

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5510457号
(P5510457)

(45) 発行日 平成26年6月4日 (2014.6.4)

(24) 登録日 平成26年4月4日 (2014.4.4)

(51) Int.Cl.	F I
H O 1 F 41/02 (2006.01)	H O 1 F 41/02 G
H O 1 F 1/057 (2006.01)	H O 1 F 1/04 H
C 2 2 C 33/02 (2006.01)	C 2 2 C 33/02 H
B 2 2 F 3/24 (2006.01)	B 2 2 F 3/24 K
C 2 2 C 38/00 (2006.01)	B 2 2 F 3/24 B

請求項の数 5 (全 21 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2011-522805 (P2011-522805)	(73) 特許権者	000005083
(86) (22) 出願日	平成22年7月12日 (2010.7.12)		日立金属株式会社
(86) 国際出願番号	PCT/JP2010/061776		東京都港区芝浦一丁目2番1号
(87) 国際公開番号	W02011/007758	(74) 代理人	100101683
(87) 国際公開日	平成23年1月20日 (2011.1.20)		弁理士 奥田 誠司
審査請求日	平成25年4月9日 (2013.4.9)	(74) 代理人	100155000
(31) 優先権主張番号	特願2009-166488 (P2009-166488)		弁理士 喜多 修市
(32) 優先日	平成21年7月15日 (2009.7.15)	(72) 発明者	國吉 太
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		大阪府三島郡島本町江川2-15-17
			日立金属株式会社磁性材料研究所内
		審査官	五貫 昭一

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 R-T-B系焼結磁石の製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

R - T - B 系焼結磁石体を準備する工程と、
重希土類元素 R H (D y および T b の少なくとも 1 種) の金属または合金からなる R H 拡散源を準備する工程と、

前記 R - T - B 系焼結磁石体と前記 R H 拡散源とを相対的に移動可能かつ近接または接触可能に処理室内に装入する工程と、

前記 R - T - B 系焼結磁石体と前記 R H 拡散源とを前記処理室内にて、回転、揺動、振動の少なくとも 1 つにより連続的または断続的に移動させながら、500 以上 850

以下の熱処理を 10 分以上行う R H 拡散工程と、
を包含する R - T - B 系焼結磁石の製造方法。

【請求項 2】

前記 R H 拡散工程において、前記処理室を周速度 0.01 m / s 以上の速度で回転させる、請求項 1 に記載の R - T - B 系焼結磁石の製造方法。

【請求項 3】

前記 R H 拡散工程における前記熱処理は、前記処理室の内部圧力を 100 k P a 以下に調整して行う、請求項 1 または 2 のいずれかに記載の R - T - B 系焼結磁石の製造方法。

【請求項 4】

前記 R H 拡散工程における前記熱処理は、前記処理室を加熱することにより、前記 R - T - B 系焼結磁石体および前記 R H 拡散源の両方を加熱して行う、請求項 1 から 3 のい

10

20

れかに記載の R - T - B 系焼結磁石の製造方法。

【請求項 5】

前記 R H 拡散工程の前または途中において、攪拌補助部材を前記処理室内に投入する、請求項 1 から 4 のいずれかに記載の R - T - B 系焼結磁石の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、 $R_2T_{14}B$ 型化合物（R は希土類元素）を主相として有する R - T - B 系焼結磁石（T は Fe を含む遷移金属元素）の製造方法に関し、特に、軽希土類元素 R L（Nd および Pr の少なくとも 1 種）を主たる希土類元素 R として含有し、かつ、軽希土類元素 R L の一部が重希土類元素 R H（Dy および Tb からなる群から選択された少なくとも 1 種）によって置換されている R - T - B 系焼結磁石の製造方法に関する。

10

【背景技術】

【0002】

$Nd_2Fe_{14}B$ 型化合物を主相とする R - T - B 系焼結磁石は、永久磁石の中で最も高性能な磁石として知られており、ハードディスクドライブのボイスコイルモータ（VCM）や、ハイブリッド車搭載用モータ等の各種モータや家電製品等に使用されている。Nd の一部または全部は他の希土類元素 R に置き換えられても良く、Fe の一部は他の遷移金属元素に置き換えられても良いため、 $Nd_2Fe_{14}B$ 型化合物は、 $R_2T_{14}B$ 型化合物と表現される場合がある。なお、B の一部は C（炭素）に置き換えられ得る。

20

【0003】

R - T - B 系焼結磁石は、高温で保磁力が低下するため、高温暴露により減磁する不可逆減磁が起こる。不可逆減磁を回避するため、モータ用等に使用する場合、高温下でも高い保磁力を維持することが要求されている。これを満足するためには、常温での保磁力を高めるか、もしくは要求温度までの保磁力変化を小さくする必要がある。

【0004】

$R_2T_{14}B$ 型化合物相中の軽希土類元素 R L である Nd を重希土類元素 R H（Dy、Tb）で置換すると、保磁力が向上することが知られている。高温で高い保磁力を得るためには、R - T - B 系焼結磁石用の原料合金中に重希土類元素 R H を多く添加することが有効であると考えられてきた。しかし、R - T - B 系焼結磁石において、軽希土類元素 R L（Nd, Pr）を重希土類元素 R H で置換すると、保磁力が向上する一方、残留磁束密度が低下してしまうという問題がある。また、重希土類元素 R H は希少資源であるため、その使用量を削減することが求められている。

30

【0005】

そこで、近年、残留磁束密度を低下させないように、より少ない重希土類元素 R H によって R - T - B 系焼結磁石の保磁力を向上させることが検討されている。本願出願人は、既に特許文献 1 において、R - Fe - B 系合金の焼結磁石体表面に Dy 等の重希土類元素 R H を供給しつつ、該表面から重希土類元素 R H を焼結磁石体の内部に拡散させる（以下「蒸着拡散」という）方法を開示している。特許文献 1 では、高融点金属材料からなる処理室の内部において、R - T - B 系焼結磁石体と R H バルク体とが所定間隔をあけて対向配置される。処理室は、複数の R - T - B 系焼結磁石体を保持する部材と、R H バルク体を保持する部材とを備えている。このような装置を用いる方法では、処理室内に R H バルク体を配置する工程、保持部材と網を載せる工程、網の上に焼結磁石体を配置する工程、更にその上に保持部材と網を載せる工程、網の上に上方の R H バルク体を配置する工程、処理室を密閉して蒸着拡散を行う工程という一連の作業が必要となる。

40

【0006】

特許文献 2 は、Nd - Fe - B 系金属間化合物磁性材料の磁気特性を向上させることを目的として、低沸点の Yb 金属粉末と Nd - Fe - B 系焼結磁石成形体とを耐熱密封容器内に封入して加熱し、それによって Yb 金属の被膜を焼結磁石成形体の表面に均一に堆積し、この被膜から焼結磁石の内部に希土類元素を拡散させることを開示している（特許文

50

献 2 の実施例 5)。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0007】

【特許文献 1】国際公開第 2007/102391 号

【特許文献 2】特開 2004-296973 号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

特許文献 1 の方法では、処理室内において、R - T - B 系焼結磁石体と重希土類元素 R H からなる R H バルク体とを離間して配置する必要があるため、配置のための工程に手間がかかり、量産性に劣るという問題がある。また、D y や T b の供給が昇華によってなされるため、R - T - B 系焼結磁石体への拡散量を増加してより高い保磁力を得るには長時間を要し、特に T b は、飽和蒸気圧が D y よりも低いいため、拡散量を多くすることが困難であった。

10

【0009】

一方、特許文献 2 の方法によると、Y b、E u、S m のように飽和蒸気圧の高い希土類金属であれば、R - T - B 系焼結磁石体への被膜の形成と被膜からの拡散とを同一温度範囲（例えば 800 ~ 850 ）の熱処理によって実行することが可能であるが、特許文献 2 によれば、D y や T b のように蒸気圧の低い希土類元素を収着するためには、高周波加熱用コイルを用いた誘導加熱により希土類金属を選択的に高温に加熱することが必要になる。このように D y や T b からなる収着源を焼結磁石体よりも高い温度に加熱する場合は、収着源と磁石体とを離間させることが必要になり、特許文献 1 に記載の方法と同様の問題が生じ得る。また、特許文献 2 の技術思想及び方法によれば、焼結磁石体の表面に D y や T b の被膜が厚く（例えば数十 μ m 以上）形成されるため、焼結磁石体の表面近傍において主相結晶粒の内部に D y や T b が拡散してしまうため、残留磁束密度の低下が発生することになる。

