

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局

(43) 国際公開日  
2025年3月20日(20.03.2025)



(10) 国際公開番号

WO 2025/057372 A1

(51) 国際特許分類:  
H01F 1/057 (2006.01) H01F 41/02 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2023/033579

(22) 国際出願日: 2023年9月14日(14.09.2023)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(71) 出願人:三菱電機株式会社(MITSUBISHI ELECTRIC CORPORATION) [JP/JP]; 〒1008310 東京都千代田区丸の内二丁目7番3号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 岩 ▲ 崎 ▼ 亮 人 (IWASAKI, Akito); 〒1008310 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 Tokyo (JP). 中村 泰貴(NAKAMURA, Yasutaka); 〒1008310 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 Tokyo (JP).

(74) 代理人:高村 順(TAKAMURA, Jun); 〒1000013 東京都千代田区霞が関3丁目8番1号 虎

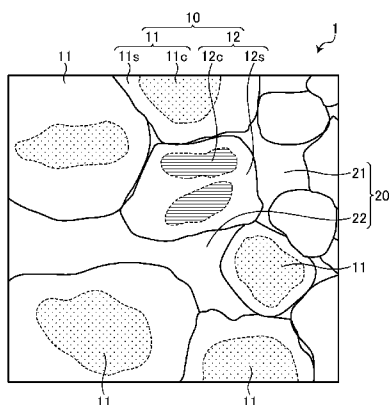
ノ門ダイビルイースト 弁理士法人酒井国際特許事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS,

(54) Title: RARE EARTH SINTERED MAGNET, METHOD FOR MANUFACTURING RARE EARTH SINTERED MAGNET, ROTOR, AND ROTARY MACHINE

(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) Abstract: This rare earth sintered magnet (1) comprises: main phases (10) that satisfy general formula (Nd, Pr, R)-Fe-B-M and contain crystal grains based on the Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B crystal structure, where R is one or more rare earth elements selected from elements other than Nd and Pr, and M is one or more elements selected from the group consisting of Ga, Al, Cu, and Co; and a sub-phase (20) that is formed between the main phases. The main phases have a core portion and a shell portion that covers the core portion. The main phases have a first main phase (11) in which CNd > CPr and a second main phase (12) in which CNd < CPr, where CNd is the concentration of Nd in the core portion and CPr is the concentration of Pr in the core portion. The first and second main phases are mixed. The sub-phase has a crystalline first sub-phase (21) and a second sub-phase (22) mainly composed of an oxide phase that contains an element M as a trace component and is represented by (Nd, Pr, R)-O. The concentration of the element M is higher in the second sub-phase than in the first sub-phase.



WO 2025/057372 A1

IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT,  
RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF,  
CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE,  
SN, TD, TG).

添付公開書類：

— 国際調査報告（条約第21条(3)）

(57) 要約：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し、MをGa, Al, Cu, Coの群から選択される1種類以上の元素としたとき、一般式(Nd, Pr, R) - Fe - B - M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）と、主相と主相との間に形成される副相（20）と、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（11）と、CNd < CPrである第2主相（12）と、を有する。第1主相と第2主相とは混在している。副相は、微量成分として元素Mを含む(Nd, Pr, R) - Oで表される酸化物相を主成分とする結晶性の第1副相（21）および第2副相（22）を有する。元素Mの濃度は、第1副相に比して第2副相の方が高い。

## 明 細 書

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

### 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、 $100^\circ C$ 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。

[0003] 近年、 $Nd-Fe-B$ 系焼結磁石の生産量は拡大しており、 $Nd$ および重希土類元素である $Dy$ 、 $Tb$ （テルビウム）等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抑制する技術が研究されている。

[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種類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種類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、複数の低重希土類元素結晶相と複数の非磁性 $R$ リッチ相とを内部に含む $R-T-B$ 系焼結磁石が開示

されている。ここで、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。非磁性Rリッチ相は、Rの含有量が70 at. %以上100 at. %以下である相である。また、主相粒子の一部は、コア部と、コア部の周囲を囲み、全重希土類元素濃度がコア部よりも低いシェル部と、を有する1種類のコアシェル構造を有する。特許文献1に記載の技術によれば、保磁力を向上させ、かつ、低コストであるR-T-B系焼結磁石が得られる。

[0005] 特許文献2には、 $(R_{1-x}R_2)_aTM_bB_cM_d$ 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、焼結体に熱間塑性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、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（イットリウム）を含む1種類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の内の1種類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、 $0.01 \leq x \leq 1$ ,  $12 \leq a \leq 20$ ,  $b = 100 - a - c - d$ ,  $5 \leq c \leq 20$ ,  $0 \leq d \leq 3$ 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。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。特許文献2に記載の技術によれば、重希土類元素を低減させるとともに、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。

## 先行技術文献

### 特許文献

[0006] 特許文献1：特開2018-174313号公報

特許文献2：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系焼結磁石では、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るが、産業用モータ等に要求される残留磁束密度は得られず、熱負荷によって磁気特性が低下してしまう可能性がある。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るが、製造方法に熱間加工が含まれるため、主相の粒径が小さくなり、この結果、製造される希土類磁石の残留磁束密度および着磁性能が悪化してしまうという問題があった。

[0008] 本開示は、上記に鑑みてなされたものであって、重希土類元素を使用せずに、従来に比して残留磁束密度および着磁性能を低下させることなく保磁力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。

#### 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(プラセオジウム)以外から選択される1種類以上の希土類元素とし、MをGa, Al, Cu, Coの群から選択される1種類以上の元素としたとき、一般式(Nd, Pr, R)-Fe-B-M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と、主相と主相との間に形成される副相と、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主相とは混在している。副相

は、微量成分として元素Mを含む(Nd, Pr, R) - Oで表される酸化物相を主成分とする結晶性の第1副相および第2副相を有する。元素Mの濃度は、第1副相に比して第2副相の方が高い。

### 発明の効果

[0010] 本開示に係る希土類焼結磁石は、重希土類元素を使用せずに、従来に比して残留磁束密度および着磁性能を低下させることなく保磁力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

[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)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

[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Co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O(酸素)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La(ランタン)の元素マッピング

[図14]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(サマリウム)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。

[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-M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と、主相10と主相10との間に存在する副相20と、を有する。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。Mは、Ga, Al, Cu, Coの群から選択される1種類以上の元素である。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。

[0014] 具体的には、実施の形態1による希土類焼結磁石1、つまり主相10と副相20とを含む希土類焼結磁石1は、RをNdおよびPr以外の希土類元素とし、MをGa, Al, Cu, Coの群から選択される1種類以上の元素とすると、一般式が(Nd<sub>a</sub>Pr<sub>b</sub>R<sub>c</sub>)Fe<sub>d</sub>B<sub>e</sub>M<sub>f</sub>で表現される。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。

[0015]  $5 \leq a + b \leq 20$

$0 < c < (a + b)$

$70 \leq d \leq 90$

$$0.5 \leq e \leq 1.0$$

$$0 \leq f \leq 5$$

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

[0016] 主相10は、Ndのサイトの一部をPrと、Nd, Pr以外から選択される1種類以上の希土類元素Rと、で置換した正方晶 $R_2Fe_{14}B$ 結晶構造を有する。すなわち、主相10は、 $(Nd, Pr, R)_2Fe_{14}B$ の組成式を有する。元素Mは、主相10に入り込んでいてもよい。元素Mが遷移元素であるCo, Cuである場合には、元素Mは、 $Nd_2Fe_{14}B$ 結晶構造のFeサイトの一部を置換していると考えられる。

[0017] 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。

[0018] 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の濃度がPrの濃度より高く、逆に第2主相12ではPrの濃度がNdの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を削減し、重希土類元素を添加せず、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、元素Mを添加することで保磁力が大きく向上するため、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。

[0019] 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の濃度については、EPMAの検出強度がNdの検出強度の平均より高く、Prの濃度については、EPMAの検出強度がPrの検出強度の下限値付近を示している、あるいはEPMAの検出強度がPrの検出強度の平均よりも低いということである。第2主相12は第1主相11の場合と逆になっているといえる。

[0020] また、実施の形態1による希土類焼結磁石1は、第1主相11のコア部11cのNdの濃度を $C1Nd$ とし、第2主相12のコア部12cのNdの濃度を $C2Nd$ とし、第1主相11のコア部11cのPrの濃度を $C1Pr$ とし、第2主相12のコア部12cのPrの濃度を $C2Pr$ としたとき、 $C1Nd > C2Nd$ 、 $C1Pr < C2Pr$ の関係式を満たす。つまり、Ndの濃度については、第2主相12のコア部12cに比して第1主相11のコア部11cの方が高くなっており、逆にPrの濃度については、第1主相11のコア部11cに比して第2主相12のコア部12cの方が高くなっている。ここでの濃度差も上記のEPMAを用いたマッピング分析によるNdおよびPrの検出強度に差が出ていることを意味する。具体的に、Ndの濃度の場合には、第1主相11のコア部11cのNdのEPMAの検出強度が、Ndの検出強度の平均よりも高く、第2主相12のコア部12cのNdのEPMAの検出強度が、Nd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。Prの濃度の場合には、第2主相12のコア部12cのPrのEPMAの検出強度が、Prの検出強度の平均よりも高く、第1主相11のコア部11cのPrのEPMAの検出強度が、Pr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、Ndの濃度が低い第2主相12のコア部12cにはPrが多く存在し、反対に、Prの濃度が低い第1主相11のコア部11cにはNd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。

[0021] また、実施の形態1による希土類焼結磁石1において、 $CNd < CPr$ である第2主相12よりも $CNd > CPr$ である第1主相11の方を多く存在させる。言い換えれば、 $Nd_2Fe_{14}B$ の組成式を有する第1主相11の数が、 $Pr_2Fe_{14}B$ の組成式を有する第2主相12の数よりも多いことを意味している。これは、 $Nd_2Fe_{14}B$ の組成式を有する第1主相11を増やした方が、 $Pr_2Fe_{14}B$ の組成式を有する第2主相12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。

[0022] 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11s, 12sに着目し、シェル部11s, 12sのNdの濃度を $SNd$ とし、シェル部11s, 12sのPrの濃度を $SPr$ としたとき、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。具体的には、第1主相11のシェル部11sはNdの濃度が小さい代わりに、Prの濃度がコア部11cよりも高く、第2主相12のシェル部12sはPrの濃度が小さい代わりに、Ndの濃度がコア部12cよりも高い。第1主相11のようにPrの濃度が高いシェル部11sを有する主相10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12のようにNdの濃度が高いシェル部12sを有する主相10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。

