 による希土類焼結磁石を搭載した回転子の構成の一例を模式的に示す断面図である。図 6 では、回転子 100 の回転軸 RA に垂直な方向の断面を示している。

【0072】

回転子 100 は、回転軸 RA を中心に回転可能である。回転子 100 は、回転子鉄心 101 と、回転子 100 の周方向に沿って回転子鉄心 101 に設けられた磁石挿入穴 102 に挿入される希土類焼結磁石 1 と、を備える。図 6 では、4 つの磁石挿入穴 102 を回転子鉄心 101 に設け、4 つの希土類焼結磁石 1 を磁石挿入穴 102 に挿入する例を示して

10

20

30

40

50

いるが、磁石挿入穴 102 および希土類焼結磁石 1 の数は回転子 100 の設計に応じて変更してもよい。回転子鉄心 101 は、円盤形状の電磁鋼板が、回転軸 RA の軸線方向に複数積層して形成されている。

#### 【0073】

希土類焼結磁石 1 は、実施の形態 3 で説明した製造方法に従って製造されたものである。4 つの希土類焼結磁石 1 は、それぞれ対応する磁石挿入穴 102 に挿入されている。4 つの希土類焼結磁石 1 は、回転子 100 の径方向外側における希土類焼結磁石 1 の磁極が、隣り合う希土類焼結磁石 1 との間で異なるように、それぞれ着磁されている。

#### 【0074】

このように、実施の形態 4 による回転子 100 は、室温における磁気特性の向上と温度上昇に伴う磁気特性の低下の抑制とを実現することができる実施の形態 1 または実施の形態 2 による希土類焼結磁石 1 を備える。このように、高い残留磁束密度と保磁力とを維持しながら、温度上昇に伴う磁気特性の低下を抑制することのできる希土類焼結磁石 1 であるため、100 を超えるような高温環境下においても磁気特性の低下が抑制される。これによって、高価で地域偏在性が高く調達リスクがある Nd および重希土類元素を安価な希土類元素で代替しながら、磁気特性および着磁性を向上させ、100 を超えるような高温環境下においても、回転子 100 の動作を安定化することができる。さらに、実施の形態 1 または実施の形態 2 による希土類焼結磁石 1 は従来に比して優れた着磁性能を有することから、回転子 100 に希土類焼結磁石 1 をセットしたアッセンブリ状態での着磁も可能とするため、製造工程の取り扱いが容易になる。さらに、電圧を抑制した着磁工程が実現できるため、省エネルギー化にも寄与する。

#### 【0075】

実施の形態 5 .

実施の形態 5 では、実施の形態 4 における回転子 100 を搭載した回転機について説明する。図 7 は、実施の形態 5 による回転機の構成の一例を模式的に示す断面図である。図 7 では、回転子 100 の回転軸 RA に垂直な方向の断面を示している。

#### 【0076】

回転機 120 は、回転軸 RA を中心に回転可能な、実施の形態 4 で説明した回転子 100 と、回転子 100 と同軸に設けられ、回転子 100 に対向配置された環状の固定子 130 と、を備える。固定子 130 は、電磁鋼板を回転軸 RA の軸線方向に複数積層させることによって形成される。固定子 130 の構成はこれに限定されるものではなく、既存の構成を採用することもできる。固定子 130 は、回転子 100 側に突出したティース 131 が、固定子 130 の内面に沿って設けられる。ティース 131 には巻線 132 が備え付けられている。巻線 132 の巻き方は、一例では、集中巻きでもよいし、分布巻きでもよい。つまり、固定子 130 は、回転子 100 が配置される側の内面に、回転子 100 に向かって突出したティース 131 に備え付けられる巻線 132 を有し、回転子 100 に対向配置される環状の構造を有する。回転機 120 の中にある回転子 100 の磁極数は 2 極以上、すなわち、希土類焼結磁石 1 は、2 つ以上であればよい。また、図 7 では、磁石埋込型の回転子 100 の例を示したが、希土類焼結磁石 1 を外周部に接着剤で固定した表面磁石型の回転子 100 でもよい。

#### 【0077】

このように、実施の形態 5 における回転機 120 は、室温における磁気特性の向上と温度上昇に伴う磁気特性の低下の抑制とを実現することができる実施の形態 1 または実施の形態 2 による希土類焼結磁石 1 を備える。このように、高い残留磁束密度と保磁力とを維持しながら、温度上昇に伴う磁気特性の低下を抑制することのできる希土類焼結磁石 1 であるため、100 を超えるような高温環境下においても、磁気特性の低下が抑制される。この結果、高価で地域偏在性が高く調達リスクがある Nd および重希土類元素を安価な希土類元素で代替しながら、磁気特性および着磁性を向上させ、100 を超えるような高温環境下においても、回転子 100 を安定的に駆動させ、回転機 120 の動作を安定化することができる。

10

20

30

40

50

**【実施例】****【0078】**

以下に、実施例および比較例によって本開示の希土類焼結磁石1の詳細を説明する。

**【0079】**

実施例1から8では、組成が異なる複数の希土類焼結磁石合金の(Nd, Pr, La, Sm) - Fe - Bで示される試料を用いて、実施の形態3に示される方法によって希土類焼結磁石1を製造する。実施例1から8では、Nd, Pr, LaおよびSmの含有量を変更した希土類焼結磁石合金を用いて、希土類焼結磁石1を製造する。つまり、実施例1から8では、(Nd, Pr, La, Sm) - Fe - Bで示される希土類焼結磁石合金を用いて、実施の形態3で示した製造方法を用いて、希土類焼結磁石1を製造する。