20

【0010】

本発明は、上記事情に鑑みてなされたものであり、その目的は、残留磁束密度を低下させることなく D y や T b の重希土類元素 R H を焼結磁石体の表面から内部に拡散させる工程が量産に適したものである R - T - B 系焼結磁石の製造方法を提供することである。

30

【課題を解決するための手段】

【0011】

本発明による R - T - B 系焼結磁石の製造方法は、R - T - B 系焼結磁石体を準備する工程と、重希土類元素 R H（D y および T b の少なくとも 1 種）の金属または合金からなる R H 拡散源を準備する工程と、前記 R - T - B 系焼結磁石体と前記 R H 拡散源とを相対的に移動可能かつ近接または接触可能に処理室内に装入する工程と、前記 R - T - B 系焼結磁石体と前記 R H 拡散源とを前記処理室内にて連続的または断続的に移動させながら、500 以上 850 以下の熱処理を 10 分以上行う R H 拡散工程とを包含する。

【0012】

40

好ましい実施形態において、前記 R H 拡散工程は、前記処理室を回転させる工程を含む。

【0013】

好ましい実施形態において、前記 R H 拡散工程において、前記処理室を周速度 0.01 m / s 以上の速度で回転させる。

【0014】

好ましい実施形態において、前記 R H 拡散工程における前記熱処理は、前記処理室の内部圧力を 100 kPa 以下に調整して行う。

【0015】

好ましい実施形態において、前記 R H 拡散工程における前記熱処理は、前記処理室を加

50

熱することにより、前記 R - T - B 系焼結磁石体および前記 R H 拡散源の両方を加熱して行う。

【発明の効果】

【0016】

本発明によれば、拡散処理温度が公知技術より低く、かつ比較的雰囲気圧力が高い条件でも、Dy や Tb の重希土類元素 R H を焼結磁石体の表面から内部に拡散させることが可能になる。また、本発明では、拡散処理中に例えば処理室を回転、揺動、振動させることにより、加熱により拡散源が溶けて焼結磁石体と接合してしまう溶着を避けることができる。さらに処理室内に所定の配置関係で拡散源と焼結磁石体とを丁寧に配置する必要がなくなるため、装入作業が簡単であり、量産性に優れている。

10

【図面の簡単な説明】

【0017】

【図1】本発明の好ましい実施形態で使用される拡散装置の構成を模式的に示す断面図である。

【図2】拡散処理工程時におけるヒートパターンの一例を示すグラフである。

【図3】保磁力 H_{cJ} の増加量と拡散温度との関係を示すグラフである。

【図4】保磁力 H_{cJ} の増加量と、拡散処理による Dy 含有量の増加分（質量％）との関係を示すグラフである。

【図5】保磁力 H_{cJ} の増加量と拡散温度との関係を示すグラフである。

【発明を実施するための形態】

20

【0018】

本発明の製造方法では、R - T - B 系焼結磁石体と R H 拡散源とを相対的に移動可能かつ近接または接触可能に処理室（または処理容器）内に装入し、それらを 500 以上 850 以下の温度範囲に保持する。このとき、例えば、処理室を回転または揺動させたり、処理室に振動を加えたりすることにより、前記 R - T - B 系焼結磁石体と前記 R H 拡散源とを前記処理室内にて連続的にまたは断続的に移動して、R - T - B 系焼結磁石体と R H 拡散源との接触部の位置を変化させたり、R - T - B 系焼結磁石体と R H 拡散源とを近接・離間させながら、重希土類元素 R H の気化（昇華）による供給と焼結磁石体への拡散とを同時に実行する（R H 拡散工程）。

【0019】

30

500 以上 850 以下という温度範囲は、R - T - B 系焼結磁石において、希土類元素の拡散が進行し得る温度ではあるが、Dy や Tb の気化（昇華）が生じにくい温度である。しかし、本願発明者が処理室内で R H 拡散源を R - T - B 系焼結磁石体（以下、単に「焼結磁石体」という場合がある）に接触させながら熱処理を行ってみると、意外にも、重希土類元素 R H は焼結磁石体の内部に拡散し、その保磁力を増加させることがわかった。このような温度範囲で拡散が生じる理由は、R H 拡散源と焼結磁石体とが近接又は接触し、両者の距離が充分に小さくなるためであると考えられる。

【0020】

ただし、R H 拡散源と焼結磁石体とが一定箇所に固定して長時間接触した状態で 500 から 850 で保持をすると、R H 拡散源が焼結磁石体の表面に溶着するという問題が生じてしまう。また、長時間近接した状態で熱処理を進行させると、重希土類元素 R H が過大供給され焼結磁石体表面に R H 被膜を生成してしまい特許文献 2 と同様に残留磁束密度 B_r の低下を招くという問題が生じてしまう。本発明は、このような問題を解決するため、予め処理室内に焼結磁石体と R H 拡散源とを相対的に移動可能かつ近接または接触可能に装入し、これらを処理室内にて連続または断続的に移動することで、上記溶着を防止するとともに目的とする R H 拡散を実現したのである。つまり R - T - B 系焼結磁石体と R H 拡散源とを前記のように処理室内に装入・移動することで R H 拡散源と焼結磁石体とが一定箇所に固定して長時間接触または近接した状態とならず、連続的にまたは断続的に R H 拡散源と焼結磁石体との接触部を移動させたり、R H 拡散源と焼結磁石体とを近接・離間させながら、R H 拡散工程を行うことが可能となる。

40

50

【 0 0 2 1 】

なお、本発明において、「焼結磁石体とR H拡散源とを相対的に移動可能かつ近接または接触可能に処理室内に装入する」とは、前記の通り、装入工程後のR H拡散工程において焼結磁石体とR H拡散源とが処理室内にて連続または断続的に移動することで、R H拡散源と焼結磁石体とが一定箇所に固定して長時間（例えば、850 で2分以上）接触または近接した状態に拘束されないように装入することを意味する。従って、本発明では、特許文献1に記載するように焼結磁石体とR H拡散源を所定位置に配置する必要はない。

【 0 0 2 2 】

R H拡散工程において焼結磁石体とR H拡散源とを処理室内にて連続的または断続的に移動する方法としては、焼結磁石体に欠けや割れを発生させることなく、連続的にまたは断続的にR H拡散源と焼結磁石体との接触部を移動させたりR H拡散源と焼結磁石体とを近接・離間させることが可能であれば、前記の通り処理室を回転・揺動したり、外部から処理室に振動を加えたりする方法の他、処理室内に攪拌手段を設ける等、種々の方法が可能となる。

【 0 0 2 3 】

本発明によれば、500 以上850 以下という低い温度であるにもかかわらず、R H供給源が焼結磁石体と近接または接触するため、R H拡散源から昇華した重希土類元素R Hが効果的に焼結磁石体に供給され、その内部に粒界を通じて拡散することができる。

【 0 0 2 4 】

なお、重希土類元素R Hの膜（R H膜）を焼結磁石体の表面に形成した後、熱処理により焼結磁石体の内部に拡散させる従来技術では、R H膜と接する表層領域で主相結晶粒の内部にまで重希土類元素R Hが拡散し、保磁力 H_{cJ} が向上するが残留磁束密度 B_r が低下してしまう。これに対し、磁石体表面に飛来した重希土類元素R Hを粒界拡散によって速やかに焼結磁石体内部に浸透させて行くために、焼結磁石体表面に重希土類元素R Hの被膜を形成することはない。従って、焼結磁石体の表層領域においても、主相結晶粒の内部に重希土類元素R Hが拡散しにくく、残留磁束密度 B_r の低下を抑制し、保磁力 H_{cJ} を効果的に向上させることが可能になる。

【 0 0 2 5 】

また、処理室を回転または揺動させたり、処理室に振動を加えたりすることにより、R H拡散源と焼結磁石体との接触部を移動させながら、重希土類元素R Hの気化（昇華）および直接接触による供給と焼結磁石体への拡散とを同時に実行することにより、R H拡散源と焼結磁石体を所定位置に並べる載置の時間が不要となる。