[0023] さらに、主相10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。

[0024] 副相20は、微量成分として元素Mを含む(Nd, Pr, R)-Oで表される酸化物相を主成分とする結晶性の第1副相21と、微量成分として元素Mを含む(Nd, Pr, R)-Oで表される酸化物相を主成分とする結晶性の第2副相22と、を有する。Oは酸素である。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の総称である。ここで、(Nd, Pr, R)は、Nd, Prの一部が、Nd, Pr以外の希土類元素Rによって置換されていることを意味している。第1副相21のRと第2副相22のRとは、同じ希土類元素であってもよいし、一部が異なる希土類元素であってもよいし、異なる希土類元素であってもよい。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他に他の成分を微量含んでいてもよい。

[0025] 副相20、すなわち第1副相21および第2副相22は、上記したように微量成分として元素Mを含む。第1副相21および第2副相22に含まれる元素Mの濃度は、第1副相21に比して第2副相22の方が高い。つまり、第1副相21における元素Mの濃度を $C_{s1M}$ とし、第2副相22における元素Mの濃度を $C_{s2M}$ としたとき、 $C_{s1M} < C_{s2M}$ の関係式を満たす。

[0026] ここで、「元素Mの濃度は、第1副相21に比して第2副相22の方が高い」とは、EPMAを用いたマッピング分析により、第1副相21よりも第2副相22において元素Mの検出強度が平均して高いことを意味する。より詳細には、第2副相22のEPMAで検出される元素Mの強度が、EPMAで検出される元素Mの強度の平均よりも高く、第1副相21のEPMAで検出される元素Mの強度が、EPMAで検出される元素Mの強度の平均よりも低いことを意味する。

[0027] また、副相20において、元素Mは、第2副相22に高濃度に存在するこ

とから、主相10同士を磁氣的に分断する非磁性相を形成し、磁気特性の向上に貢献する。つまり、元素Mの濃度を第1副相21に比して第2副相22の方が高くなるようにすることにより、重希土類元素を添加せずに、高い磁気特性、特に保磁力が得られるとともに、温度上昇に伴う磁気特性の低下を抑制することができる。

[0028] 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し、MをGa, Al, Cu, Coの群から選択される1種類以上の元素とすると、一般式(Nd, Pr, R) - Fe - B - M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と、主相10と主相10との間に存在する副相20と、を備える。主相10は、コア部11c, 12cとコア部11c, 12cを被覆するシェル部11s, 12sとを有する。また、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。副相20は、微量成分として元素Mを含む(Nd, Pr, R) - Oで表される酸化物相を主成分とする結晶性の第1副相21および第2副相22を有し、第1副相21および第2副相22に含まれる元素Mの濃度は、第1副相21に比して第2副相22の方が高い。このような構成によって、重希土類元素を添加せずに、高い磁気特性、具体的には保磁力を有するとともに、温度上昇に伴う磁気特性の低下を抑制した希土類焼結磁石1を得ることができる。

[0029] また、実施の形態1による希土類焼結磁石1では、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の数の方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の使用を抑えるとともに重希土類元素を添加せずに、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。

## [0030] 実施の形態 2.

実施の形態 2 では、実施の形態 1 による希土類焼結磁石 1 において、希土類元素 R に La, Sm を選択する場合を示す。

[0031] 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。なお、実施の形態 1 と同一の構成要素には同一の符号を付して、その説明を省略する。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。副相 20 は、実施の形態 1 で説明したように第 1 副相 21 および第 2 副相 22 を含む。

[0032] 希土類元素 R に La, Sm を選択する場合には、Nd の使用を抑えるとともに重希土類元素を使用せずに、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 の希土類元素 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、 $C_{Nd} > C_{Pr}$  である第 1 主相 11 と、 $C_{Nd} < C_{Pr}$  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。

[0033] なお、La と Sm 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 Nd および Pr の量が減少し、磁気特性の低下を招いてしまう。このため、Nd, Pr, La および Sm 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。

[0034] 実施の形態2による希土類焼結磁石1で $R = La, Sm$ とすると、副相20は、微量成分として元素Mを含む $(Nd, Pr, La, Sm) - O$ で表される酸化物相を主成分とする結晶性の第1副相21と、微量成分として元素Mを含む $(Nd, Pr, La) - O$ で表される酸化物相を主成分とする結晶性の第2副相22と、を有する。このように、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の方が高いという特徴を有する。つまり、希土類焼結磁石1の副相20において、第1副相21は、第2副相22に比してSmの濃度が高いSm濃化部を形成している。これによって、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。

[0035] また、第1副相21の内部において、Smの濃度が高い部分である高濃度部41と、Smの濃度が低い部分である低濃度部42と、が存在する場合もある。このような場合には、第1副相21のSmの濃度が周囲よりも低い部分である低濃度部42には、元素Mが入り込むこともある。この場合には、低濃度部42における元素Mの濃度は、高濃度部41における元素Mの濃度よりも高くなる。

[0036] 元素Mの濃度は、実施の形態1で説明したように、第1副相21に比して第2副相22の方が高い。このように、Smと元素Mとでは互いに異なる副相20に偏析している。Smは、第1副相21に高濃度に存在するため、Ndを相対的に主相10に拡散させ、主相10の結晶磁気異方性を向上させる。また、Smは、主相10の結晶粒内にも存在するため、強磁性体であるFeと同じ磁化方向に結合することで残留磁束密度の向上に貢献する。元素Mは、第2副相22に高濃度に存在することから、主相10同士を磁氣的に分断する非磁性相を形成し、磁気特性の向上に貢献する。Smと元素Mとが異なる副相20の各々に高濃度に存在することで、残留磁束密度と保磁力とを両立させて向上させることが可能となる。

[0037] ここで、「Sm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、EPMA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Smの検出強度が平均して高いことを意味する。より詳細には、第1副相21のEPMAで検出されるSmの強度が、EPMAで検出されるSmの強度の平均よりも高く、第2副相22のEPMAで検出されるSmの強度が、EPMAで検出されるSmの強度の平均よりも低いことを意味する。

[0038] 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、微量成分として元素Mを含む(Nd, Pr, La, Sm)-Oで表され、結晶性の第2副相22は、微量成分として元素Mを含む(Nd, Pr, La)-Oで表される。ここで、(Nd, Pr, La, Sm)は、Nd, Prの一部がLaおよびSm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他の成分を微量含んでいてもよい。一例では、微量成分として元素Mを含む(Nd, Pr, La)-Oで表される第2副相22は、極微量のSmを含んでいる。

[0039] 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、LaおよびSmの濃度差が存在し、LaおよびSm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。具体的には、副相20のLaおよびSmの濃度は、主相10のLaおよびSmの濃度以上である。ここでの主相10のLaの濃度は、第1主相11のLaの濃度と第2主相12のLa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Laの濃度の和は、第1主相11および第2主相12におけるLaの濃度の和よりも高い。また、主相10のSmの濃度は、第1主相11のSmの濃度と第2主相12のSm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Smの濃

度の和は、第1主相11および第2主相12におけるSmの濃度の和よりも高い。

[0040] ここで、主相10に含まれるLaの濃度をXとし、第1副相21に含まれるLaの濃度を $X_1$ とし、第2副相22に含まれるLaの濃度を $X_2$ とし、主相10に含まれるSmの濃度をYとし、第1副相21に含まれるSmの濃度を $Y_1$ とし、第2副相22に含まれるSmの濃度を $Y_2$ としたときに、次式(1)の関係が満たされる。

$$[0041] \quad 1 < (Y_1 + Y_2) / Y < (X_1 + X_2) / X \quad \dots \dots (1)$$

[0042] さらに、磁気特性向上の観点から、主相10に含まれるNdおよびPrの濃度に対しては、次式(2)、(3)の関係が満たされる。

$$[0043] \quad (CNd + SNd) > (X + Y) \quad \dots \dots (2)$$

$$(CPr + SPr) > (X + Y) \quad \dots \dots (3)$$

[0044] 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。

[0045] 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。

[0046] 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、下記に示す参考技術文献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。

(参考技術文献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.

[0047] 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。

[0048]

[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

[0049] 表1によると、Laの安定な置換サイトは、1000K以上の温度では、Nd(f)サイトであり、温度293Kおよび500K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1000K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、1000K以上、すなわち727℃以上、好ましくは1300K程度、すなわち1027℃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が置換されることが考えられるが、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。

[0050] 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1000K以上であるものの、後述する第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希土類焼結磁石1を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。

[0051] 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 $R_2Fe_{14}B$ 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。

[0052] [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

[0053] 表2によると、 $S_m$ の安定な置換サイトは、 $L_a$ とは異なり、いずれの温度においても、 $N_d(g)$ サイトである。 $S_m$ においても、エネルギー的に安定な $N_d(g)$ サイトに優先的に置換されると考えられるが、 $S_m$ の置換サイトの中でエネルギー差の小さい $N_d(f)$ サイトへの置換もあり得る。

[0054] 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 $N_d(g)$ サイトへの置換が最も安定である。しかし、上記した通り、 $L_a$ において主相10の $N_d$ 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 $S_m$ も $L_a$ と一緒に主相10の $N_d$ サイトから放出され、副相20に偏析する。この結果、 $L_a$ および $S_m$ 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 $L_a$ 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。より具体的には、第1副相21および第2副相22における $L_a$ の濃度の平均は、第1主相11および第2主相12における $L_a$ 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 $S_m$ の濃度の平均は、第1主相11および第2主相12における $S_m$ の濃度の平均以上である。つまり、 $L_a$ および $S_m$ は、副相20に偏析するといえる。

[0055]  $L_a$ と $S_m$ とで比較すると、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 $L_a$ 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、 $L_a$ および $S_m$ 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 $L_a$ と $S_m$ とでは、 $L_a$ の方が副相20への偏析割合が大きくなる。この温度域で幾度となく希土類焼結磁石1が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 $S_m$ 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。

[0056] ここでは、図3に示されるように代表的に $N_d$ についての説明とするが、 $D_i$ (ジジム)に代表されるように、 $N_d$ と $P_r$ とは混合物として産出され

ることから、NdおよびPrのエネルギー準位は近いと考えられる。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。希土類焼結磁石1に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。

[0057] 以上のように、実施の形態2の希土類焼結磁石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し、MをGa, Al, Cu, Coの群から選択される1種類以上の元素とする場合に、一般式(Nd, Pr, R) - Fe - B - M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と、主相10と主相10との間に存在する副相20と、を備える。主相10は、コア部11c, 12cとコア部11c, 12cを被覆するシェル部11s, 12sとを有する。R=La, Smとしたとき、副相20は、微量成分として元素Mを含む(Nd, Pr, La, Sm) - Oで表される酸化物相を主成分とする結晶性の第1副相21と、微量成分として元素Mを含む(Nd, Pr, La) - Oで表される酸化物相を主成分とする結晶性の第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の方が高くなり、元素Mの濃度については、第1副相21に比して第2副相22の方が高くなるようにした。つまり、希土類焼結磁石1には、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、副相20におけるSmの濃度および元素Mの濃度に違いを持たせるようにした。Smは、第1副相21に高濃度に存在するため、相対的にNdを主相10に拡散させ、主相10の結晶磁気異方性を向上させる。さらに、Smは、主相10の結晶粒内にも存在するため、強磁性体であるFeと同じ磁化方向に結合することで残留磁束密度の向上に貢献する。元素Mは、第2副相22に高濃度に存在することから、主相10同士を磁氣的に分断する非磁性相を形成し、磁気特性の向上に貢献する。Smと元素Mとが、各々異なる副相20に高濃度に存在することで、残留磁束密度と保磁力とを両立させて向上させることが可能となる。このように、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。

[0058] また、RをLa, Smとすることで、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11c, 12cに着目すると、第1主相11ではNdの濃度がPrの濃度より高く、逆に第2主相12ではPrの濃度がNdの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、実施の形態2の希土類焼結磁石1は、重希土類元素を使用せずかつNd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。

[0059] 実施の形態3.