10

**【0080】**

比較例1から12では、組成の異なる複数の希土類焼結磁石合金R - Fe - Bで示される試料を用いて、特許文献1または特許文献2に示されるような一般的な希土類磁石の製造方法によって実験的に希土類焼結磁石1を製造する。比較例1から12による希土類焼結磁石1の試料では、Rの部分を変更している。

**【0081】**

比較例1から6では、RがNdと、重希土類元素Dy、またはPr, LaおよびSmのいずれか1つと、を含む希土類焼結磁石合金を用いて、特許文献1に示される製造方法を用いて希土類焼結磁石1を製造する。

**【0082】**

比較例7から12では、RがNdと、重希土類元素Dy、またはPr, LaおよびSmのいずれか1つと、を含む希土類焼結磁石合金を用いて、特許文献2に示される製造方法を用いて希土類焼結磁石1を製造する。

20

**【0083】**

表3は、実施例および比較例による希土類焼結磁石の一般式、Rを構成する元素の含有量、組織形態の分析結果、および磁気特性と着磁性能との判定結果を示す表である。表3には、実施例1から8および比較例1から12の希土類焼結磁石1である各試料の主相10の一般式が示されている。

**【0084】**

30

40

50

【 表 3 】

(表3)

	一般式	含有量(at%)				組織形態				判定					
		Nd	Pr	La	Sm	Dy	主相		副相		残留磁束密度	保磁力	残留磁束密度係数	保磁力温度係数	着磁性能
							第1主相 (CNd>CPr)	第2主相 (CNd<CPr)	第1副相 (Sm濃度高)	第2副相 (Sm濃度低)					
比較例1	Nd-Fe-B	11.23	-	-	-	-	x	x	x	-	-	-	-	-	
比較例2	(Nd,Dy)-Fe-B	10.01	-	-	-	1.12	x	x	x	x	不良	同等	同等	同等以上	
比較例3	(Nd,Pr)-Fe-B	8.83	2.94	-	-	-	x	x	x	同等	同等	不良	不良	同等以上	
比較例4	(Nd,La,Sm)-Fe-B	9.66	-	1.03	1.07	-	x	x	○	同等	同等	良	良	同等以上	
比較例5	(Nd,La,Sm)-Fe-B	11.64	-	0.51	0.45	-	x	x	○	同等	同等	良	良	同等以上	
比較例6	(Nd,Pr,La,Sm)-Fe-B	7.65	2.35	0.59	0.55	-	x	x	○	同等	同等	良	良	同等以上	
比較例7	Nd-Fe-B	11.23	-	-	-	-	x	x	x	不良	同等	同等	同等	不良	
比較例8	(Nd,Dy)-Fe-B	10.01	-	-	-	1.12	x	x	x	不良	同等	同等	同等	不良	
比較例9	(Nd,Pr)-Fe-B	8.83	2.94	-	-	-	x	○	x	不良	同等	同等	同等	不良	
比較例10	(Nd,La,Sm)-Fe-B	9.66	-	1.03	1.07	-	x	x	○	不良	同等	良	良	不良	
比較例11	(Nd,La,Sm)-Fe-B	11.64	-	0.51	0.45	-	x	x	○	不良	同等	良	良	不良	
比較例12	(Nd,Pr,La,Sm)-Fe-B	8.25	2.35	0.59	0.55	-	x	x	○	不良	同等	良	良	不良	
実施例1	(Nd,Pr,La,Sm)-Fe-B	8.23	1.18	1.03	1.07	-	○	○	○	良	良	良	良	同等以上	
実施例2	(Nd,Pr,La,Sm)-Fe-B	8.99	1.76	0.51	0.45	-	○	○	○	良	良	良	良	同等以上	
実施例3	(Nd,Pr,La,Sm)-Fe-B	9.65	1.56	0.23	0.21	-	○	○	○	良	良	良	良	同等以上	
実施例4	(Nd,Pr,La,Sm)-Fe-B	8.24	3.41	0.05	0.05	-	○	○	○	良	良	良	良	同等以上	
実施例5	(Nd,Pr,La,Sm)-Fe-B	8.83	2.05	0.53	0.21	-	○	○	○	良	良	良	良	同等以上	
実施例6	(Nd,Pr,La,Sm)-Fe-B	8.85	2.07	0.23	0.52	-	○	○	○	良	良	良	良	同等以上	
実施例7	(Nd,Pr,La,Sm)-Fe-B	11.35	1.65	0.05	0.05	-	○	○	○	良	良	良	良	同等以上	
実施例8	(Nd,Pr,La,Sm)-Fe-B	10.25	1.53	0.11	0.12	-	○	○	○	良	良	良	良	同等以上	

10

20

30

40

【 0 0 8 5 】

次に、実施例1から8および比較例1から12の希土類焼結磁石1の組織を分析する方法について説明する。希土類焼結磁石1の組織形態は、走査型電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope: SEM)および電子プローブマイクロアナライザ(Electron Probe Micro Analyzer: EPMA)を用いた元素分析により決定される。ここでは、SEMおよびEPMAとして、電界放出型電子プローブマイクロアナライザ(Field Emission-Electron Probe Micro Analyzer: FE-EPMA)(日本電子株式会社製、製品名: JXA-8530F)を用いる。元素分析の条件は、加速電圧が15.0kVであり、照射電流が $2.271 \times 10^{-8}$ Aであり、照射時間が130msであり、画素数が51