【 0 0 2 6 】

R - T - B系焼結磁石の、主相結晶粒の外殻部における結晶磁気異方性が高められると、主相全体の保磁力 H_{cJ} が効果的に向上する。本発明では、焼結磁石体の表面に近い領域だけでなく、焼結磁石体表面から奥深い領域においても重希土類置換層を主相外殻部に形成することができるため、焼結磁石体全体にわたって主相外殻部で効率良く重希土類元素R Hが濃縮された層を形成することにより、保磁力 H_{cJ} を向上させることが可能になると同時に、主相内部には重希土類元素R Hの濃度の低い部分が残存するため、残留磁束密度 B_r を殆ど低下させない。

【 0 0 2 7 】

上記説明から明らかなように、本発明では、必ずしもR H拡散処理前のR - T - B系焼結磁石体に重希土類元素R Hを添加しておく必要はない。すなわち、希土類元素Rとして軽希土類元素R L（NdおよびPrの少なくとも1種）を含有する公知のR - T - B系焼結磁石体を用意し、その表面から重希土類元素R Hを磁石内部に拡散する。従来の重希土類元素の被膜を磁石表面に形成した方法では残留磁束密度 B_r を低下させずに磁石内部の奥深くまで重希土類元素R Hを拡散させることは困難であったが、本発明によれば、重希土類元素R Hの粒界拡散により、焼結磁石体の内部に位置する主相の外殻部にも重希土類元素R Hを効率的に供給することが可能になる。もちろん、本発明は、原料合金の段階またはR H拡散処理前のR - T - B系焼結磁石体の段階において重希土類元素R Hが添加さ

10

20

30

40

50

れている R - T - B 系焼結磁石に対して適用しても良い。ただし、原料合金の段階または R H 拡散処理前の R - T - B 系焼結磁石体の段階で多量の重希土類元素 R H を添加したのでは、本発明の効果を十分に奏することはできないため、相対的に少ない量の重希土類元素 R H が添加され得る。

【 0 0 2 8 】

[R - T - B 系焼結磁石体]

まず、本発明では、重希土類元素 R H の拡散の対象とする R - T - B 系焼結磁石体を用意する。この焼結磁石体は、以下の組成からなる。

希土類元素 R : 1 2 ~ 1 7 原子 %

B (B の一部は C で置換されていてもよい) : 5 ~ 8 原子 %

添加元素 M (A l 、 T i 、 V 、 C r 、 M n 、 N i 、 C u 、 Z n 、 G a 、 Z r 、 N b 、 M o 、 A g 、 I n 、 S n 、 H f 、 T a 、 W 、 P b 、 および B i からなる群から選択された少なくとも 1 種) : 0 ~ 2 原子 %

T (F e を主とする遷移金属であって、C o を含んでもよい) および不可避不純物 : 残部

ここで、希土類元素 R は、主として軽希土類元素 R L から選択される少なくとも 1 種の元素であるが、重希土類元素を含有していてもよい。なお、重希土類元素は、D y および T b の少なくとも一方を含むことが好ましい。

【 0 0 2 9 】

上記組成の R - T - B 系焼結磁石体は、任意の製造方法によって製造されるが、例えば以下に示す製造方法によって好適に作製される。

【 0 0 3 0 】

[原料合金]

まず、最終的に上記組成を有する焼結磁石体となるように組成が調整された合金を用意する。この合金は、原料合金の溶湯を例えばストリップキャスト法によって急冷して好適に作製され得る。以下、ストリップキャスト法による急冷凝固合金の作製を説明する。

【 0 0 3 1 】

まず、素原料を所定組成になるよう配合し、例えばアルゴン雰囲気中において高周波溶解によって溶融し、原料合金の溶湯を形成する。次に、この溶湯を 1 3 5 0 程度に保持した後、単ロール法によって急冷し、例えば厚さ約 0 . 3 m m のフレーク状合金鑄塊を得る。こうして作製した合金鑄片を、次の水素粉砕前に例えば 1 ~ 1 0 m m の大きさのフレーク状に粉砕する。なお、ストリップキャスト法による原料合金の製造方法は、例えば、米国特許第 5 、 3 8 3 、 9 7 8 号明細書に開示されている。

【 0 0 3 2 】

[粗粉砕工程]

上記のフレーク状に粗く粉砕された合金鑄片を水素炉の内部へ収容する。次に、水素炉の内部で水素脆化処理 (以下、「水素粉砕処理」と称する場合がある) 工程を行う。水素粉砕後の粗粉砕合金粉末を水素炉から取り出す際、粗粉砕粉が大気と接触しないように、不活性雰囲気下で取り出し動作を実行することが好ましい。そうすれば、粗粉砕粉が酸化・発熱することが防止され、磁石の磁気特性の低下が抑制できるからである。

【 0 0 3 3 】

水素粉砕によって、希土類合金からなる原料合金は 0 . 1 m m ~ 数 m m 程度の大きさに粉砕され、その平均粒径は 5 0 0 μ m 以下となる。水素粉砕後、脆化した原料合金をより細かく解砕するとともに冷却することが好ましい。比較的高い温度状態のまま原料を取り出す場合は、冷却処理の時間を相対的に長くすれば良い。

【 0 0 3 4 】

[微粉砕工程]

次に、粗粉砕粉に対してジェットミル粉砕装置を用いて微粉砕を実行する。本実施形態で使用するジェットミル粉砕装置にはサイクロン分級機が接続されている。ジェットミル粉砕装置は、粗粉砕工程で粗く粉砕された希土類合金 (粗粉砕粉) の供給を受け、粉砕機

10

20

30

40

50

内で粉碎する。粉碎機内で粉碎された粉末はサイクロン分級機を経て回収タンクに集められる。こうして、 $0.1 \sim 20 \mu\text{m}$ 程度（典型的には $3 \sim 5 \mu\text{m}$ ）の微粉末を得ることができる。このような微粉碎に用いる粉碎装置は、ジェットミルに限定されず、アトライタやボールミルであってもよい。粉碎に際して、ステアリン酸亜鉛などの潤滑剤を粉碎助剤として用いてもよい。

【0035】

〔プレス成形〕

本実施形態では、上記方法で作製された磁性粉末に対し、例えばロッキングミキサー内で潤滑剤を例えば0.3質量%添加・混合し、潤滑剤で合金粉末粒子の表面を被覆する。次に、上述の方法で作製した磁性粉末を公知のプレス装置を用いて配向磁界中で成形する。印加する磁界の強度は、例えば $0.8 \sim 1.5 \text{ MA/m}$ である。また、成形圧力は、成形体のグリーン密度が例えば $4 \sim 4.5 \text{ g/cm}^3$ 程度になるように設定される。

【0036】

〔焼結工程〕

上記の粉末成形体に対して、 $650 \sim 1000$ の範囲内の温度で $10 \sim 240$ 分間保持する工程と、その後、上記の保持温度よりも高い温度（例えば $1000 \sim 1200$ ）で焼結を更に進める工程とを順次行なうことが好ましい。焼結時、特に液相が生成されるとき（温度が $650 \sim 1000$ の範囲内にあるとき）、粒界相中のRリッチ相が融け始め、液相が形成される。その後、焼結が進行し、焼結磁石体が形成される。焼結磁石体の表面が酸化された状態でも蒸着拡散処理を施すことができるため、焼結工程の後、時効処理（ $400 \sim 700$ ）や、寸法調整のための研削加工を行っても良い。

【0037】

以下、こうして作製された焼結磁石体に対して行う拡散処理工程を詳細に説明する。

【0038】

〔RH拡散源〕

RH拡散源、すなわち、DyおよびTbの少なくとも1種からなる重希土類元素RHまたはそれらを含む合金で、ブロック状、小片状など形状・大きさは特に限定されない。合金の場合は、重希土類元素RHを20原子%以上含む合金であるのが好ましい。RH拡散源は、本発明の効果を損なわない限りにおいて、Dy、Tb以外に、Fe、Nd、Pr、La、Ce、Gd、Zn、Sn、Al、Cu、ZrおよびCoからなる群から選択された少なくとも1種の合金を含むてもよい。さらに、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Ga、Nb、Mo、Ag、In、Hf、Ta、W、Pb、Si、およびBiからなる群から選択された少なくとも1種を含んでいてもよい。

【0039】

処理室の回転や振動によって接触点が速やかに移動しやすい観点から、RH拡散源の表面には曲面が形成されていることが好ましい。RH拡散源の好ましい形状の例は、例えば、球状、楕円球状、円柱状であり、切粉などの粉末状であってもよい。但し、粉末状の場合、粒径 $200 \mu\text{m}$ 以下の粉末が多いと溶着が生じ易くなるため好ましくない。RH拡散源は、典型的には、DyメタルやTbメタルから形成されるが、他の元素を含む合金であってもよい。RH拡散源の大きさは、焼結磁石体よりも小さくても、大きくても良い。ただし、処理室内において、処理室の回転、揺動、振動に応じて動きやすい大きさであることが好ましい。