実施の形態3では、実施の形態1, 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。

[0060] 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。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。

[0061] 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, R, Fe, Bお

よびMを用いることができる。実施の形態2の希土類焼結磁石1を製造する場合には、RがLaおよびSmとなる。Mとして、Ga, Al, Cu, Coの群から選択される1種類以上の元素を挙げることができる。また、原料として、Bの代わりにFeBを用いてもよい。

[0062] 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合金溶湯を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、 $10^{\circ}\text{C}/\text{秒}$ 以上 $10^7^{\circ}\text{C}/\text{秒}$ 以下とすることが好ましく、 $10^3^{\circ}\text{C}/\text{秒}$ 以上 $10^4^{\circ}\text{C}/\text{秒}$ 以下とすることがより好ましい。凝固合金の厚さは、 $0.03\text{mm}$ 以上 $10\text{mm}$ 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。

[0063] 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、 $10^{-2}^{\circ}\text{C}/\text{秒}$ 以上 $10^5^{\circ}\text{C}/\text{秒}$ 以下とすることが好ましく、 $10^{-1}^{\circ}\text{C}/\text{秒}$ 以上 $10^2^{\circ}\text{C}/\text{秒}$ 以下とすることがより好ましい。

[0064] 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、希土類焼結磁石合金は、微量成分として元素Mを含む(Nd, Pr, La, Sm) - Fe - B結晶相と、微量成分

として元素Mを含む(Nd, Pr, La, Sm)-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、微量成分として元素Mを含む(Nd, Pr, La, Sm)-Fe-B結晶相は、(Nd, Pr, La, Sm)-Fe-B結晶相とも称され、微量成分として元素Mを含む(Nd, Pr, La, Sm)-Oで示される酸化物の結晶性の副相20は、(Nd, Pr, La, Sm)-O相とも称される。(Nd, Pr, La, Sm)-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。(Nd, Pr, La, Sm)-O相の厚さは、粒界の幅に相当し、10 $\mu$ 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、鋳型鋳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。

[0065] 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、(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。

[0066] 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(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、粒径が200 $\mu$ m以下、好ましくは0.5 $\mu$ m以上100 $\mu$ m以下、さらに着磁性能を考慮した場合には、1 $\mu$ m以上10 $\mu$ 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には、希土類焼結磁石合金の粉砕を大気中に行ってもよい。なお、実施の形態1の希土類焼結磁石1を製造する場合には、実施の形態2の希土類焼結磁石1を製造する際に使用する希土類焼結磁石合金のLaおよびSmを、Nd、Pr以外の希土類元素Rとすることができる。つまり、(Nd, Pr, R) - Fe - B結晶相と、(Nd, Pr, R) - O相と、を有する希土類焼結磁石合金を粉砕すればよい。

[0067] ステップS22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2T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。

[0068] ステップS23の焼結工程では、圧縮成形された成形体を950℃以上1300℃以下、好ましくは1000℃以上1150℃未満の範囲内の焼結温度で0.1時間以上10時間以内の範囲内の時間、好ましくは1.0時間以上6.0時間以下の範囲内の時間で保持することで、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。

[0069] ステップS24の時効工程は、図5の場合には、ステップS24-1の第1次時効工程、ステップS24-2の第2次時効工程、ステップS24-3の第3次時効工程、およびステップS24-4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。

[0070] ステップS24-1の第1次時効工程では、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保持する。

[0071] ステップS24-2の第2次時効工程では、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保持する。

[0072] ステップS24-3の第3次時効工程では、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保持する。

[0073] ステップS24-4の第4次時効工程では、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保持する。

[0074] 最後に、ステップS25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、200℃以上450℃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。

[0075] 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って、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こととなる。この結果、 $CNd > CPr$ からなる第1主相11と、 $CNd < CPr$ からなる第2主相12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はNdの濃度がPrの濃度より高く、逆に第2主相1

2はPrの濃度がNdの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。

[0076] さらに、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、微量成分として元素Mを含む(Nd, Pr, La, Sm)-Oで表される酸化物相を主成分とする結晶性の第1副相21と、微量成分として元素Mを含む(Nd, Pr, La)-Oで表される酸化物相を主成分とする結晶性の第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の方が高くなり、元素Mの濃度については、第1副相21に比して第2副相22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。つまり、時効工程および冷却工程で、(Nd, Pr, La, Sm)-O相から、一例では元素Mの濃度に応じて、(Nd, Pr, La, Sm)-Oで表される酸化物相を主成分とする結晶性の第1副相21と、(Nd, Pr, La)-Oで表される酸化物相を主成分とする結晶性の第2副相22と、が生成される。なお、第2副相22には、微量のSmが含まれていてもよい。また、第1副相21のSmの濃度は第2副相22に比して高いので、副相20において第1副相21はSm濃化部を形成しているともいえる。また、第1副相21において、Smの濃度が高い高濃度部41とSmの濃度が低い低濃度部42とが存在する場合もあるので、この場合には、第1副相21の高濃度部41がSm濃化部を形成しているともいえる。

[0077] これによって、重希土類元素を使用せずかつNd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。

[0078] 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。これによって、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。

[0079] また、実施の形態3では、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。一例では、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。これによって、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、 $CNd > CPr$ からなる第1主相11と、 $CNd < CPr$ からなる第2主相12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はNdの濃度がPrの濃度よりも高く、逆に第2主相12はPrの濃度がNdの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。

[0080] さらに、上記の製造工程により、微量成分として元素Mを含む(Nd, Pr, La, Sm)-Oで表される酸化物相を主成分とする結晶性の第1副相21と、微量成分として元素Mを含む(Nd, Pr, La)-Oで表される酸化物相を主成分とする結晶性の第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の方が高くなり、Mの濃度は、第1副相21に比して第2副相22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。また、副相 2 0 において、第 1 副相 2 1 の S m の濃度は第 2 副相 2 2 に比して高いので、S m 濃化部、すなわち S m が濃化した第 1 副相 2 1 を有するという特徴的な組織構造を有する希土類焼結磁石 1 を製造することができる。あるいは、第 1 副相 2 1 において、S m の濃度が高い高濃度部 4 1 と S m の濃度が低い低濃度部 4 2 とが存在する場合には、S m 濃化部である高濃度部 4 1 を有するという特徴的な組織構造を有する希土類焼結磁石 1 を製造することができる。

[0081] 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 1 0 0 の回転軸 R A に垂直な方向の断面を示している。

[0082] 回転子 1 0 0 は、回転軸 R A を中心に回転可能である。回転子 1 0 0 は、回転子鉄心 1 0 1 と、回転子 1 0 0 の周方向に沿って回転子鉄心 1 0 1 に設けられた磁石挿入穴 1 0 2 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 1 0 2 を回転子鉄心 1 0 1 に設け、4 つの希土類焼結磁石 1 を磁石挿入穴 1 0 2 に挿入する例を示しているが、磁石挿入穴 1 0 2 および希土類焼結磁石 1 の数は回転子 1 0 0 の設計に応じて変更してもよい。回転子鉄心 1 0 1 は、円盤形状の電磁鋼板が、回転軸 R A の軸線方向に複数積層して形成されている。

[0083] 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 1 0 2 に挿入されている。4 つの希土類焼結磁石 1 は、回転子 1 0 0 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。

[0084] 実施の形態 4 による回転子 1 0 0 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。上述のように、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、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重希土類元素を使用せずかつNd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。

[0085] 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。

[0086] 回転機120は、実施の形態4で説明した回転軸RAを中心に回転可能な回転子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。

[0087] 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。上述のように、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、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が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重希土類元素を使用せずかつNd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。

## 実施例

[0088] 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。

[0089] 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微量成分として元素Mを含む(Nd, Pr, La, Sm) - Fe - B結晶相と微量成分として元素Mを含む(Nd, Pr, La, Sm) - O相で示される試料とを用いて、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、微量成分として元素Mを含む(Nd, Pr, La, Sm) - Fe - B結晶相と微量成分として元素Mを含む(Nd, Pr, La, Sm) - O相とを含む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。Mは、Ga, Al, Cu, Coの群から選択される1つ以上の元素であるが、ここではMがCoである場合を例に挙げる。

[0090] 比較例1から14では、組成の異なる複数の希土類焼結磁石合金R-Fe-B-M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14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。

[0091] 比較例1から7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、を含み、MがGa, Al, Cu, Coの群から選択される1つ以上の元素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。ここでは、MがCoである場合を例に挙げる。ただし、比較例1では、Nd以外の希土類元素Rが含まれないNd-Fe-B-Mとし、比較例2では、Nd以外の希土類元素Rおよび元素Mが含まれないNd-Fe-Bとしている。

[0092] 比較例8から14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、を含み、MがGa, Al, Cu, Coの群から選択される1つ以上の元素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。ここでは、MがCoである場合を例に挙げる。ただし、比較例8では、Nd以外の希土類元素Rが含まれないNd-Fe-B-Mとし、比較例9では、Nd以外の希土類元素Rおよび元素Mが含まれないNd-Fe-Bとしている。特許文献2に示される製造方法では、焼結体に熱間加工を施す工程が含まれる。

[0093] 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14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。

[0094]

[表3]