50

2ピクセル×512ピクセルであり、倍率が5000倍であり、積算回数が1回である。

【0086】

次に、実施例1から8および比較例1から12の希土類焼結磁石1の磁気特性の評価方法について説明する。磁気特性の評価は、パルス励磁式のBHトレーサを用いて、複数の試料の保磁力を測定することによって行われる。BHトレーサによる最大印加磁場は、希土類焼結磁石1が完全に着磁された状態となる6T以上である。パルス励磁式のBHトレーサの他に、6T以上の最大印加磁場を発生させることができれば、直流式のBHトレーサとも呼ばれる直流自記磁束計、振動試料型磁力計(Vibrating Sample Magnetometer: VSM)、磁気特性測定装置(Magnetic Property Measurement System: MPMS) 10  
(Physical Property Measurement System: PPMS)等を用いてもよい。測定は、窒素等の不活性ガスを含む雰囲気中で行われる。各試料の磁気特性は、印加磁場により着磁された希土類焼結磁石1をサーチコイルまたは磁気センサによってピックアップされた磁化を検出することにより測定される。測定された磁気ヒステリシスであるJ-HカーブまたはB-Hカーブより、磁気特性を測定する。また、各試料の磁気特性は、互いに異なる第1測定温度T1および第2測定温度T2のそれぞれの温度で測定される。残留磁束密度の温度係数 [% / ]は、第1測定温度T1での残留磁束密度と第2測定温度T2での残留磁束密度との差と、第1測定温度T1での残留磁束密度との比を、温度の差(T2 - T1)で割った値である。また、保磁力の温度係数 [% / ]は、第1測定温度T1での保磁力と第2測定温度T2での保磁力との差と、第1測定温度T1での保磁力との比を、温度の差(T2 - T1)で割った値である。したがって、磁気特性の温度係数の絶対値 | | および | | が小さくなるほど、温度上昇に対する磁石の磁気特性の低下が抑制されることになる。 20

【0087】

さらに、着磁性能の測定については、一定のパーミアンス係数において、任意の磁場を印加することにより描かれる磁気ヒステリシスより測定される磁束密度と、飽和する磁場を印加することにより描かれる磁気ヒステリシスより測定される磁束密度と、の比より着磁率を算出することによって求められる。より低い磁場でも高い着磁率が得られれば、着磁性能が高いといえる。

【0088】

まず、実施例1から8および比較例1から12による各試料における分析結果について説明する。図8は、実施例1から8による希土類焼結磁石の断面をFE-EPMAで分析して得られた組成像をトレースした図である。図9から図13は、実施例1から8による希土類焼結磁石の断面をFE-EPMAで分析して得られる元素マッピングである。図9は、Ndの元素マッピングであり、図10は、Prの元素マッピングであり、図11は、Oの元素マッピングであり、図12は、Laの元素マッピングであり、図13は、Smの元素マッピングである。なお、図9から図13は、図8に示される領域を元素マッピングしたものである。また、実施例1から8による希土類焼結磁石1は、すべて同様の結果を示しているので、図8から図13では、実施例1から8のうちの代表の実施例について示している。さらに、図1および図2と同一の構成要素には同一の符号を付している。 30

【0089】

図9および図10に示されるように、実施例1から8の各試料において、RをNd, Pr以外から選択される1種類以上の希土類元素とし、一般式(Nd, Pr, R)-Fe-Bを満たし、Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B結晶構造を基本とする結晶粒を含む主相10において、コア部とコア部を被覆するシェル部とを有する主相10が存在する。また、主相10には、CNd > CPrである第1主相11と、CNd < CPrである第2主相12と、が混在していることが確認できる。 40

【0090】

ここで「CNd > CPrである第1主相11と、CNd < CPrである第2主相12」に示される濃度差は、EPMAを用いたマッピング分析により、NdおよびPrの検出強度に明確に差が出ていることを意味する。具体的には、第1主相11の場合を例として挙 50

げると、コア部 11c の Nd の濃度は E P M A の検出強度が平均より高く、Pr の濃度は E P M A の検出強度が下限付近を示しているということである。第 2 主相 12 は第 1 主相 11 の逆になっているといえる。

【0091】

より具体的には、図 9 の Nd のマッピング図および図 10 の Pr のマッピング図を例にすると、E P M A の Nd の検出レベルの平均値が 32.0 であり、Pr の検出レベルの平均値が 45 である。第 1 主相 11 の場合は C N d が 32.0 より高く、C P r は下限値付近であり、明確に濃度差が生じている状態である。また、第 2 主相 12 は第 1 主相 11 の逆であることから、C P r が 45.0 より高く、C N d は下限値付近であり、明確に濃度差が生じている状態である。

10

【0092】

図 11 から図 13 に示されるように、 $R = L a$ 、 $S m$  としたとき、希土類焼結磁石 1 は、実施の形態 1 における第 1 主相 11 と第 2 主相 12 とに加え、主成分が  $(N d, P r, L a, S m) - O$  として表される酸化物相を基本とする結晶性の第 1 副相 21 と、主成分が  $(N d, P r, L a) - O$  として表される結晶性の第 2 副相 22 と、を有する。また、 $S m$  の濃度は、第 2 副相 22 に比して第 1 副相 21 の方が高いことが確認できる。

【0093】

表 3 には、 $C N d > C P r$  である第 1 主相 11、および  $C N d < C P r$  である第 2 主相 12 の状態が確認できた試料については、それぞれ第 1 主相 11 および第 2 主相 12 の欄に「○」が入力され、確認できなかった試料については、それぞれ第 1 主相 11 および第 2 主相 12 の欄に「×」が入力されている。不等号の濃度差については、Nd および Pr の検出強度に明確に差が出ていることを意味する。具体的には、一例では第 1 主相 11 の場合においては、Nd の濃度は E P M A の検出強度が平均より高く、Pr の濃度は E P M A の検出強度が下限値付近ということである。第 2 主相 12 の場合においては第 1 主相 11 の場合とは逆になっているといえる。第 2 主相 12 のような  $C N d < C P r$  しか確認されなかった場合は、第 2 主相 12 の欄のみに「○」が入力され、第 1 主相 11 の欄には「×」が入力されている。