【0040】

本発明の実施形態では、R-T-B系焼結磁石体とRH拡散源に加えて、攪拌補助部材を処理室内に導入することが好ましい。攪拌補助部材はRH拡散源とR-T-B系焼結磁石体との接触を促進し、また攪拌補助部材に付着した重希土類元素RHをR-T-B系焼結磁石体へ間接的に供給する役割をする。さらに、攪拌補助部材は、処理室内において、R-T-B系焼結磁石体同士やR-T-B系焼結磁石体とRH拡散源との接触による欠けを防ぐ役割もある。

【0041】

10

20

30

40

50

攪拌補助部材は処理室内で運動しやすい形状にし、その攪拌補助部材を R - T - B 系焼結磁石体と R H 拡散源と混合して処理室の回転、揺動、振動を行うことが効果的である。ここで運動しやすい形状の例として、直径数百 μm から数十 mm の球状、楕円状、円柱状等が挙げられる。

【 0 0 4 2 】

攪拌補助部材は、比重が焼結磁石体とほぼ等しくかつ R H 拡散処理中に R - T - B 系焼結磁石体および R H 拡散源と接触しても、反応しにくい材料から形成されることが好ましい。攪拌補助部材としてはジルコニア、窒化ケイ素、炭化ケイ素並びに窒化硼素、または、これらの混合物のセラミックスから好適に形成され得る。また、Mo、W、Nb、Ta、Hf、Zr を含む属の元素、または、これらの混合物からも形成され得る。

10

【 0 0 4 3 】

攪拌補助部材は、R H 拡散工程の前、または途中に処理室内に投入され得る。

【 0 0 4 4 】

[R H 拡散工程]

図 1 を参照しながら、本発明による拡散処理工程の好ましい例を説明する。

【 0 0 4 5 】

図 1 に示す例では、R - T - B 系焼結磁石体 1 および R H 拡散源 2 がステンレス製の筒 3 の内部に置かれている。この例では、筒 3 が「処理室」として機能する。筒 3 の材料は、ステンレスに限定されず、500 ~ 850 の温度に耐える耐熱性を有し、R - T - B 系焼結磁石体 1 および R H 拡散源 2 と反応しにくい材料であれば任意である。例えば、Nb、Mo、W、及びそれらの合金を用いてもよい。筒 3 には開閉または取り外し可能な蓋 5 が設けられている。また筒 3 の内壁には、R H 拡散源と焼結磁石体とが効率的に移動と接触を行い得るように、突起物を設置することができる。筒 3 の長軸方向に垂直な断面形状も、円に限定されず、楕円または多角形、あるいはその他の形状であってもよい。図 1 に示す状態の筒 3 は、ジョイントによってポンプなどの排気装置 6 に連結されている。排気装置 6 の働きにより、筒 3 の内部は、大気から遮蔽された状態（密閉状態）で減圧または加圧され得る。筒 3 の内部には、不図示のガスボンベから Ar などの不活性ガスが導入され得る。

20

【 0 0 4 6 】

筒 3 は、その外周部に配置されたヒータ 4 によって加熱される。筒 3 の加熱により、その内部に収納された R - T - B 系焼結磁石体 1 および R H 拡散源 2 も加熱される。筒 3 は、中心軸の回りに回転可能に支持されており、ヒータ 4 による加熱中も可変モータ 7 によって回動することができる。筒 3 の回転速度は、R - T - B 系焼結磁石体 1 と R H 拡散源 2 とが溶着しないように、例えば筒 3 の内壁面の周速度を毎秒 0 . 0 1 m 以上に設定され得る。回転により筒内の R - T - B 系焼結磁石体同士が激しく接触して欠けないよう、毎秒 0 . 5 m 以下に設定するのが好ましい。

30

【 0 0 4 7 】

図 1 では筒 3 は回転しているが、本発明では R - T - B 系焼結磁石体 1 と R H 拡散源 2 とが R H 拡散工程中で溶着しないように筒 3 内で R - T - B 系焼結磁石体と前記 R H 拡散源とが相対的に移動可能かつ接触可能であるなら、筒 3 は回転を加えるのではなく揺動または振動を加えてもいいし、回転、揺動および振動のうち複数の動作を併せて行なってもよい。

40

【 0 0 4 8 】

また、R - T - B 系焼結磁石体 1 および R H 拡散源 2 をあらかじめ装入した別の容器そのままを筒 3 の内部に置いてよい。別の容器は一つだけでなく、複数個内部においてもよい。

【 0 0 4 9 】

次に、図 1 の処理装置を用いて行う拡散処理を説明する。

【 0 0 5 0 】

まず、ジョイントおよび蓋 5 を筒 3 から取り外し、筒 3 の内部を開放する。複数の R -

50

T - B系焼結磁石体 1 および R H 拡散源 (R H バルク体) 2 を筒 3 の内部に挿入した後、再び、ジョイントおよび蓋 5 を筒 3 に取り付け。排気装置 6 により、筒 3 の内部を真空引きする。筒 3 の内部圧力が十分に低下した後、ジョイントを外す。その後、モータ 7 によって筒 3 を回転させながら、ヒータ 4 による加熱を実行する。

【 0 0 5 1 】

熱処理時における筒 3 の内部は不活性雰囲気中であることが好ましい。本明細書における「不活性雰囲気」とは、真空、または不活性ガスを含むものとする。また、「不活性ガス」は、例えばアルゴン (A r) などの希ガスであるが、R - T - B系焼結磁石体 1 および R H 拡散源 2 との間で化学的に反応しないガスであれば、「不活性ガス」に含まれ得る。不活性ガスの圧力は、大気圧よりも低い値を示すように減圧されることが好ましい。筒 3 の内部における雰囲気ガス圧力が大気圧に近いと、例えば特許文献 1 に示された技術では R H 拡散源 2 から重希土類元素 R H が R - T - B系焼結磁石体 1 の表面に供給されにくくなる。しかし、本発明においては、R H 拡散源と焼結磁石体とが近接または接触しているため、重希土類元素 R H の拡散量が大きくできるので、筒 3 の雰囲気ガス圧力は 1 k P a 以下であれば充分である。また、真空度と R H 拡散量との相関は比較的小さく、真空度を更に高めても、重希土類元素 R H の拡散量 (保磁力の向上度) は大きくは影響されない。拡散量は、雰囲気圧力よりも R - T - B系焼結磁石体の温度に敏感である。

10

【 0 0 5 2 】

本発明の実施形態では、重希土類元素 R H を含む R H 拡散源 2 と R - T - B系焼結磁石体 1 とをいっしょに回転させつつ、加熱することにより、R H 拡散源から重希土類元素 R H を R - T - B系焼結磁石体の表面に供給しつつ、内部に拡散させる。

20

【 0 0 5 3 】

本発明の好ましい実施形態では、R H 拡散源および R - T - B系焼結磁石体の温度を 5 0 0 以上 8 5 0 以下の範囲内に保持する。温度範囲は、処理室内で R - T - B系焼結磁石体と前記 R H 拡散源とが相対的に移動し接触しながら、重希土類元素 R H が R - T - B系焼結磁石体内部組織の粒界相を伝って内部へ拡散する好ましい温度領域であり、R - T - B系焼結磁石体内部への拡散が効率的に行われることになる。保持時間は、R H 拡散処理工程をする際の焼結磁石体と R H 拡散源の投入量の比率、R H 拡散処理をする焼結磁石体の形状、R H 拡散源の形状、および、R H 拡散処理によって焼結磁石体に拡散されるべき重希土類元素 R H の量 (拡散量) などを考慮して決められる。R H 拡散処理工程の時間は、1 0 分から 7 2 時間である。好ましくは 1 時間から 1 2 時間である。

30

【 0 0 5 4 】

好ましい実施形態では、R H 拡散源および R - T - B系焼結磁石体の温度を 7 0 0 以上 8 5 0 以下の範囲内に保持する。

【 0 0 5 5 】

処理温度が 8 5 0 を超えると、R H 拡散源と焼結磁石体とが溶着してしまう問題が生じ易いため好ましくない。また、処理温度が 8 5 0 を超えると、重希土類元素 R H の供給量が過大となり、焼結磁石体表面に重希土類元素 R H を主体とする被膜が容易に生成してしまう。重希土類元素 R H の被膜が生成すると、磁石体内部への拡散処理により、表層付近の主相結晶では主相内部にまで重希土類元素 R H が拡散してしまい、磁石の残留磁束密度 B_r が低下するため好ましくない。