	一般式	含有量(at.%)				M元素 添加 有無	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 係数	着磁 性能
								第1主相 (CNd>CPr)	第2主相 (CNd<CPr)						
比較例1	Nd-Fe-B-M	11.23	-	-	-	-	x	x	x	-	-	-	-	-	
比較例2	Nd-Fe-B	11.23	-	-	-	-	x	x	x	不良	不良	不良	不良	同等以上	
比較例3	(Nd,Dy)-Fe-B-M	10.01	-	-	-	1.12	x	x	x	不良	不良	不良	不良	同等以上	
比較例4	(Nd,Pr)-Fe-B-M	8.83	2.94	-	-	-	x	x	x	同等	同等	不良	不良	同等以上	
比較例5	(Nd,La,Sm)-Fe-B-M	9.66	-	1.03	1.07	-	x	x	x	同等	同等	良	良	同等以上	
比較例6	(Nd,La,Sm)-Fe-B-M	11.64	-	0.51	0.45	-	x	x	x	同等	同等	良	良	同等以上	
比較例7	(Nd,Pr,La,Sm)-Fe-B-M	7.65	2.35	0.59	0.55	-	x	x	x	同等	同等	良	良	同等以上	
比較例8	Nd-Fe-B-M	11.23	-	-	-	-	x	x	x	同等	同等	同等	同等	不良	
比較例9	Nd-Fe-B	11.23	-	-	-	-	x	x	x	不良	不良	同等	同等	不良	
比較例10	(Nd,Dy)-Fe-B-M	10.01	-	-	-	1.12	x	x	x	不良	不良	同等	同等	不良	
比較例11	(Nd,Pr)-Fe-B-M	8.83	2.94	-	-	-	x	○	x	不良	不良	同等	同等	不良	
比較例12	(Nd,La,Sm)-Fe-B-M	9.66	-	1.03	1.07	-	x	x	x	不良	不良	良	良	不良	
比較例13	(Nd,La,Sm)-Fe-B-M	11.64	-	0.51	0.45	-	x	x	x	不良	不良	良	良	不良	
比較例14	(Nd,Pr,La,Sm)-Fe-B-M	8.25	2.35	0.59	0.55	-	x	○	x	不良	不良	良	良	不良	
実施例1	(Nd,Pr,La,Sm)-Fe-B-M	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-M	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-M	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-M	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-M	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-M	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-M	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-M	10.25	1.53	0.11	0.12	-	○	○	○	良	良	良	良	同等以上	

(表3)

[0095] 次に、実施例1から8および比較例1から14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 E P M A を用いた元素分析により決定される。ここでは、SEM および E P M A として、F E - E P M A (日本電子株式会社製、製品名 : J X A - 8 5 3 0 F) を用いる。元素分析の条件は、加速電圧が 1 5 . 0 k V であり、照射電流が  $2 . 2 7 1 e^{-008} A$  であり、照射時間が 1 3 0 m s であり、画素数が 5 1 2 ピクセル  $\times$  5 1 2 ピクセルであり、倍率が 5 0 0 0 倍であり、積算回数が 1 回である。

[0096] 次に、実施例 1 から 8 および比較例 1 から 1 4 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 B H 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。B H 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 6 T 以上である。パルス励磁式の B H トレーサの他に、6 T 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 B H 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 : V S M)、磁気特性測定装置 (Magnetic Property Measurement System : M P M S)、物理特性測定装置 (Physical Property Measurement System : P P M S) 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 から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 T 1 および第 2 測定温度 T 2 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  $\alpha$  [%/°C] は、第 1 測定温度 T 1 での残留磁束密度と第 2 測定温度 T 2 での残留磁束密度との差と、第 1 測定温度 T 1 での残留磁束密度との比を、温度の差 (T 2 - T 1) で割った値である。また、保磁力の温度係数  $\beta$  [%/°C] は、第 1 測定温度 T 1 での保磁力と第 2 測定温度 T 2 での保磁力との差と、第 1 測定温度 T 1 での保磁力との比を、温度の差 (T 2 - T 1) 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  $|\alpha|$  および  $|\beta|$  が小さくなるほど、温度上昇に伴う磁石の磁気特性の低下が抑制されることになる。

[0097] 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。

[0098] まず、実施例 1 から 8 および比較例 1 から 14 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 14 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、Co の元素マッピングであり、図 12 は、O の元素マッピングであり、図 13 は、La の元素マッピングであり、図 14 は、Sm の元素マッピングである。なお、図 9 から図 14 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ため、図 8 から図 14 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。

[0099] 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  $(Nd, Pr, R) - Fe - B - M$  を満たす希土類焼結磁石 1 の  $Nd_2Fe_{14}B$  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 11c, 12c とコア部 11c, 12c を被覆するシェル部 11s, 12s とを有する主相 10 が存在する。また、主相 10 には、 $C_{Nd} > C_{Pr}$  である第 1 主相 11 と、 $C_{Nd} < C_{Pr}$  である第 2 主相 12 と、が混在していることが確認でき

る。

[0100] 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の検出強度とPrの検出強度との間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の濃度はEPMAの検出強度が平均よりも高く、Prの濃度はEPMAの検出強度が平均よりも低いこと、この場合には下限値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。

[0101] 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、EPMA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 $CNd$ が32.0より高く、 $CPr$ 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、 $CPr$ が45より高く、 $CNd$ 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。

[0102] 図11から図14に示されるように、 $R = La, Sm$ 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に加え、微量成分として元素Mを含む $(Nd, Pr, La, Sm) - O$ として表される酸化物相を主成分とする結晶性の第1副相21と、微量成分として元素Mを含む $(Nd, Pr, La) - O$ として表される酸化物相を主成分とする結晶性の第2副相22と、を有する。また、Smの濃度は、第2副相22に比して第1副相21の方が高く、元素MであるCoの濃度は、第1副相21に比して第2副相22の方が高いことが確認できる。

[0103] 表3には、 $CNd > CPr$ である第1主相11、および $CNd < CPr$ 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、 $N_d$ および $P_r$ 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、 $N_d$ の濃度はEPMAの検出強度が平均より高く、 $P_r$ の濃度はEPMA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のように $C_{N_d} < C_{P_r}$ 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。

[0104] また、表3には、微量成分として元素Mを含む( $N_d$ ,  $P_r$ ,  $L_a$ ,  $S_m$ )-Oとして表される酸化物相を主成分とする結晶性の第1副相21と、微量成分として元素Mを含む( $N_d$ ,  $P_r$ ,  $L_a$ )-Oとして表される酸化物相を主成分とする結晶性の第2副相22と、を有し、第1副相21に比して第2副相22の方が元素Mの濃度が高くなることが確認できた試料については、項目「組織形態」の「副相」の「M濃度 第1副相<第2副相」の欄に「○」が入力され、確認できなかった試料については、項目「組織形態」の「副相」の「M濃度 第1副相<第2副相」の欄に「×」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については、項目「組織形態」の「副相」の「M濃度 第1副相<第2副相」の欄に「×」が入力されている。

[0105] なお、第1副相21と第2副相22との $S_m$ の濃度差は、EPMA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。具体的には、図14の $S_m$ のマッピング図を例にすると、EPMA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。また、第1副相21と第2副相22との元素Mである $C_o$ の濃度差は、EPMAを用いたマッピング分析により、第1副相21よりも第2副相22において $C_o$ 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11の $C_o$ のマッピング図を例にすると、EPMAの $C_o$ の検出レベルの平均値が5.4に対して

、第2副相22は5.4よりも高く、第1副相21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。

[0106] また、FE-EPMAで分析して得られた元素マッピングの強度比から、 $CNd < CPr$ である第2主相12の数よりも $CNd > CPr$ 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11s, 12sに着目したとき、第1主相11は $CNd > SNd$ 、 $CPr < Spr$ の関係式を満たし、第2主相12は $CNd < SNd$ 、 $CPr > Spr$ の関係式を満たすことも確認できる。

[0107] 次に、実施例1から8および比較例1から14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7mm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。

[0108] まず、実施例1から8および比較例2から14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。

[0109] 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14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±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。

[0110] 次に、着磁性能は、印加磁場20kOe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80kOe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14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。

[0111] 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。

[0112] 比較例1は、Nd-Fe-B-Mとなるように、Nd、FeおよびFeB、さらに元素MであるCo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 $B_r$ は1.32Tであり、保磁力 $H_c$ は1250kA/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 $|\alpha|=0.191\%/^{\circ}\text{C}$ 、 $|\beta|=0.460\%/^{\circ}\text{C}$ 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。

[0113] 比較例2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。比較例2では、元素MであるCoを添加していない。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。元素MであるCoが入っていないため、Coの濃度が、第1副相21に比して第2副相22の方が高いことも確認できない。残留磁束密度および保磁力は「不良」となっているが、残留磁束密度および保磁力の温度係数は「同等」であり、着磁性能は「同等以上」となっている。

[0114] 比較例3は、(Nd, Dy)-Fe-B-Mとなるように、Nd, Dy, FeおよびFeB、さらに元素MであるCo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。さらに、Coの濃度が、第1副相21に比して第2副相22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「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って、また副相20に元素MであるCoが添加されることによって、保磁力は向上するが、主相10の組織制御ができていないことによって、残留磁束密度は不良となることを反映した結果となっている。

[0115] 比較例4は、(Nd, Pr)-Fe-B-Mとなるように、Nd, Pr,

FeおよびFeB、さらに元素MであるCo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が添加されたことにより、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。さらに、Coの濃度が、第1副相21に比して第2副相22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およびCo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のコアシェル構造が形成できていないこと、および副相20におけるCoの制御ができていないことから、残留磁束密度は同等となり、保磁力の温度係数は不良となることを反映した結果となっている。

[0116] 比較例5は、(Nd, La, Sm) - Fe - B - Mとなるように、Nd, La, Sm, FeおよびFeB、さらに元素MであるCo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ず、Coの濃度が、第1副相21に比して第2副相22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、Prが入っていないために、主相10および副相20の組織制御ができておらず、残留磁束密度および保磁力が同等になってしまうことを反映した結果となっている。

[0117] 比較例6は、(Nd, La, Sm) - Fe - B - Mとなるように、Nd, La, Sm, FeおよびFeB、さらに元素MであるCo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5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ず、Coの濃度が、第1副相21に比して第2副相22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の添加量を調整しても、Prが添加されていないので、主相10および副相20の組織制御ができておらず、残留磁束密度および保磁力は同等となってしまうことを示している。このように、Nd, La, Smの組成比を変えても、比較例5とほぼ同様の結果が得られる。

[0118] 比較例7は、(Nd, Pr, La, Sm) - Fe - B - Mとなるように、Nd, Pr, La, Sm, FeおよびFeB、さらに元素MであるCo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が添加されたことにより、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ず、Coの濃度が、第1副相21に比して第2副相22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、比較例6にPrを添加することによって、保磁力の絶対値は向上するが、主相10および副相20の組織制御ができていないため、保磁力の温度係数が比較例6の場合よりも悪化することを反映した結果となっている。

[0119] 比較例8は、Nd-Fe-B-Mとなるように、Nd、FeおよびFeB、さらに元素MであるCo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。さらに、Coの濃度が、第1副相21に比して第2副相22の方が高いことも確認できない。しかし、熱間加工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「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「同等」となり、着磁性能は「不良」となる。これは、元素Mにより結晶粒界が非磁性化され、保磁力は向上するものの、Pr、LaおよびSmが添加されていないことによって、主相10および副相20の組織制御ができていないことを反映した結果となっている。