20

【0094】

さらに、表 3 には、主成分が  $(N d, P r, L a, S m) - O$  として表される酸化物相を基本とする結晶性の第 1 副相 21、主成分が  $(N d, P r, L a) - O$  として表される結晶性の第 2 副相 22 と、を有し、第 2 副相 22 に比して第 1 副相 21 の方が  $S m$  の濃度が高くなることが確認できた試料については、第 1 副相 21 および第 2 副相 22 の欄のそれぞれに「○」が入力され、確認できなかった試料については、第 1 副相 21 および第 2 副相 22 の欄のそれぞれに「×」が入力されている。また、副相 20 が 1 つしか存在しない、または、副相 20 間の  $S m$  の濃度差がない状態のものは、第 1 副相 21 しか存在しないとして、第 1 副相 21 の欄のみに「○」が入力され、第 2 副相 22 の欄には「×」が入力されている。なお、第 1 副相 21 と第 2 副相 22 との濃度差は、E P M A を用いたマッピング分析により、第 2 副相 22 より第 1 副相 21 において  $S m$  の検出強度が平均して高いことを意味する。具体的には、図 13 の  $S m$  のマッピング図を例にすると、E P M A の  $S m$  の検出レベルの平均値が 5.4 に対して、第 1 副相 21 は 5.4 よりも高く、第 2 副相 22 は 5.4 よりも低い、すなわち凝集した状態で検出ができていない状態である。

30

【0095】

また、F E - E P M A で分析して得られた元素マッピングの強度比から、 $C N d < C P r$  である第 2 主相 12 の数よりも  $C N d > C P r$  である第 1 主相 11 の数の方が多く存在していることも確認できる。コアシェル構造のシェル部に着目したとき、第 1 主相 11 は  $C N d > S N d$ 、 $C P r < S P r$  の関係式を満たし、第 2 主相 12 は  $C N d < S N d$ 、 $C P r > S P r$  の関係式を満たすことも確認できる。

40

【0096】

次に、実施例 1 から 8 および比較例 1 から 12 による各試料における磁気特性の測定結果について説明する。磁気測定を行う各試料の形状は、縦、横および高さがすべて 7 mm

50

のブロック形状である。第1測定温度 $T_1$ は23 であり、第2測定温度 $T_2$ は200 である。23 は、室温である。第2測定温度 $T_2$ の200 は、自動車用モータおよび産業用モータの動作時の環境として、起こり得る温度である。

【0097】

まず、実施例1から8および比較例2から12による各試料における残留磁束密度および保磁力の判定は、比較例1と比較して行う。各試料の23 における残留磁束密度および保磁力の値が、比較例1での値と比較して測定誤差と考えられる1%以内の値を示した場合には、「同等」と判定し、1%以上高い値を示した場合には、「良」と判定し、1%以下の低い値を示した場合には、「不良」と判定する。

【0098】

次に、残留磁束密度の温度係数  $\alpha$  は、第1測定温度 $T_1$ の23 における残留磁束密度および第2測定温度 $T_2$ の200 における残留磁束密度を用いて算出される。また、保磁力の温度係数  $\beta$  は、第1測定温度 $T_1$ の23 における保磁力および第2測定温度 $T_2$ の200 における保磁力を用いて算出される。実施例1から8および比較例2から12による各試料における残留磁束密度の温度係数および保磁力の温度係数は、比較例1と比較して判定される。各試料について、比較例1による試料における残留磁束密度の温度係数の絶対値  $|\alpha|$  および保磁力の温度係数の絶対値  $|\beta|$  と比較して、測定誤差と考えられる $\pm 1\%$ 以内の値を示した場合には、「同等」と判定し、 $-1\%$ より低い値を示した場合には、「良」と判定し、 $+1\%$ より高い値を示した場合には、「不良」と判定する。「良」と判定された試料については、温度係数がより小さいことから、温度上昇に伴う磁気特性の低下が抑制され、高温環境下においても、安定的な磁気特性を有する希土類焼結磁石1を提供することができる。

【0099】

次に、着磁性能は、印加磁場20 kOeの磁気ヒステリシスとパーミアンス係数 $P_c$ との1の交点である磁束密度と、飽和磁化状態である印加磁場80 kOeの磁気ヒステリシスとパーミアンス係数 $P_c$ との1の交点である磁束密度と、の比から着磁率を算出する。実施例1から8および比較例2から12による各試料における着磁性能は、比較例1と比較して判定される。つまり、各試料について、比較例1による試料における着磁率と比較して、測定誤差と考えられる $-1\%$ 以上の値を示した場合には、「同等以上」と判定し、 $-1\%$ より低い値を示した場合には、「不良」と判定する。「同等以上」と判定された試料については、着磁性能が高い希土類焼結磁石1を提供することができる。

【0100】

以上の残留磁束密度、保磁力、残留磁束密度の温度係数、保磁力の温度係数および着磁性能の判定結果は、表3に示されている。

【0101】

比較例1は、Nd - Fe - Bとなるように、Nd, FeおよびFeBを原料として用いて特許文献1に記載されている製造方法に従って作製した希土類焼結磁石1の試料である。この試料の組織形態を上述した方法に従って観察すると、Prと、La, Smと、は添加されていないことから、主相10におけるコアシェル構造は確認できず、副相20におけるSmの濃度は、第2副相22に比して第1副相21の方が高いことも確認できない。また、この試料の磁気特性を上述した方法に従って評価すると、残留磁束密度は1.3 Tであり、保磁力は1000 kA/mである。残留磁束密度および保磁力の温度係数は、それぞれ  $|\alpha| = 0.191\% / \text{K}$ 、 $|\beta| = 0.460\% / \text{K}$  である。また着磁率は98.6%である。比較例1のこれらの値がリファレンスとして用いられる。