40

【 0 0 5 6 】

一方、処理温度が 7 0 0 未満では、残留磁束密度 B_r の低下がなく、保磁力 H_c を向上する効果はあるが、処理に長時間を要する場合があるため生産性から好ましくない。

【 0 0 5 7 】

R H 拡散工程時における雰囲気ガスの圧力 (処理室内の雰囲気圧力) は、大気圧以下で実施できる。1 0 0 k P a 以下で行なうのが好ましく。例えば $1 0^{-3} \sim 1 0^3$ P a の範囲内に設定され得る。

【 0 0 5 8 】

R H 拡散工程後に、拡散された重希土類元素 R H をより均質化する目的で R - T - B系

50

焼結磁石体 1 に対する熱処理を追加的に行っても良い。重希土類元素 R H が R H 拡散源 2 から R - T - B 系焼結磁石体 1 に供給されない状態で、熱処理は 7 0 0 以上 1 0 0 0 以下の範囲で行なうのがよい。さらに好ましくは、8 5 0 から 9 5 0 の温度で実行される。この追加熱処理では、R - T - B 系焼結磁石体 1 の表面に対して重希土類元素 R H の更なる供給は生じないが、R - T - B 系焼結磁石体 1 において重希土類元素 R H の拡散が生じるため、R - T - B 系焼結磁石体 1 の表面側から奥深くに重希土類元素 R H を拡散し、磁石全体として保磁力を高めることが可能になる。追加熱処理の時間は、例えば 1 0 分から 7 2 時間である。好ましくは 1 時間から 1 2 時間である。ここで、追加熱処理を行なう熱処理炉の雰囲気圧力は、大気圧以下である。好ましいのは 1 0 0 k P a 以下である。

10

【 0 0 5 9 】

[時効処理]

また、必要に応じて時効処理 (4 0 0 から 7 0 0) を行うが、追加熱処理を行う場合は、時効処理はその後に行うことが好ましい。追加熱処理と時効処理とは、同じ処理室内で行ってもよい。時効処理の時間は例えば 1 0 分から 7 2 時間である。好ましくは 1 時間から 1 2 時間である。ここで、時効処理を行なう熱処理炉の雰囲気圧力は、大気圧以下である。好ましいのは 1 0 0 k P a 以下である。

【 0 0 6 0 】

(実験例 1)

まず、組成比 $Nd = 29.5$ 、 $Dy = 0.5$ 、 $B = 1.0$ 、 $Co = 0.9$ 、 $Al = 0.1$ 、 $Cu = 0.1$ 、残部：Fe (質量 %) の焼結磁石体を作製した。これを機械加工することにより、 $7.4\text{ mm} \times 7.4\text{ mm} \times 7.4\text{ mm}$ の立方体の焼結磁石体を得た。作製した焼結磁石体の磁気特性を B - H トレーサによって測定したところ、時効処理 (5 0 0) 後の特性で保磁力 H_{cJ} は 954 k A / m 、残留磁束密度 B_r は 1.43 T であった。

20

【 0 0 6 1 】

次に、以下の表 1 に示す各条件のもと、図 1 の装置を用いて R H 拡散処理を実行した。拡散処理後における磁石体の各面を 0.2 mm ずつ研削し、 $7.0\text{ mm} \times 7.0\text{ mm} \times 7.0\text{ mm}$ の立方体に加工した後、その磁石特性を評価した。

【 0 0 6 2 】

【表 1】

サ ン プ ル	RH拡散源		回転速度 (rpm) (周速度(m/s))	RH 拡散 温度 (°C)	雰囲気 圧力 (Pa)	溶 着	追加 熱処理 (°C)	ΔD_y	H_w (kA/m)	B_r (T)	ΔH_w (kA/m)	ΔB_r (T)
	形状	サイズ (単位mm)										
1	板状	2×10×10	25(0.013)	900	0.5	発生	—	—	—	—	—	—
2	板状	2×10×10	25(0.013)	850	0.5	無	なし	0.01	1094	1.43	140	0
3	カット ワイヤ	φ2×5	5(0.026)	750	0.5	無	なし	0.01	1109	1.43	155	0
4	カット ワイヤ	φ2×5	5(0.026)	800	0.5	無	なし	0.01	1137	1.43	183	0
5	カット ワイヤ	φ2×5	5(0.026)	810	0.5	無	なし	0.06	1166	1.43	212	0
6	カット ワイヤ	φ2×5	5(0.026)	820	0.5	無	なし	0.07	1176	1.43	222	0
7	カット ワイヤ	φ2×5	5(0.026)	830	0.5	無	なし	0.07	1203	1.43	249	0
8	カット ワイヤ	φ2×5	8(0.042)	750	0.5	無	900	0.01	1097	1.43	143	0
9	カット ワイヤ	φ2×5	8(0.042)	800	0.5	無	900	0.04	1154	1.43	200	0
10	カット ワイヤ	φ2×5	8(0.042)	810	0.5	無	900	0.10	1230	1.43	276	0
11	カット ワイヤ	φ2×5	8(0.042)	820	0.5	無	900	0.14	1275	1.43	321	0
12	カット ワイヤ	φ2×5	8(0.042)	830	0.5	無	900	0.32	1438	1.43	484	0
13	カット ワイヤ	φ2×5	8(0.042)	880	0.5	発生	—	—	—	—	—	—
14	小片	2×3×0.5	25(0.013)	750	0.5	無	なし	0.01	1102	1.43	148	0
15	小片	2×3×0.5	25(0.013)	750	0.5	無	900	0.50	1490	1.42	536	-0.01
16	小片	2×3×0.5	25(0.013)	700	0.5	無	なし	0	1062	1.43	108	0
17	小片	2×3×0.5	25(0.013)	400	0.5	無	なし	0	950	1.43	0	0

【0063】

拡散処理時における処理室の温度は、図2に示すように変化した。図2は、加熱開始後における処理室温度の変化（ヒートパターン）を示すグラフである。図2の例では、ヒータによる昇温を行いながら、真空引きを実行する。昇温レートは、約10 /分である。処理室内の圧力が所望のレベルに達するまで、約600 に温度を保持する。その後、処理室の回転を開始する。拡散処理温度（700 以上850 以下：例えば800 ）に達するまで昇温を行う。昇温レートは約3 /分である。拡散処理温度に達した後、所定の時間（本実験例では2時間）だけ、その温度に保持する。その後、ヒータによる加熱を停止し、室温程度まで降温させる。本発明の拡散処理で実行可能なヒートパターンは、図2に示す例に限定されず、他の多様なパターンを採用することができる。また、真空引きは拡散処理が完了し、焼結磁石体が十分に冷却されるまで行ってもよい。

【0064】

表1において、「RH拡散源」の欄には、拡散処理工程で使用したRH拡散源の形状お

よびサイズが示されている。「回転速度」の欄には、図 1 に示す筒 3 の回転速度が示されている。「周速度」の欄には、図 1 に示す処理室（直径 100 mm の筒 3）の内壁面の周速度が示されている。「拡散温度」の欄には、拡散処理中において 2 時間保持される処理室温度が示されている。「追加熱処理」の欄は、図 1 の装置から取り出した焼結磁石体に対して追加的な熱処理を行わなかったサンプルについて「なし」と記載され、追加的な熱処理を行ったサンプルについては追加熱処理の温度が記載されている。追加熱処理の時間は、2 時間である。「 ΔDy 」の欄には、拡散処理前後における焼結磁石体の Dy 含有量（単位：質量％）の差（増加量）が示され、「 H_{cJ} 」の欄には、拡散処理後（追加熱処理を行ったサンプルは追加熱処理後）における保磁力 H_{cJ} が示されている。 ΔDy の値は、特性評価後の磁石全体を ICP 法により分析して得た Dy 量（質量％）と、RH 拡散処理前の磁石を ICP 分析して得た Dy 量（質量％）との差を求めることによって得た。