[0120] 比較例9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 9 では、元素 M である Co を添加していない。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。さらに、Co は添加されていないことから、Co の濃度が、第 1 副相 21 に比して第 2 副相 22 の方が高いことも確認できない。しかし、熱間加工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、熱間加工による磁粉の微細化に伴い、保磁力は向上し、残留磁束密度の温度係数および保磁力の温度係数は同等となるが、磁気モーメントが揃いにくいことから、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。

[0121] 比較例 10 は、(Nd, Dy) - Fe - B - M となるように、Nd, Dy, Fe および FeB、さらに元素 M である Co 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。さらに、Co の濃度が、第 1 副相 21 に比して第 2 副相 22 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、磁粉が微細化することに加え、結晶磁気異方性が高い Dy が Nd の一部と置換されること、および元素 M が添加されることによって保磁力が大幅に向上し、残留磁束密度の温度係数およ

び保磁力の温度係数は同等となるが、磁気モーメントが揃いにくいことから、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。

[0122] 比較例11は、(Nd, Pr) - Fe - B - Mとなるように、Nd, Pr, FeおよびFeB、さらに元素MであるCo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、コアシェル構造が確認されるのはコア部のPrの濃度が高い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。さらに、Coの濃度が、第1副相21に比して第2副相22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、熱間加工により作製され、磁粉が微細化することに加え、コア部のPrの濃度が高いコアシェル構造の形成によって、またCoを添加したことによって、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、残留磁束密度の温度係数および保磁力の温度係数は同等となるが、磁気モーメントが揃いにくいことから、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。

[0123] 比較例12は、(Nd, La, Sm) - Fe - B - Mとなるように、Nd, La, Sm, FeおよびFeB、さらに元素MであるCo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 2 1 の方が高いことも確認できず、C o の濃度が、第 1 副相 2 1 に比して第 2 副相 2 2 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、熱間加工により作製されることに加え、C o を添加したことによって、D y 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、また、L a , S m が主相 1 0 または副相 2 0 に存在し、磁粉が微細化することによって、残留磁束密度の温度係数および保磁力の温度係数は良好な結果を示しているが、磁気モーメントが揃いにくいことから、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。

[0124] 比較例 1 3 は、( N d , L a , S m ) - F e - B - M となるように、N d , L a , S m , F e および F e B、さらに元素 M である C o 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 1 2 とは N d , L a , S m 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、P r が添加されていないことにより、主相 1 0 のコアシェル構造は確認できない。また、L a および S m が添加されることにより、S m の濃度は、L a の偏析に伴い、1 つの副相 2 0 に偏析しているものの、第 2 副相 2 2 は存在しない。さらに、S m の濃度が第 2 副相 2 2 に比して第 1 副相 2 1 の方が高いことも確認できず、C o の濃度が、第 1 副相 2 1 に比して第 2 副相 2 2 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、熱間加工により作製されることに加え、C o を添加したことによって、D y 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、また、L a , S m が主相 1 0 または副相 2 0 に存在し、磁粉が微細化することによって、残留磁束密度の温度係数

および保磁力の温度係数は良好な結果を示しているが、磁気モーメントが揃いにくいことから、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。Nd, La, Smの組成比を変えても、比較例12とほぼ同様の結果が得られる。

[0125] 比較例14は、(Nd, Pr, La, Sm) - Fe - B - Mとなるように、Nd, Pr, La, Sm, FeおよびFeB、さらに元素MであるCo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、コアシェル構造が確認されるのはコア部のPrの濃度が高い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ず、Coの濃度が、第1副相21に比して第2副相22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、熱間加工により作製されることに加え、Prを添加することによるコア部のPrの濃度が高いコアシェル構造の形成と、Coの添加と、によって、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って、残留磁束密度の温度係数および保磁力の温度係数は良好な結果を示しているが、磁気モーメントが揃いにくいことから、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もなっている。

[0126] 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、MをGa, Al, Cu, Coの群から選択される1種類以上の元素とすると、一般式(Nd, Pr, R) - Fe - B - M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と、主相10と主相10との間に存在する副相20と、を有し、主相10は、コア部11c, 12cとコア部11c, 12cを被覆するシェル部11s, 12sとを有し、主相10は、 $CNd > CP_r$ である第1主相11と、 $CNd < CP_r$ 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、 $R = La, Sm$ とした場合には、副相20は、微量成分として元素Mを含む( $Nd, Pr, La, Sm$ ) $-O$ として表される酸化物相を主成分とする結晶性の第1副相21と、微量成分として元素Mを含む( $Nd, Pr, La$ ) $-O$ として表される酸化物相を主成分とする結晶性の第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の方が高く、元素Mの濃度は、第1副相21に比して第2副相22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重希土類元素を使用せずかつNd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。

[0127] 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

[0128] 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、41 高濃度部、42 低濃度部、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。

## 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、MをGa, Al, Cu, Coの群から選択される1種類以上の元素としたとき、一般式  $(Nd, Pr, R) - Fe - B - M$  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と、前記主相と前記主相との間に形成される副相と、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 $CP_r$ としたとき、 $CNd > CP_r$ である第1主相と、 $CNd < CP_r$ である第2主相と、を有し、
- 前記第1主相と前記第2主相とは混在しており、
- 前記副相は、微量成分として元素Mを含む  $(Nd, Pr, R) - O$  で表される酸化物相を主成分とする結晶性の第1副相および第2副相を有し、
- 前記元素Mの濃度は、前記第1副相に比して前記第2副相の方が高いことを特徴とする希土類焼結磁石。
- [請求項2] 電子プローブマイクロアナライザを用いて前記希土類焼結磁石を分析したときに、前記第1副相の前記元素Mの濃度については、前記電子プローブマイクロアナライザの検出強度が前記元素Mの検出強度の平均よりも低く、前記第2副相の前記元素Mの濃度については、前記電子プローブマイクロアナライザの検出強度が前記元素Mの検出強度の平均よりも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 $SP_r$ としたとき、
- 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]

前記副相は、RをLa、Smとしたとき、微量成分として元素Mを含む $(Nd, Pr, La, Sm) - O$ として表される酸化物相を主成分とする結晶性の第1副相と、微量成分として元素Mを含む $(Nd, Pr, La) - O$ として表される酸化物相を主成分とする結晶性の第2副相と、を有し、

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]

請求項1から5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、

$(Nd, Pr, R) - Fe - B - M$ 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7]

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5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。

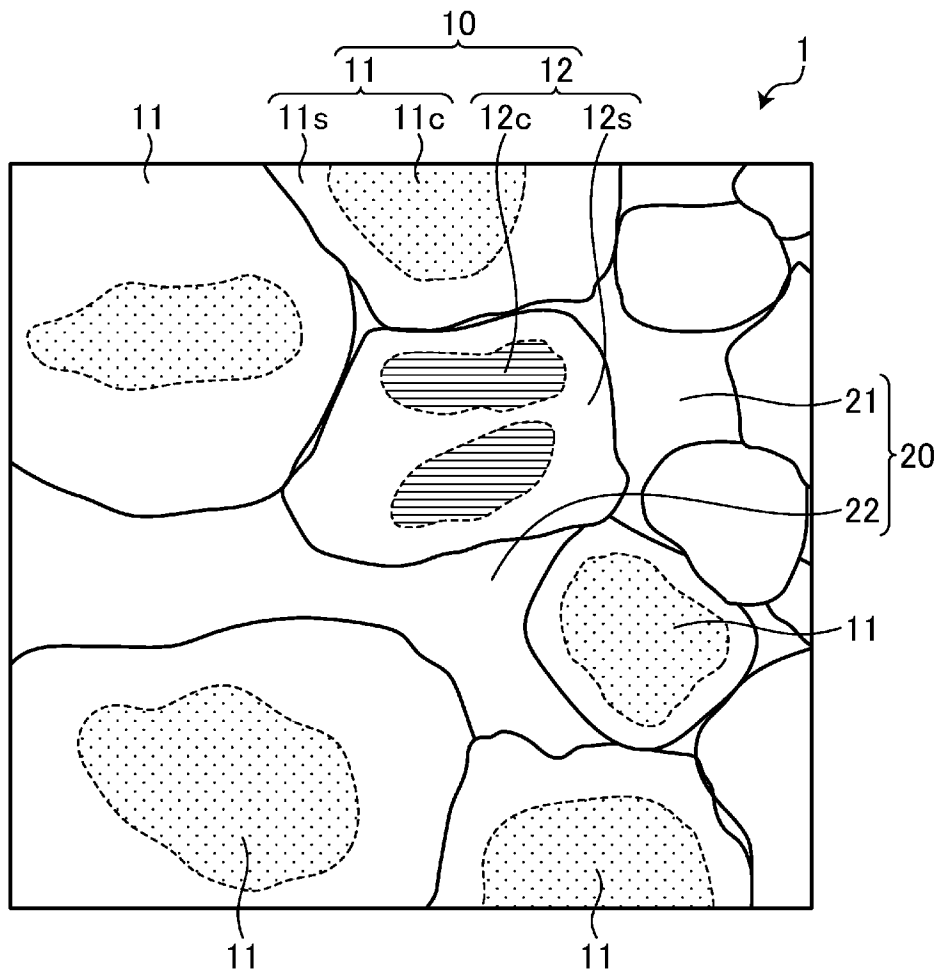
[請求項8]