【0102】

比較例2は、(Nd, Dy) - Fe - Bとなるように、Nd, Dy, FeおよびFeBを原料として用いて特許文献1に記載されている製造方法に従って作製した希土類焼結磁石1の試料である。この試料の組織形態を上述した方法に従って観察すると、Prと、La, Smと、は添加されていないことから、主相10におけるコアシェル構造は確認できず、副相20におけるSmの濃度は、第2副相22に比して第1副相21の方が高いこと

10

20

30

40

50

も確認できない。また、この試料の磁気特性を上述した方法に従って評価すると、残留磁束密度は「不良」となり、保磁力は「良」となり、残留磁束密度の温度係数は「同等」となり、保磁力の温度係数は「同等」となり、着磁性能は「同等以上」となる。これは、結晶磁気異方性が高いDyがNdの一部と置換されることにより、保磁力が向上することを反映した結果となっている。

#### 【0103】

比較例3は、(Nd, Pr) - Fe - Bとなるように、Nd, Pr, FeおよびFeBを原料として用いて特許文献1に記載されている製造方法に従って作製した希土類焼結磁石1の試料である。この試料の組織形態を上述した方法に従って観察すると、Prが添加されたことより、NdおよびPrが混ざり合った主相10は確認できたものの、コアシェル構造を形成していない。また、La, Smが添加されていないことから、副相20におけるSmの濃度は、第2副相22に比して第1副相21の方が高いことも確認できない。この試料の磁気特性を上述した方法に従って評価すると、残留磁束密度は「同等」となり、保磁力は「良」となり、残留磁束密度の温度係数は「同等」となり、保磁力の温度係数は「不良」となり、着磁性能は「同等以上」となる。これは、Prの添加により、主相10の磁気異方性が高まり、保磁力は向上するものの、主相10および副相20における最適な組織形態でないことを反映した結果となっている。

10

#### 【0104】

比較例4は、(Nd, La, Sm) - Fe - Bとなるように、Nd, La, Sm, FeおよびFeBを原料として用いて特許文献1に記載されている製造方法に従って作製した希土類焼結磁石1の試料である。この試料の組織形態を上述した方法に従って観察すると、Prが添加されていないことにより、主相10のコアシェル構造は確認できない。また、LaおよびSmが添加されることより、Smの濃度は、Laの偏析に伴い、1つの副相20に偏析しているものの、第2副相22は存在しない。さらに、Smの濃度が第2副相22に比して第1副相21の方が高いことも確認できない。また、この試料の磁気特性を上述した方法に従って評価すると、残留磁束密度は「同等」となり、保磁力は「同等」となり、残留磁束密度の温度係数は「良」となり、保磁力の温度係数は「良」となり、着磁性能は「同等以上」となる。これは、La, Smが主相10または副相20に存在することにより、磁気特性の温度係数は良好な結果を示しているものの、室温における磁気特性は向上せず、主相10および副相20における最適な組織形態でないことを反映した結果となっている。

20

30

#### 【0105】

比較例5は、(Nd, La, Sm) - Fe - Bとなるように、Nd, La, Sm, FeおよびFeBを原料として用いて特許文献1に記載されている製造方法に従って作製した希土類焼結磁石1の試料である。比較例4とはNd, La, Smの組成比が異なっている。この試料の組織形態を上述した方法に従って観察すると、Prが添加されていないことにより、主相10のコアシェル構造は確認できない。また、LaおよびSmが添加されることより、Smの濃度は、Laの偏析に伴い、1つの副相20に偏析しているものの、第2副相22は存在しない。さらに、Smの濃度が第2副相22に比して第1副相21の方が高いことも確認できない。また、この試料の磁気特性を上述した方法に従って評価すると、残留磁束密度は「同等」となり、保磁力は「同等」となり、残留磁束密度の温度係数は「良」となり、保磁力の温度係数は「良」となり、着磁性能は「同等以上」となる。これは、La, Smが主相10または副相20に存在することにより、磁気特性の温度係数は良好な結果を示しているものの、室温における磁気特性は向上せず、主相10および副相20における最適な組織形態でないことを反映した結果となり、Nd, La, Smの組成比を変えても、比較例4とほぼ同様の結果が得られる。

40

#### 【0106】

比較例6は、(Nd, Pr, La, Sm) - Fe - Bとなるように、Nd, Pr, La, Sm, FeおよびFeBを原料として用いて特許文献1に記載されている製造方法に従って作製した希土類焼結磁石1の試料である。この試料の組織形態を上述した方法に従っ

50

て観察すると、Prが添加されたことより、NdおよびPrが混ざり合った主相10は確認できるものの、コアシェル構造を形成していない。また、LaおよびSmが添加されることより、Smの濃度は、Laの偏析に伴い、1つの副相20に偏析しているものの、第2副相22は存在しない。さらに、Smの濃度が第2副相22に比して第1副相21の方が高いことも確認できない。また、この試料の磁気特性を上述した方法に従って評価すると、残留磁束密度は「同等」となり、保磁力は「良」となり、残留磁束密度の温度係数は「良」となり、保磁力の温度係数は「同等」となり、着磁性能は「同等以上」となる。これは、Prの添加により、主相10の磁気異方性が高まり、保磁力は向上するとともに、La, Smが主相10または副相20に存在することにより、磁気特性の温度係数、特に保磁力の温度係数は改善する結果を示しているものの、主相10および副相20における最適な組織形態でないことを反映した結果となっている。