10

【0065】

サンプル 1、2 では、RH 拡散源として厚さ 2 mm × 縦 10 mm × 横 10 mm の平板状の Dy 板を用いて拡散処理を行い、サンプル 3 ~ 13 では、RH 拡散源として直径 2 mm × 長さ 5 mm の Dy カットワイヤを用いて拡散処理を行った。サンプル 14 ~ 17 では、RH 拡散源として 2 mm × 3 mm × 0.5 mm の細かな Dy 小片を用いて拡散処理を行った。表 1 より本発明のサンプル 2 から 12、14 から 16 において、RH 拡散処理をする前と比べて残留磁束密度 B_r の低下がほとんどなく、保磁力 H_{cJ} が向上しているのがわかる。

【0066】

20

図 3 は、保磁力 H_{cJ} の増加量 ΔH_{cJ} と拡散温度との関係を示すグラフである。グラフの縦軸は保磁力 H_{cJ} の増加量、横軸は拡散温度である。図 3 のグラフからわかるように、700 から 850 の温度範囲で保磁力増加の効果を確認することができる。また、追加熱処理を行えば、追加熱処理を行わない場合に比べ、保磁力をより高めることが可能であることもわかる。この結果から、追加熱処理を行うことが好ましいことがわかる。

【0067】

図 4 は、保磁力 H_{cJ} の増加量と、拡散処理による Dy 含有量の増加分（質量％）との関係を示すグラフである。グラフの縦軸は保磁力 H_{cJ} の増加量、横軸は Dy 含有量増加分 ΔDy である。図 4 のグラフからわかるように、 Dy 含有量の増加により、保磁力 H_{cJ} が増加している。

30

【0068】

なお、比較のため、図 1 の処理室を回転させることなく、同様の拡散処理を実行したところ、焼結磁石体と RH 拡散源とが溶着するという問題が発生した。このため、拡散は不均一化し、また、焼結磁石体から RH 拡散源を剥がす際に焼結磁石体に割れや欠けが発生した。また、処理室を回転させた場合でも、拡散温度を 900 に設定した場合は、焼結磁石体と RH 拡散源とが溶着するという問題が発生した。

【0069】

以上のことから分かるように、700 ~ 850 という、 Dy を昇華させるには低い温度であっても、処理室内で RH 拡散源と焼結磁石体とを接触させ、かつ、その接触点が固定されないようにすると、溶着を避けながら、 Dy を効果的に焼結磁石体内に導入し、それによって磁石特性を向上させることが可能である。

40

【0070】

拡散処理時における処理室の内壁面の周速度は、例えば 0.01 m/s 以上に設定され得る。回転速度が遅くなると、焼結磁石体と RH 拡散源との接触部の移動が遅くなり、溶着が発生しやすくなる。このため、拡散温度が高いほど、回転速度を高めることが好ましい。好ましい回転速度は、拡散温度のみならず、RH 拡散源の形状やサイズによっても異なる。

【0071】

（実験例 2）

まず、組成比 $Nd = 30.0$ 、 $B = 1.0$ 、 $Co = 0.9$ 、 $Al = 0.1$ 、 $Cu = 0.$

50

1、残部：Fe（質量％）の焼結磁石体を作製した。これを機械加工することにより、7.4 mm×7.4 mm×7.4 mmの立方体の焼結磁石体を得た。作製した焼結磁石体の時効処理（500）後の磁気特性をB-Hトレーサによって測定したところ、保磁力 H_{cJ} は930 kA/m、残留磁束密度 B_r は1.45 Tであった。

【0072】

次に、以下の表2に示す各条件のもと、図1の装置を用いてRH拡散処理を実行した。拡散処理後における磁石体の各面を0.2 mmずつ研削し、7.0 mm×7.0 mm×7.0 mmの立方体に加工した後、その磁石特性を評価した。

【0073】

【表2】

サンプル	RH拡散源		回転速度(rpm) (周速度(m/s))	RH 拡散 温度 ℃	RH 拡散 時間 hr	雰囲気 圧力 Pa	溶着	追加 熱 処理	H_d kA/m	B_r T	ΔH_d kA/m	ΔB_r T
18	ブロック状	10×10×10～ 5×5×5	5(0.026)	800	2	0.5	無	なし	1128	1.45	198	0
19	ブロック状	10×10×10～ 5×5×5	5(0.026)	810	2	0.5	無	なし	1128	1.45	198	0
20	ブロック状	10×10×10～ 5×5×5	5(0.026)	820	2	0.5	無	なし	1187	1.45	257	0
21	ブロック状	10×10×10～ 5×5×5	5(0.026)	800	6	0.5	無	なし	1279	1.45	349	0
22	ブロック状	10×10×10～ 5×5×5	5(0.026)	820	6	0.5	無	なし	1402	1.43	472	0.02
23	ブロック状	10×10×10～ 5×5×5	5(0.026)	800	6	0.5	無	900	1641	1.45	711	0
24	ブロック状	10×10×10～ 5×5×5	5(0.026)	900	2	0.5	発生	—	—	—	—	—
25	ブロック状	10×10×10～ 5×5×5	5(0.026)	400	2	0.5	無	なし	928	1.45	-2	0

【0074】

拡散処理時における処理室の温度は、前述の実験例1と同様に図2に示すように変化した。また、表2中の欄の意味は表1と同様である。「RH拡散源」の欄には、拡散処理工程で使用したRH拡散源の形状およびサイズが示されている。「周速度」の欄には、図1の筒3の回転速度（rpm）と図1に示す処理室（直径100 mmの筒3）の内壁面の周速度（m/s）が示されている。「拡散温度」の欄には、拡散処理中において2時間保持される処理室温度が示されている。「追加熱処理」の欄は、図1の装置から取り出した焼結磁石体に対して追加的な熱処理を行わなかったサンプルについて「なし」と記載され、追加的な熱処理を行ったサンプルについては追加熱処理の温度が記載されている。追加熱処理の時間は、2時間である。「 H_{cJ} 」の欄には、拡散処理後（追加熱処理を行ったサンプルは追加熱処理後）における保磁力 H_{cJ} が示されている。

【0075】

10

20

30

40

50

サンプル 18 から 25 では、RH 拡散源として厚さ 10 mm × 縦 10 mm × 横 10 mm ~ 厚さ 5 mm × 縦 5 mm × 横 5 mm のブロック状の Tb を用いて拡散処理を行った。表 2 より本発明のサンプル 18 から 23 において、RH 拡散処理をする前と比べて残留磁束密度 B_r の低下がほとんどなく、保磁力 H_{cJ} が向上しているのがわかる。

【0076】

図 5 は、保磁力 H_{cJ} の増加量と拡散温度との関係を示すグラフである。グラフの縦軸は保磁力 H_{cJ} の増加量、横軸は拡散温度である。図 5 のグラフからわかるように、800 から 820 の温度範囲で保磁力増加の効果を確認することができる。また、追加熱処理を行えば、追加熱処理を行わない場合に比べ、保磁力をより高めることが可能であることもわかる。

10

【0077】

以上のことから分かるように、800 ~ 820 という、Tb を昇華させるには低い温度であっても、処理室内で RH 拡散源と焼結磁石体とを接触させ、かつ、その接触点が固定されないようにすると、溶着を避けながら、Tb を効果的に焼結磁石体内に導入し、それによって磁石特性を向上させることが可能である。

【0078】

(実験例 3)

以下の表 3 に示す各条件を除き、実験例 1 にて作製した焼結磁石体を実験例 1 と同じ条件で RH 拡散処理を実行する。拡散処理後における焼結磁石体の各面を 0.2 mm ずつ研削し、7.0 mm × 7.0 mm × 7.0 mm の立方体に加工した後、その磁石特性を B-H トレーサにて評価したところ、RH 拡散温度が 500、600 であるサンプル 26、27 においても RH 拡散処理をする前と比べて残留磁束密度 B_r の低下がほとんどなく、保磁力 H_{cJ} が向上しているのがわかる。

20

【0079】

【表 3】

サンプル	RH 拡散源		回転速度 (rpm) (周速度 (m/S))	RH 拡散 温度 (°C)	雰囲気 圧力 (Pa)	溶着	追加 熱処理 (°C)	ΔD_y	H_{cJ} (kA/m)	B_r (T)	ΔH_{cJ} (kA/m)	ΔB_r (T)
	形状	サイズ (単位 mm)										
26	小片	2×3×0.5	25 (0.013)	600	0.5	無	なし	0	1019	1.43	65	0
27	小片	2×3×0.5	25 (0.013)	500	0.5	無	なし	0	995	1.43	41	0

30

【0080】

(実験例 4)