請求項7に記載の回転子と、

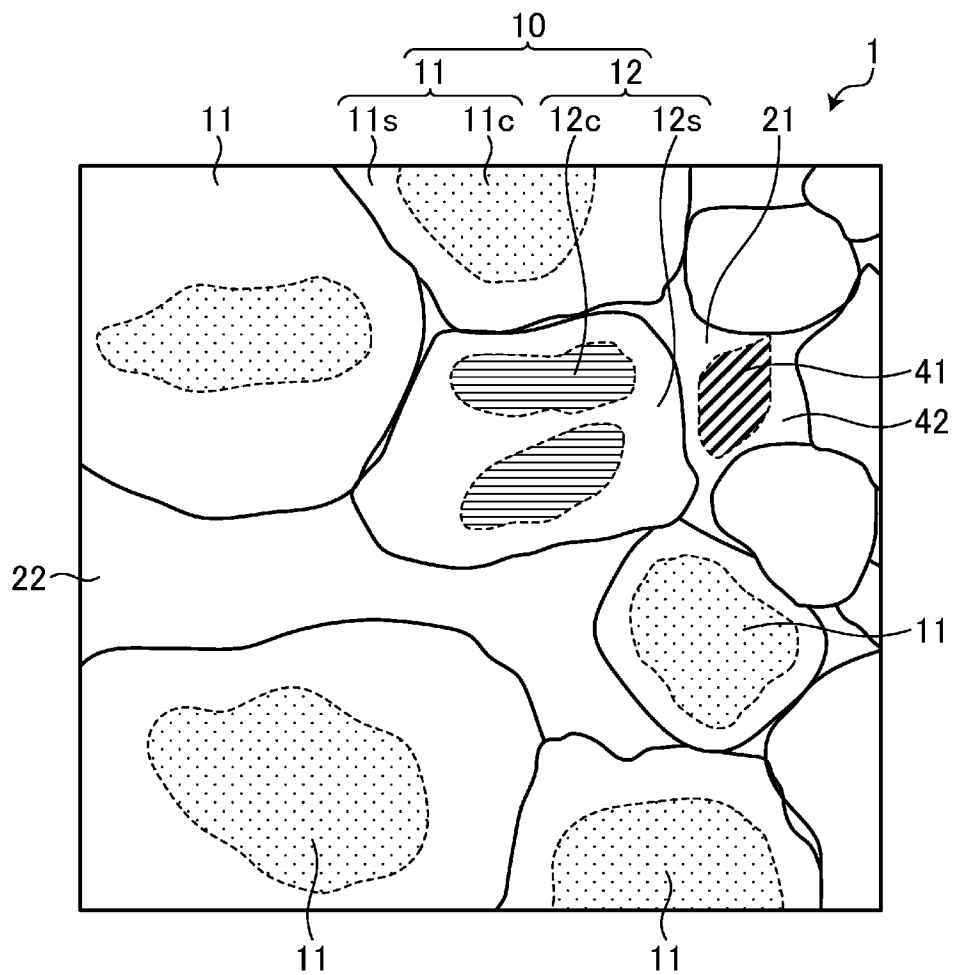
前記回転子が配置される側の内面に、前記回転子に向かって突出したティースに備え付けられる巻線を有し、前記回転子に対向配置される環状の固定子と、

を備えることを特徴とする回転機。

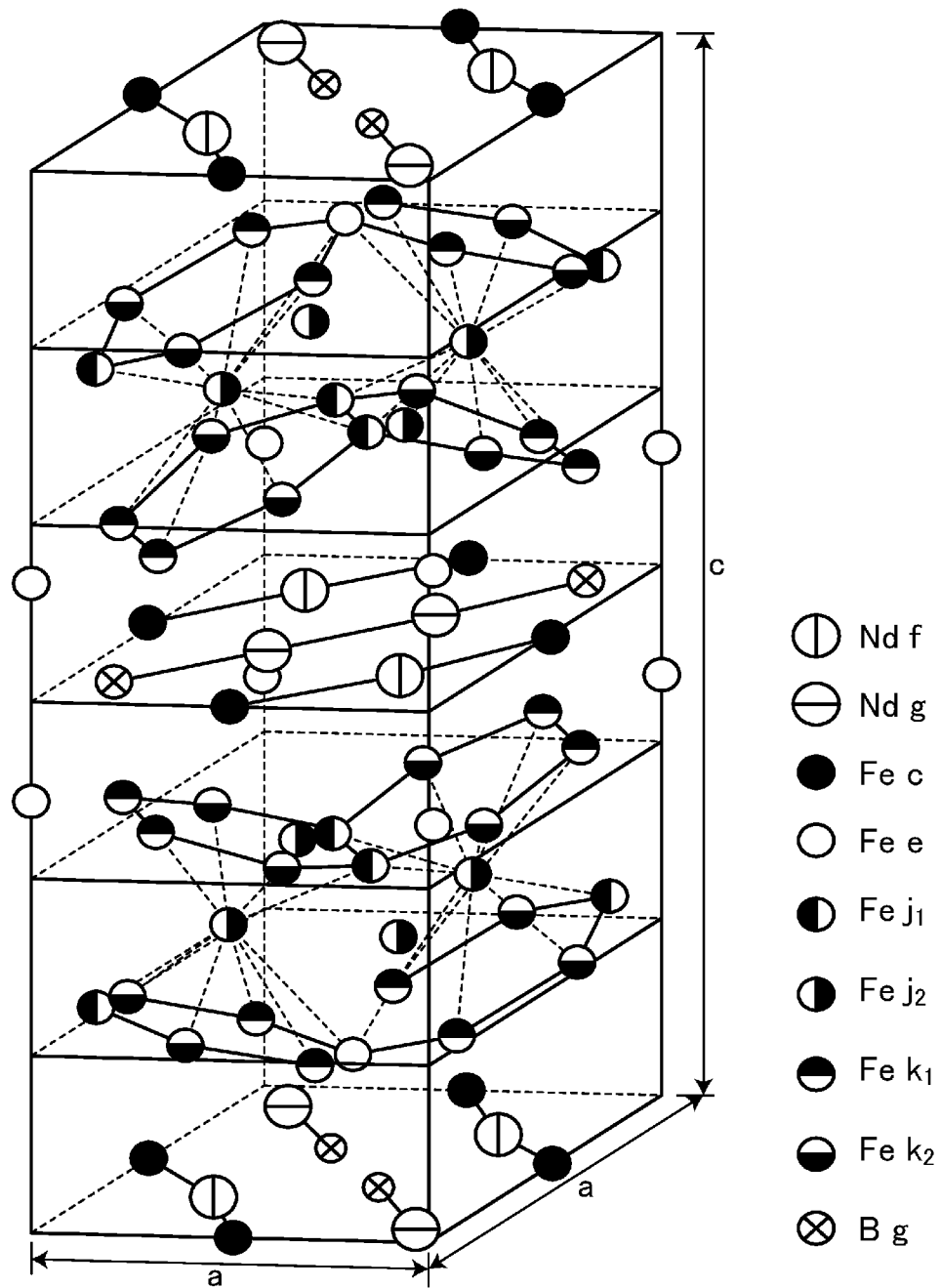
[図1]



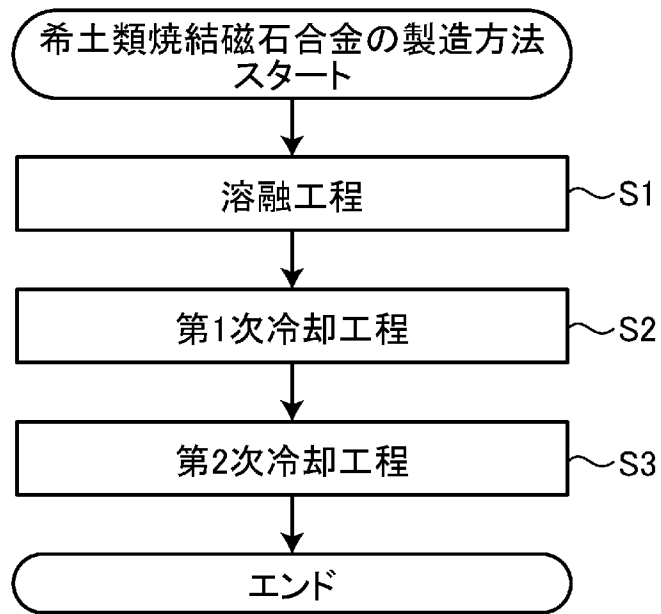
[図2]



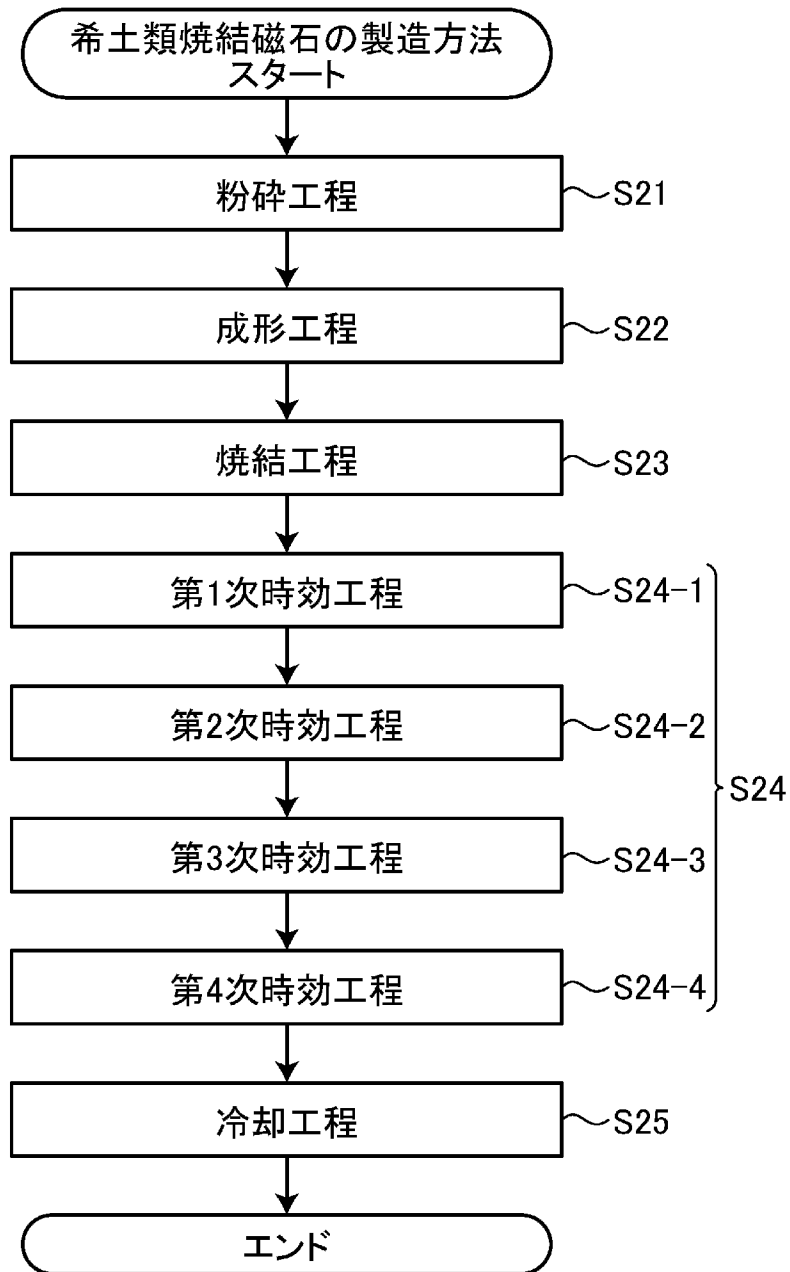
[図3]