10

## 【0107】

比較例7は、Nd - Fe - Bとなるように、Nd, FeおよびFeBを原料として用いて特許文献2に記載されている熱間加工法を含む製造方法に従って作製した希土類焼結磁石1の試料である。この試料の組織形態を上述した方法に従って観察すると、Prと、La, Smとは添加されていないことから、主相10におけるコアシェル構造は確認できず、副相20におけるSmの濃度は、第2副相22に比して第1副相21の方が高いことも確認できない。しかし、熱間加工法で作製される磁石の特徴である組織の微細化が確認される。この試料の磁気特性を上述した方法に従って評価すると、残留磁束密度は「不良」となり、保磁力は「良」となり、残留磁束密度の温度係数は「同等」となり、保磁力の温度係数は「同等」となり、着磁性能は「不良」となる。これは、熱間加工法による組織の微細化に伴い、保磁力は向上しているものの、残留磁束密度の低下と着磁性能の悪化とを反映した結果となっている。

20

## 【0108】

比較例8は、(Nd, Dy) - Fe - Bとなるように、Nd, Dy, FeおよびFeBを原料として用いて特許文献2に記載されている熱間加工法を含む製造方法に従って作製した希土類焼結磁石1の試料である。この試料の組織形態を上述した方法に従って観察すると、Prと、La, Smとは添加されていないことから、主相10におけるコアシェル構造は確認できず、副相20におけるSmの濃度は、第2副相22に比して第1副相21の方が高いことも確認できない。また、この試料の磁気特性を上述した方法に従って評価すると、残留磁束密度は「不良」となり、保磁力は「良」となり、残留磁束密度の温度係数は「同等」となり、保磁力の温度係数は「同等」となり、着磁性能は「不良」となる。これは、熱間加工により作製されることに加え、結晶磁気異方性が高いDyがNdの一部と置換されることにより保磁力が大幅に向上するものの、その他の特性については、組織微細化を反映した結果となっている。

30

## 【0109】

比較例9は、(Nd, Pr) - Fe - Bとなるように、Nd, Pr, FeおよびFeBを原料として用いて特許文献2に記載されている熱間加工法を含む製造方法に従って作製した希土類焼結磁石1の試料である。この試料の組織形態を上述した方法に従って観察すると、Prの添加に加え、熱間加工により、コアシェル構造が確認されるが、コア部のPr濃度が高い1種類の主相10のみである。また、La, Smが添加されていないことから、副相20におけるSmの濃度は、第2副相22に比して第1副相21の方が高いことも確認できない。この試料の磁気特性を上述した方法に従って評価すると、残留磁束密度は「不良」となり、保磁力は「良」となり、残留磁束密度の温度係数は「同等」となり、保磁力の温度係数は「同等」となり、着磁性能は「不良」となる。これは、コア部のPr濃度が高いコアシェル構造の形成により、Dyを添加している希土類焼結磁石1のレベルまで保磁力が大幅に向上するものの、その他の特性については、組織微細化を反映した結果となっている。

40

## 【0110】

比較例10は、(Nd, La, Sm) - Fe - Bとなるように、Nd, La, Sm, F

50

e および FeB を原料として用いて特許文献 2 に記載されている熱間加工法を含む製造方法に従って作製した希土類焼結磁石 1 の試料である。この試料の組織形態を上述した方法に従って観察すると、Pr が添加されていないことにより、主相 10 のコアシェル構造は確認できない。また、La および Sm が添加されることにより、Sm の濃度は、La の偏析に伴い、1 つの副相 20 に偏析しているものの、第 2 副相 22 は存在しない。さらに、Sm の濃度が第 2 副相 22 に比して第 1 副相 21 の方が高いことも確認できない。また、この試料の磁気特性を上述した方法に従って評価すると、残留磁束密度は「不良」となり、保磁力は「良」となり、残留磁束密度の温度係数は「良」となり、保磁力の温度係数は「良」となり、着磁性能は「不良」となる。これは、La, Sm が主相 10 または副相 20 に存在することにより、磁気特性の温度係数は良好な結果を示しているものの、室温における残留磁束密度および着磁性能は向上せず、主相 10 および副相 20 における最適な組織形態でないことを反映した結果となっている。

10

#### 【0111】

比較例 11 は、(Nd, La, Sm) - Fe - B となるように、Nd, La, Sm, Fe および FeB を原料として用いて特許文献 2 に記載されている熱間加工法を含む製造方法に従って作製した希土類焼結磁石 1 の試料である。比較例 10 とは Nd, La, Sm の組成比が異なっている。この試料の組織形態を上述した方法に従って観察すると、Pr が添加されていないことにより、主相 10 のコアシェル構造は確認できない。また、La および Sm が添加されることにより、Sm の濃度は、La の偏析に伴い、1 つの副相 20 に偏析しているものの、第 2 副相 22 は存在しない。さらに、Sm の濃度が第 2 副相 22 に比して第 1 副相 21 の方が高いことも確認できない。また、この試料の磁気特性を上述した方法に従って評価すると、残留磁束密度は「不良」となり、保磁力は「良」となり、残留磁束密度の温度係数は「良」となり、保磁力の温度係数は「良」となり、着磁性能は「不良」となる。これは、La, Sm が主相 10 または副相 20 に存在することにより、磁気特性の温度係数は良好な結果を示しているものの、室温における残留磁束密度および着磁性能は向上せず、主相 10 および副相 20 における最適な組織形態でないことを反映した結果となる。Nd, La, Sm の組成比を変えても、比較例 10 とほぼ同様の結果が得られる。