まず、組成比 Nd = 30.0、Dy = 0.5、B = 1.0、Co = 0.9、Al = 0.1、Cu = 0.1、残部：Fe (質量%) の R-T-B 系焼結磁石体を作製した。これを機械加工することにより、7.4 mm × 7.4 mm × 7.4 mm の立方体の R-T-B 系焼結磁石体を得た。作製した R-T-B 系焼結磁石体の磁気特性を B-H トレーサによって測定したところ、時効処理 (400) 後の特性で保磁力 H_{cJ} は 1000 kA/m、残留磁束密度 B_r は 1.42 T であった。

40

【0081】

次に、図 1 の装置を用いて RH 拡散処理を実行する。筒の容積：128000 mm³、R-T-B 系焼結磁石の投入重量 (又は投入個数)：50 g (5 個)、RH 拡散源の投入重量：50 g である。RH 拡散源は直径 3 mm 以下のものを用いる。拡散後の時効処理はいずれも行っていない。

50

【 0 0 8 2 】

拡散処理時における処理室は、ヒータによる昇温を行いながら、真空引きを実行する。昇温レートは、約 1 0 / 分である。処理室内の圧力が所望のレベルに達するまで、約 6 0 0 に温度を保持する。その後、処理室の回転を開始する。拡散処理温度に達するまで昇温を行う。昇温レートは約 1 0 / 分である。拡散処理温度に達した後、その温度に保持する。その後、ヒータによる加熱を停止し、室温度まで降温させる。その後、図 1 の装置から取り出した焼結磁石体を別の熱処理炉に投入し、拡散処理時と同じ雰囲気圧力で追加的な熱処理 (7 0 0 ~ 9 0 0 、 4 ~ 6 時間) を行ない、さらに拡散後の時効処理 (4 5 0 ~ 5 5 0 、 3 ~ 5 時間) を行なう。ここで、追加的な熱処理と時効処理の処理温度と時間は、R - T - B 系焼結磁石体と R H 拡散源の投入量、R H 拡散源の組成、R H 拡散温度等を考慮し設定されている。

10

【 0 0 8 3 】

D y 量、T b 量、F e 量を変えた R H 拡散源を用いて R H 拡散処理を行ったところ、表 4 のサンプル 2 8 から 4 3 の結果となる。

【 0 0 8 4 】

【表 4】

サンプル	RH拡散源				周速度 (m/s)	RH 拡散 温度 (℃)	RH 拡散 時間 (hr)	雰囲気 圧力 (Pa)	ΔH _w (kJ/m)	ΔB _r (T)
	Dy	Tb	Fe	サイズ (単位mm)						
	(単位 質量%)									
28	70	0	30	3 以下	0.02	850	12	0.5	344	-0.005
29	60	0	40	3 以下	0.02	850	12	0.5	344	0
30	60	0	40	3 以下	0.02	820	12	0.5	275	0
31	60	0	40	3 以下	0.02	800	12	0.5	220	0
32	60	0	40	3 以下	0.02	850	6	0.5	200	0
33	60	0	40	3 以下	0.02	850	12	100	336	0
34	60	0	40	3 以下	0.02	850	12	100000	312	0
35	50	0	50	3 以下	0.02	850	12	0.5	328	0
36	55	0	45	3 以下	0.02	820	12	0.5	240	0
37	55	0	45	3 以下	0.02	750	12	0.5	40	0
38	40	0	60	3 以下	0.02	850	12	0.5	328	0
39	25	0	75	3 以下	0.02	850	12	0.5	160	0
40	20	0	80	3 以下	0.02	850	12	0.5	144	0
41	0	60	40	3 以下	0.02	850	12	0.5	585	0
42	30	30	40	3 以下	0.02	850	12	0.5	469	0
43	80	0	20	5 以下	0.02	820	6	0.5	300	-0.01

20

30

40

【 0 0 8 5 】

表 4 から、サンプル 4 3 を除いて、実験例 1、実験例 2 と比べ R H 拡散処理時間はかかっているが、重希土類元素 R H と F e とからなる R H 拡散源でも残留磁束密度の低下を抑え、かつ保磁力が向上することがわかる。サンプル 3 3、3 4 から、雰囲気圧力が高くとも本発明の効果が得られることがわかる。また、サンプル 2 8 から 4 3 において、焼結磁石体と R H 拡散源との溶着の発生はない。

【 0 0 8 6 】

50

(実験例 5)

次に、直径 5 mm のジルコニア球重量 (50 g) を攪拌補助部材として使用して R H 拡散処理を行った以外は、実験例 4 と同じ条件で R H 拡散処理を行う。その結果を、表 5 に示す。表 5 に示されるように、サンプル 44、45、47、49、50、52 から 56 では、サンプル 28、29、34、35、39 から 43 に比べて、R H 拡散処理時間が半分になったにも関わらず、ほぼ同等の特性が得られることがわかる。サンプル 46、47 から、雰囲気圧力が高くとも本発明の効果が得られることがわかる。表 5 のサンプル 44 と表 4 のサンプル 28 から、直径 5 mm のジルコニア球を投入した方が、短時間で H_{cJ} が向上することがわかる。これは、ジルコニア球からなる攪拌補助部材が、R H 拡散源と焼結磁石体との接触を促進し、かつ攪拌補助部材に付着した重希土類元素 R H を焼結磁石体へ間接に供給する効果によるものと考えられる。欠けの発生もサンプル 28、29、34、35、39 から 43 と比べ抑制されている。

【0087】

【表 5】

サンプル	RH 拡散源				周速度 (m/s)	RH 拡散 温度 (°C)	RH 拡散 時間 (hr)	雰囲気 圧力 (Pa)	ΔH_{cJ} (kA/m)	ΔB_r (T)	攪拌 補助 部材
	Dy	Tb	Fe	サイズ							
	(単位 質量%)			(単位 mm)							
44	70	0	30	3 以下	0.02	850	6	0.5	344	-0.005	有
45	60	0	40	3 以下	0.02	850	6	0.5	344	0	有
46	60	0	40	3 以下	0.02	850	6	2	336	0	有
47	60	0	40	3 以下	0.02	850	6	100000	312	0	有
48	55	0	45	3 以下	0.02	820	4	0.5	190	0	有
49	50	0	50	3 以下	0.02	850	6	0.5	328	0	有
50	40	0	60	3 以下	0.02	850	6	0.5	320	0	有
51	40	0	60	3 以下	0.02	850	3	0.5	200	0	有
52	25	0	75	3 以下	0.02	850	6	0.5	163	0	有
53	20	0	80	3 以下	0.02	850	6	0.5	142	0	有
54	0	60	40	3 以下	0.02	850	12	0.5	585	0	有
55	30	30	40	3 以下	0.02	850	6	0.5	465	0	有
56	80	0	20	5 以下	0.02	820	3	0.5	290	-0.01	有

【0088】

(実験例 6)

まず、実施例 4 と同じく組成比 $Nd = 30.0$ 、 $Dy = 0.5$ 、 $B = 1.0$ 、 $Co = 0.9$ 、 $Al = 0.1$ 、 $Cu = 0.1$ 、残部：Fe (質量%) の R - T - B 系焼結磁石体を作製した。これを機械加工することにより、7.4 mm × 7.4 mm × 7.4 mm の立方体の R - T - B 系焼結磁石体を得た。作製した R - T - B 系焼結磁石体の磁気特性を B - H トレーサによって測定したところ、時効処理 (400) 後の特性で保磁力 H_{cJ} は 1000 kA/m、残留磁束密度 B_r は 1.42 T であった。

【0089】

次に、図 1 の装置を用いて R H 拡散処理を実行する。筒の容積：128000 mm³、R - T - B 系焼結磁石の投入重量 (又は投入個数)：50 g (5 個)、R H 拡散源の投入重量：50 g である。R H 拡散源は直径 3 mm 以下の球形のものを用いる。拡散補助部材は、直径 5 mm のジルコニア球重量 (50 g) を攪拌補助部材として使用して R H 拡散処理を行う。