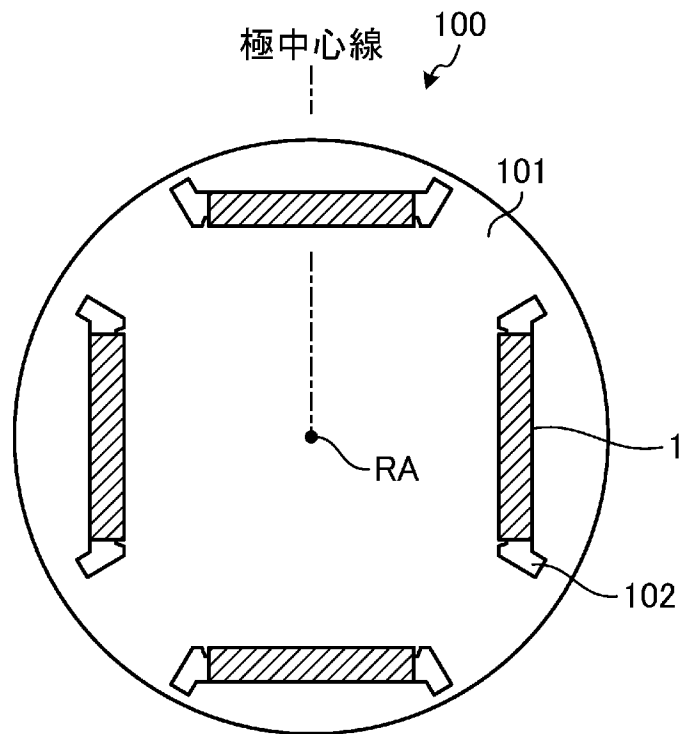
[図4]



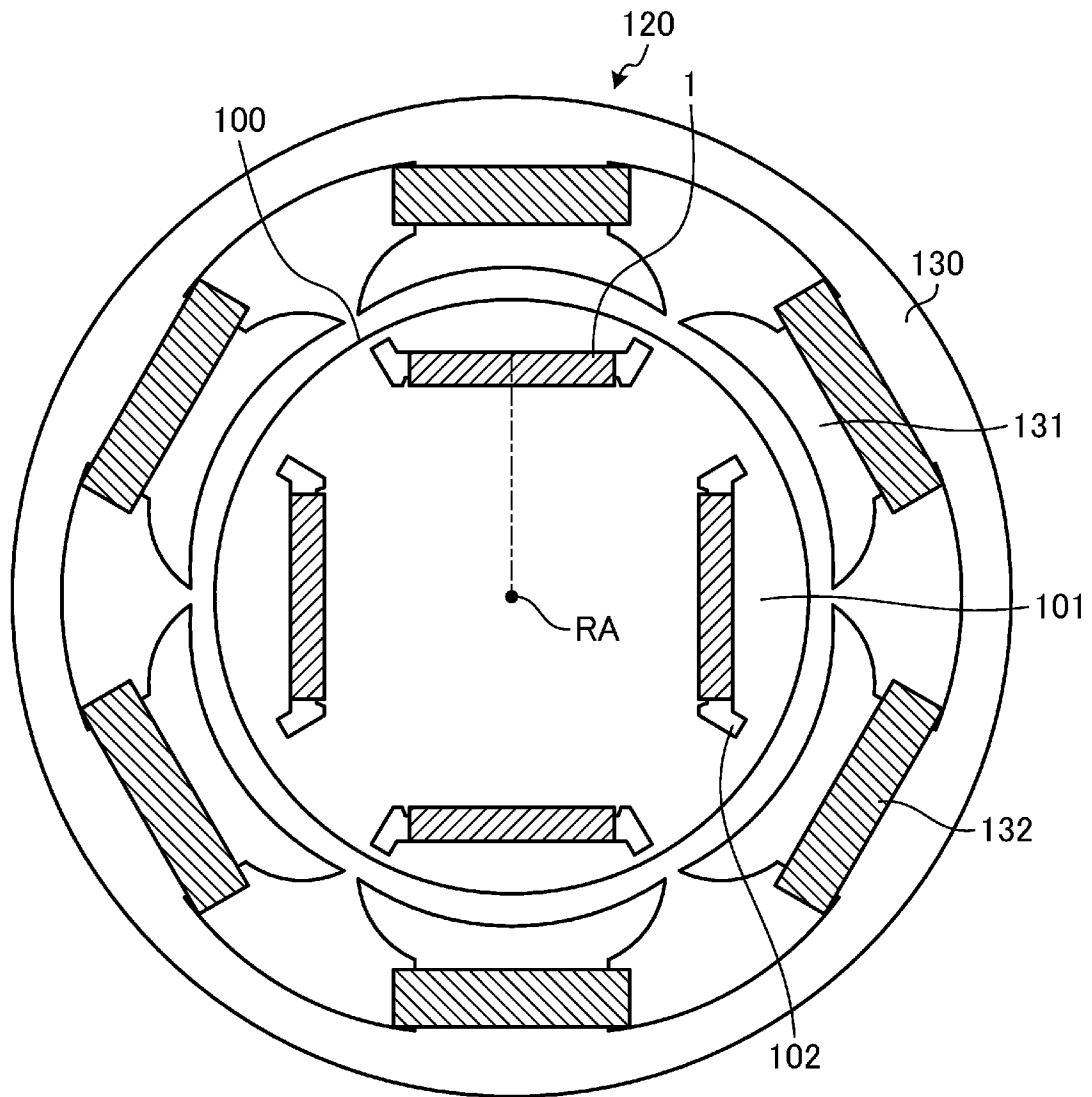
[図5]



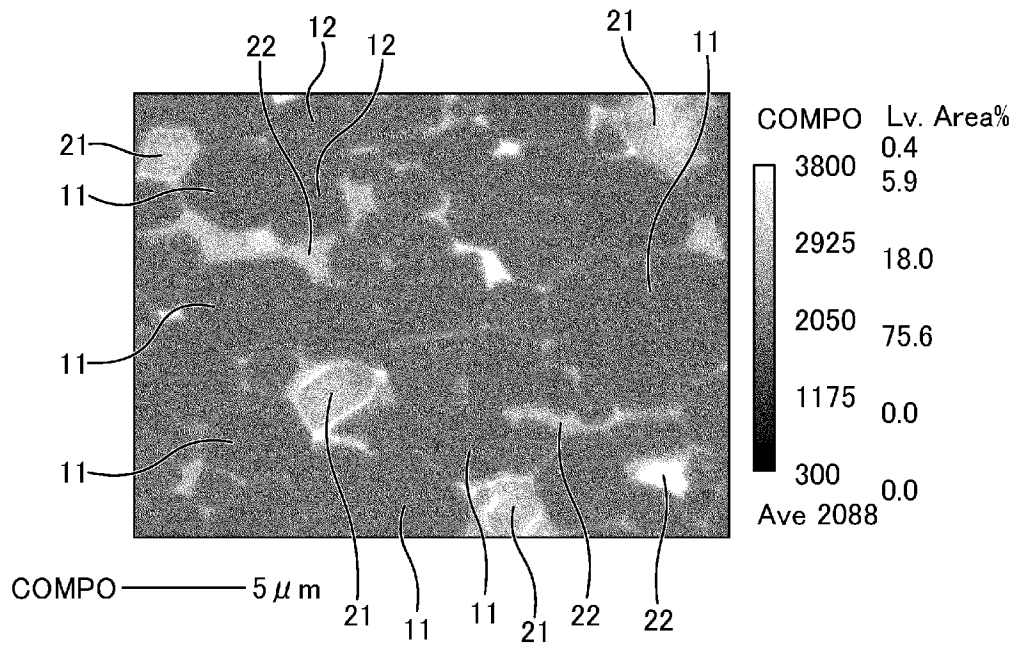
[図6]



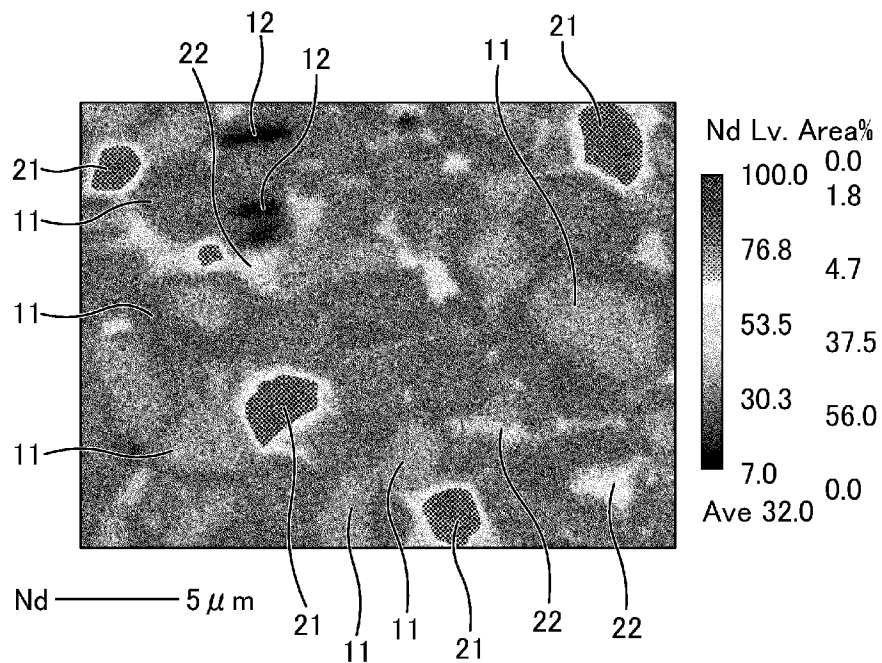
[図7]



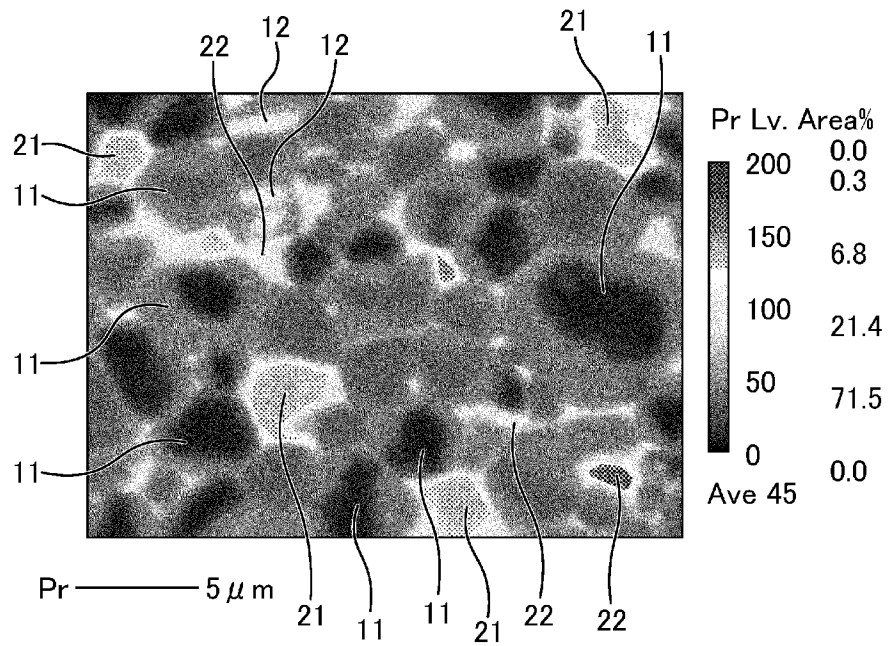
[図8]