20

#### 【0112】

比較例 12 は、(Nd, Pr, La, Sm) - Fe - B となるように、Nd, Pr, La, Sm, Fe および FeB を原料として用いて特許文献 2 に記載されている熱間加工法を含む製造方法に従って作製した希土類焼結磁石 1 の試料である。この試料の組織形態を上述した方法に従って観察すると、Pr の添加に加え、熱間加工により、コアシェル構造が確認されるが、コア部の Pr 濃度が高い 1 種類の主相 10 のみである。また、La および Sm が添加されることにより、Sm の濃度は、La の偏析に伴い、1 つの副相 20 に偏析しているものの、第 2 副相 22 は存在しない。さらに、Sm の濃度が第 2 副相 22 に比して第 1 副相 21 の方が高いことも確認できない。また、この試料の磁気特性を上述した方法に従って評価すると、残留磁束密度は「不良」となり、保磁力は「良」となり、残留磁束密度の温度係数は「良」となり、保磁力の温度係数は「良」となり、着磁性能は「不良」となる。これは、コア部の Pr 濃度が高いコアシェル構造の形成により、Dy を添加している希土類焼結磁石 1 のレベルまで保磁力が大幅に向上し、La, Sm が主相 10 または副相 20 に存在することにより、磁気特性の温度係数、特に保磁力の温度係数は良好な結果を示している。しかし、室温における残留磁束密度および着磁性能は向上せず、主相 10 および副相 20 における最適な組織形態でないことを反映した結果ともなっている。

30

40

#### 【0113】

実施例 1 から 8 の試料は、R を Nd, Pr 以外から選択される 1 種類以上の希土類元素とし、一般式 (Nd, Pr, R) - Fe - B を満たし、Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 結晶構造を基本とする結晶粒を含む主相 10 を有し、主相 10 は、コア部とコア部を被覆するシェル部とを有し、主相 10 は、CNd > CPr である第 1 主相 11 と、CNd < CPr である第 2 主相 12 と、が混在している希土類焼結磁石 1 である。また、R = La, Sm とした場合で

50

あり、第1主相11および第2主相12に加え、主成分が(Nd, Pr, La, Sm)-Oとして表される酸化物相を基本とする結晶性の第1副相21と、主成分が(Nd, Pr, La)-Oとして表される結晶性の第2副相22と、を有し、Smの濃度は、第2副相22に比して第1副相21の方が高いことを特徴としている。実施例1から8の試料の磁気特性を上述した方法に従って評価すると、残留磁束密度は「良」となり、保磁力は「良」となり、残留磁束密度の温度係数は「良」となり、保磁力の温度係数は「良」となり、着磁性能は「同等以上」となる。この結果、これらの希土類焼結磁石1は、高価でかつ地域偏在性が高く調達リスクがあるNdおよび重希土類元素の使用を抑えながら、従来に比して優れた磁気特性および着磁性を有するという効果を奏する。

【0114】

以上の実施の形態に示した構成は、一例を示すものであり、別の公知の技術と組み合わせることも可能であるし、実施の形態同士を組み合わせることも可能であるし、要旨を逸脱しない範囲で、構成の一部を省略、変更することも可能である。

【符号の説明】

【0115】

1 希土類焼結磁石、10 主相、11 第1主相、11c, 12c コア部、11s, 12s シェル部、12 第2主相、20 副相、21 第1副相、22 第2副相、100 回転子、101 回転子鉄心、102 磁石挿入穴、120 回転機、130 固定子、131 ティース、132 巻線。