【 0 0 9 0 】

拡散処理時における処理室は、ヒータによる昇温を行いながら、真空引きを実行する。昇温レートは、約 1 0 / 分である。処理室内の圧力が所望のレベルに達するまで、約 6 0 0 に温度を保持する。その後、処理室の回転を開始する。拡散処理温度に達するまで昇温を行う。昇温レートは約 1 0 / 分である。拡散処理温度に達した後、その温度に保持する。その後、ヒータによる加熱を停止し、室温程度まで降温させる。その後、図 1 の装置から取り出した焼結磁石体を別の熱処理炉に投入し、拡散処理時と同じ雰囲気圧力で追加的な熱処理 (7 0 0 ~ 9 0 0 、 4 ~ 6 時間) を拡散処理時間と同じ時間行ない、さらに拡散後の時効処理 (4 5 0 ~ 5 5 0 、 3 ~ 5 時間) を行なう。ここで、追加的な熱処理と時効処理の処理温度と時間は、R - T - B 系焼結磁石体と R H 拡散源の投入量、R H 拡散源の組成、R H 拡散温度等を考慮し設定されている。

10

【 0 0 9 1 】

D y または T b に他の金属を加えた R H 拡散源を用いて R H 拡散処理を行ったところ、表 6 のサンプル 5 7 から 7 9 の結果となる。

【 0 0 9 2 】

【表 6】

サ ン プ ル	RH拡散源		周速度 (m/s)	RH 拡散温度 (°C)	RH 拡散時間 (hr)	真空 圧力 (Pa)	ΔH_w (kJ/m)	ΔB_r (T)
	組成 (単位 質量%)	サイズ (単位mm)						
57	80Dy-20Co	3 以下	0.02	700	6	0.5	258	0
58	70Dy-30Cu	3 以下	0.02	700	6	0.5	185	0
59	60Tb-40Co	3 以下	0.02	700	6	0.5	400	0
60	40Dy-60Co	3 以下	0.02	800	6	0.5	275	0
61	80Dy-20Nd	3 以下	0.02	800	6	0.5	200	0
62	80Dy-20Pr	3 以下	0.02	800	6	0.5	210	0
63	90Dy-10Zn	3 以下	0.02	800	6	0.5	320	0
64	95Tb-5Cu	3 以下	0.02	800	6	100	600	-0.005
65	97Dy-3Zn	3 以下	0.02	800	6	100000	240	0
66	40Dy-40Ce-20Co	3 以下	0.02	700	6	0.5	150	0
67	70Dy-10Nd-20Co	3 以下	0.02	700	6	0.5	200	0
68	65Dy-10Nd-10Pr-15Co	3 以下	0.02	700	6	0.5	180	0
69	50Dy-20La-20Ce-10Co	3 以下	0.02	700	6	0.5	160	0
70	53Dy-8Nd-7Pr-12Fe-20Co	3 以下	0.02	700	6	0.5	200	0
71	30Tb-10Ce-5Nd-5Pr-50Co	3 以下	0.02	850	6	0.5	230	0
72	50Dy-5Gd-5Ce-40Fe	3 以下	0.02	850	6	0.5	170	0
73	45Dy-10Nd-8Pr-35Fe-2Zn	3 以下	0.02	800	6	0.5	200	0
74	40Dy-8Nd-10Pr-10Ce-10La -20Fe-2Cu	5 以下	0.02	820	6	0.5	180	0
75	60Dy-37Fe-1Ga-1Cu-1Ni	3 以下	0.02	830	6	0.5	250	0
76	30Tb-15Dy-10Ce 5La-30Fe-2V-3Cu-2Zr-2Mn-1Al	3 以下	0.02	850	6	0.5	160	0
77	10Tb-25Dy-5Gd-10Ce-35Fe-2Nb -2W-3Cr-5Mn-1Si-2Cu	3 以下	0.02	850	6	0.5	180	0
78	40Dy-10La-15Ce-10Co-8Fe-5Cu -3Ta-2Mo-3Sn-3Ag-1In	5 以下	0.02	820	6	0.5	170	0
79	50Dy-23Fe-5Zn-7Ti-2Bi-3Hf -3Au-4Mo-3Al	5 以下	0.02	820	6	0.5	190	0

【 0 0 9 3 】

表 6 から、Dy または Tb に他の金属を加えた RH 拡散源にサンプル 57 から 79 を用いた場合でも残留磁束密度の低下を抑え、かつ保磁力が向上することがわかる。

【産業上の利用可能性】

【 0 0 9 4 】

本発明によれば、磁石全体として高残留磁束密度、高保磁力の R - T - B 系焼結磁石を作製することができる。高温下に晒されるハイブリッド車搭載用モータ等の各種モータや家電製品等に好適である。

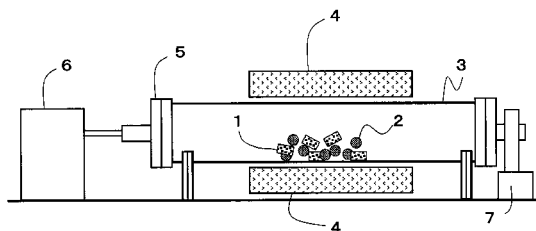
【符号の説明】

【 0 0 9 5 】

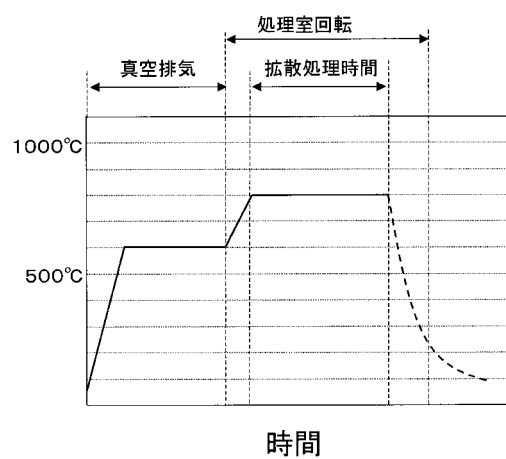
- 1 R - T - B 系焼結磁石体
- 2 RH 拡散源
- 3 ステンレス製の筒（処理室）

- 4 ヒータ
5 蓋
6 排気装置

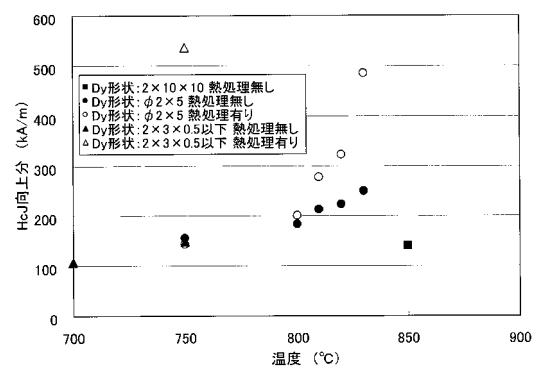
【図 1】



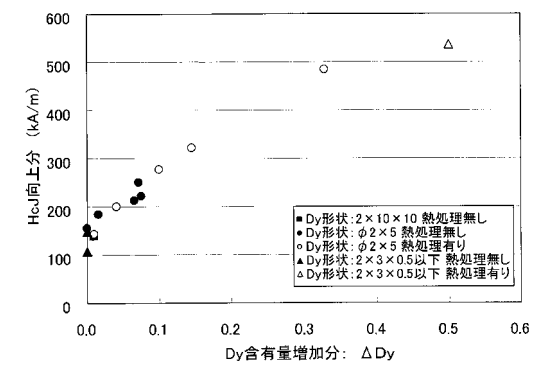
【図 2】



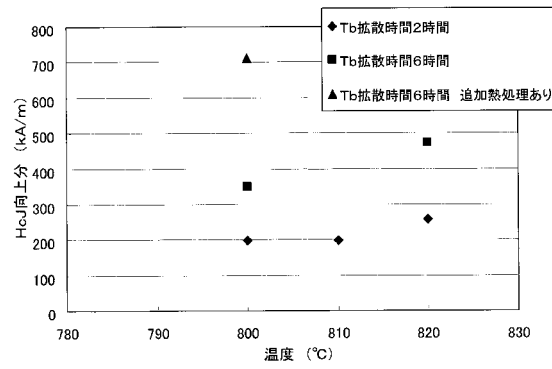
【図 3】



【図 4】



【図5】



フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I
H 0 1 F 1/08 (2006.01) C 2 2 C 38/00 3 0 3 D
H 0 1 F 1/08 B

(56)参考文献 特開 2 0 0 9 - 4 3 7 7 6 (J P , A)
特開 2 0 0 8 - 6 9 4 1 5 (J P , A)

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)
H 0 1 F 4 1 / 0 2
B 2 2 F 3 / 2 4
C 2 2 C 3 3 / 0 2
C 2 2 C 3 8 / 0 0
H 0 1 F 1 / 0 5 7
H 0 1 F 1 / 0 8