10

20

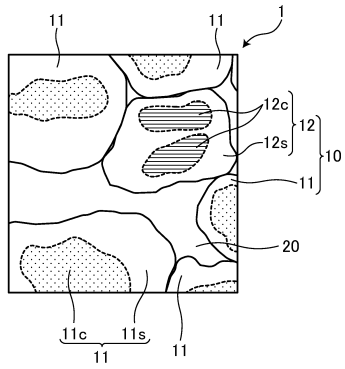
30

40

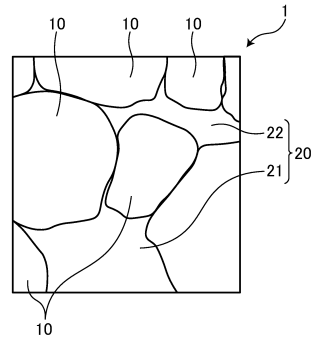
50

【図面】

【図 1】

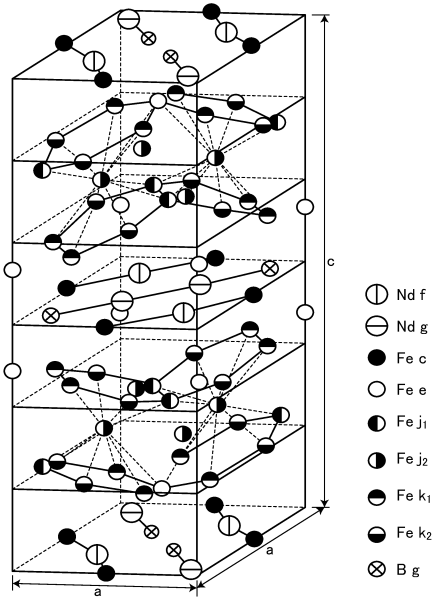


【図 2】

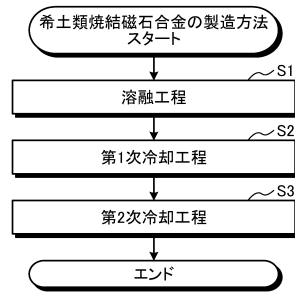


10

【図 3】



【図 4】



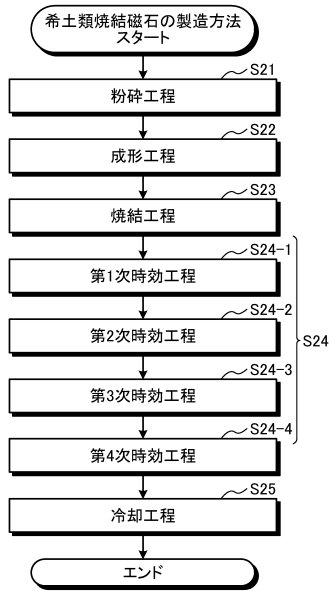
20

30

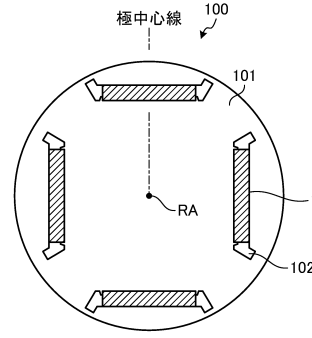
40

50

【 図 5 】



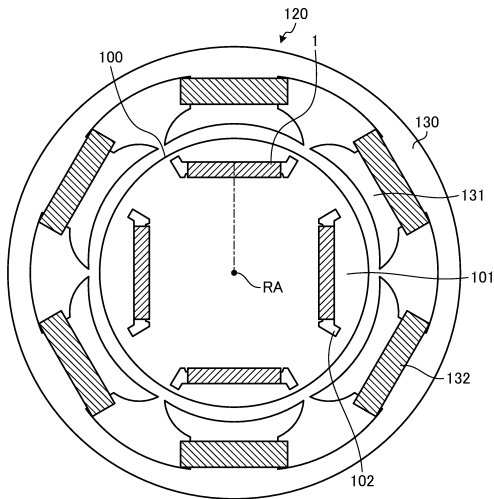
【 図 6 】



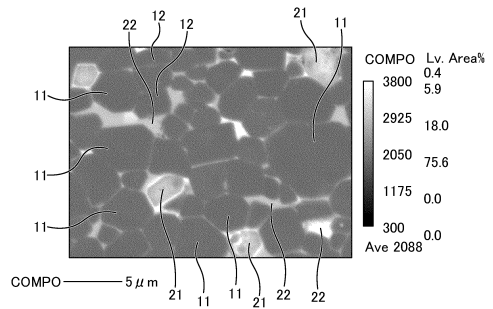
10

20

【 図 7 】



【 図 8 】

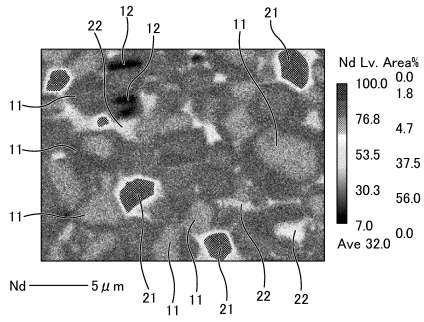


30

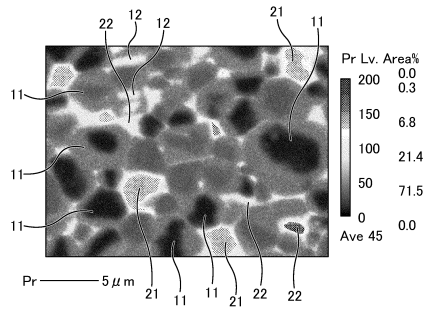
40

50

【 9 】

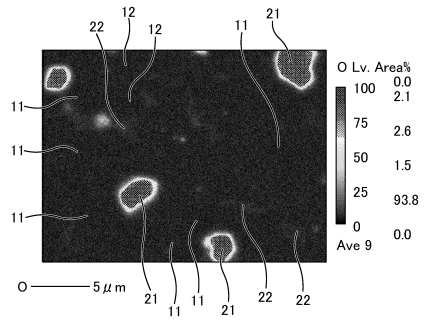


【 1 0 】

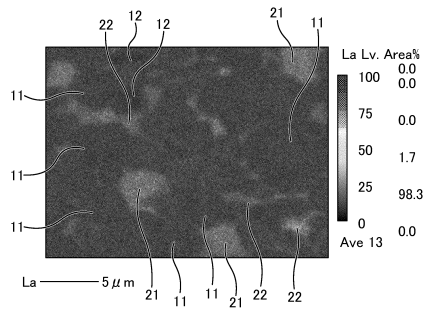


10

【 1 1 】



【 1 2 】



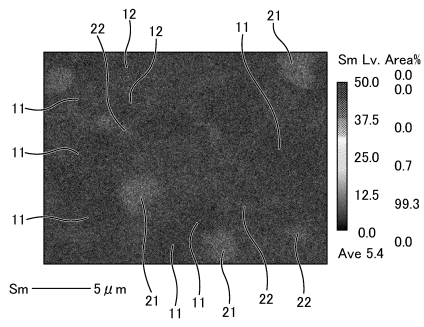
20

30

40

50

【 図 13 】



10

20

30

40

50

---

フロントページの続き

- (56)参考文献 特開 2 0 2 1 - 1 7 4 8 1 8 ( J P , A )  
特開 2 0 2 2 - 0 5 4 2 3 1 ( J P , A )  
国際公開第 2 0 2 3 / 0 1 2 9 2 9 ( W O , A 1 )
- (58)調査した分野 (Int.Cl. , D B 名)
- H 0 1 F 1 / 0 5 7  
H 0 1 F 4 1 / 0 2