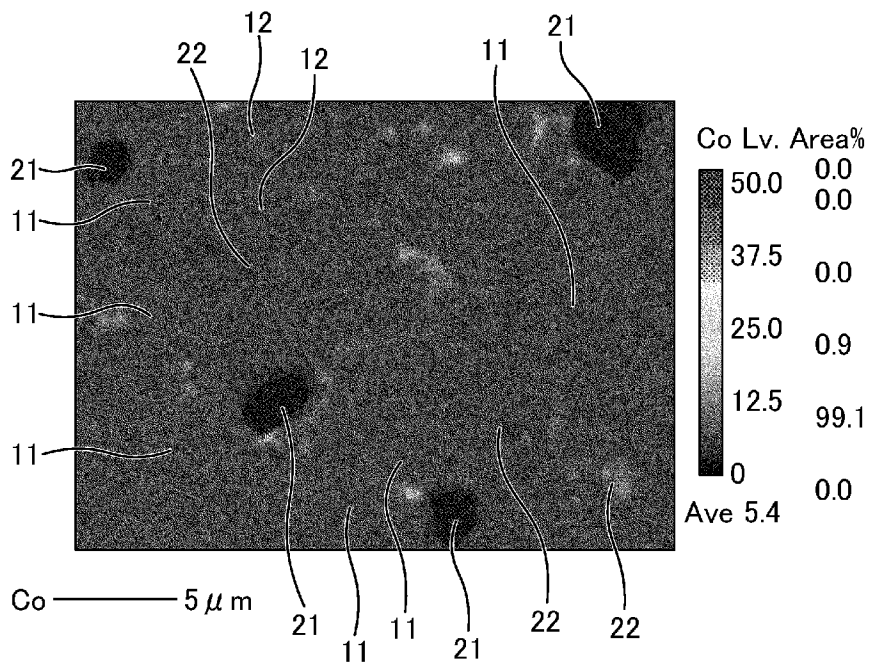
[図9]



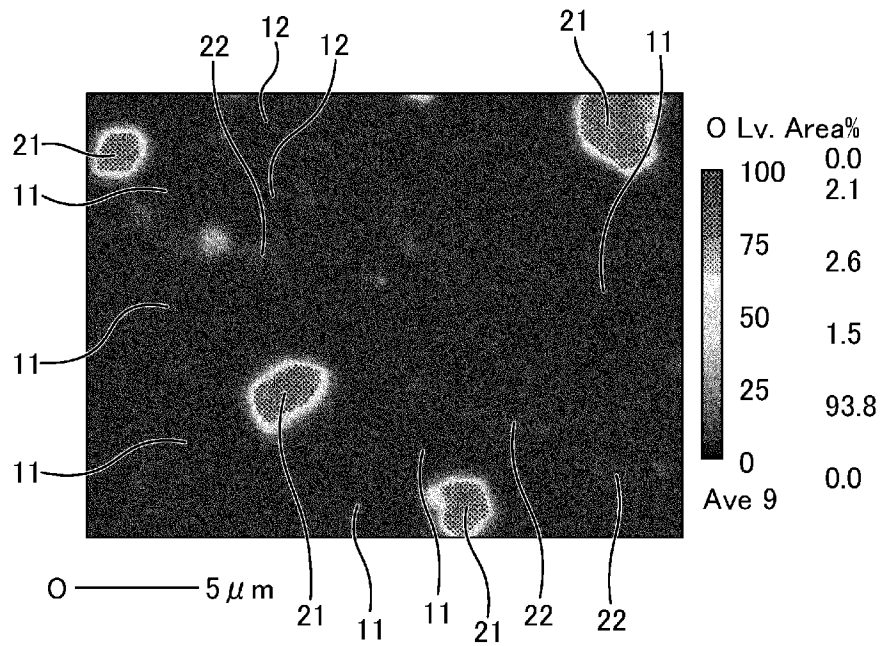
[図10]



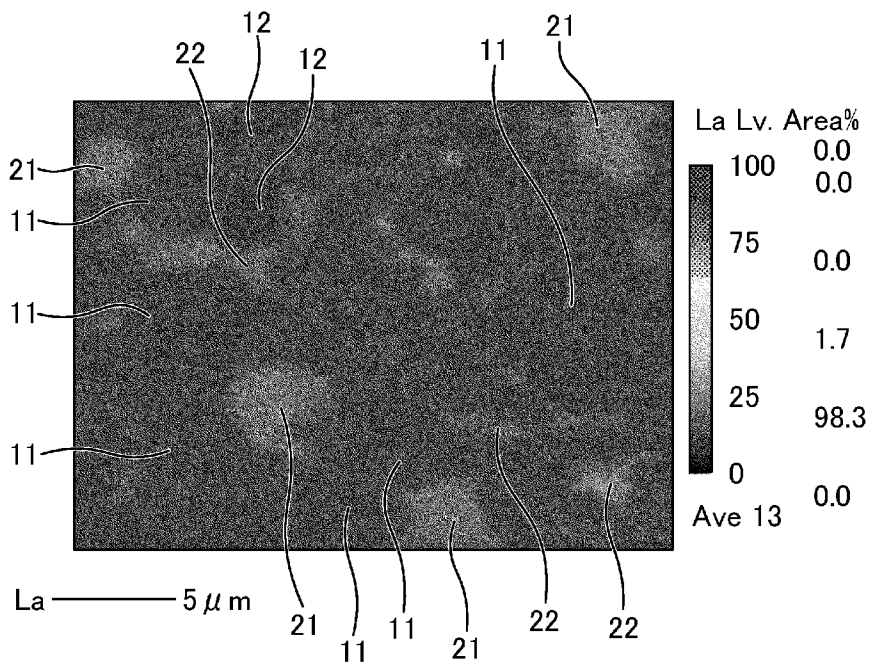
[図11]



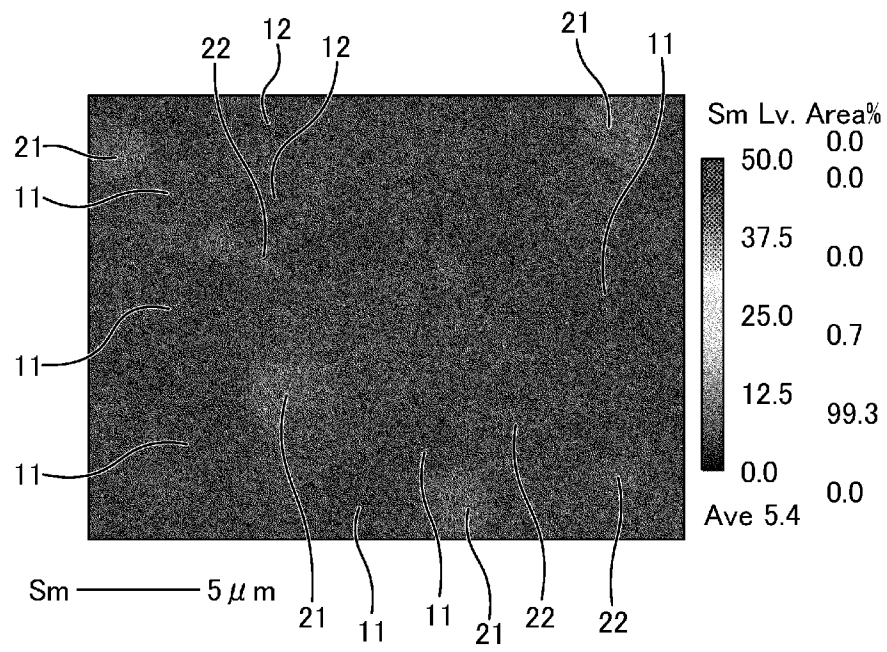
[図12]



[図13]



[図14]



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2023/033579

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>		
<i>H01F 1/057</i> (2006.01)i; <i>H01F 41/02</i> (2006.01)i FI: H01F1/057 170; H01F41/02 G		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) H01F1/057; H01F41/02		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2023 Registered utility model specifications of Japan 1996-2023 Published registered utility model applications of Japan 1994-2023		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2023/012929 A1 (MITSUBISHI ELECTRIC CORPORATION) 09 February 2023 (2023-02-09)	1-8
A	WO 2021/205580 A1 (MITSUBISHI ELECTRIC CORPORATION) 14 October 2021 (2021-10-14)	1-8
A	WO 2022/107221 A1 (MITSUBISHI ELECTRIC CORPORATION) 27 May 2022 (2022-05-27)	1-8
A	JP 2016-152246 A (TDK CORPORATION) 22 August 2016 (2016-08-22)	1-8
A	JP 1-164007 A (KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA) 28 June 1989 (1989-06-28)	1-8
A	JP 2022-54231 A (TOYOTA JIDOSHA KABUSHIKI KAISHA) 06 April 2022 (2022-04-06)	1-8
A	JP 2015-153813 A (TOYOTA JIDOSHA KABUSHIKI KAISHA) 24 August 2015 (2015-08-24)	1-8
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search <b>14 November 2023</b>		Date of mailing of the international search report <b>28 November 2023</b>
Name and mailing address of the ISA/JP <b>Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan</b>		Authorized officer  Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**  
**Information on patent family members**

International application No.

**PCT/JP2023/033579**

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
WO	2023/012929	A1	09 February 2023	(Family: none)	
WO	2021/205580	A1	14 October 2021	US 2023/0079836	A1
				KR 10-2022-0144858	A
				CN 115398574	A
WO	2022/107221	A1	27 May 2022	KR 10-2023-0068424	A
				CN 116391243	A
JP	2016-152246	A	22 August 2016	US 2016/0240293	A1
				DE 102016001717	A1
				CN 105895287	A
JP	1-164007	A	28 June 1989	(Family: none)	
JP	2022-54231	A	06 April 2022	US 2022/0102033	A1
				CN 114255949	A
JP	2015-153813	A	24 August 2015	US 2015/0228386	A1
				EP 2908319	A1
				CN 104835641	A
				KR 10-2015-0095211	A

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） H01F 1/057(2006.01)i; H01F 41/02(2006.01)i FI: H01F1/057 170; H01F41/02 G		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） H01F1/057; H01F41/02 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922 - 1996年 日本国公開実用新案公報 1971 - 2023年 日本国実用新案登録公報 1996 - 2023年 日本国登録実用新案公報 1994 - 2023年		
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	WO 2023/012929 A1（三菱電機株式会社）09.02.2023（2023 - 02 - 09）	1-8
A	WO 2021/205580 A1（三菱電機株式会社）14.10.2021（2021 - 10 - 14）	1-8
A	WO 2022/107221 A1（三菱電機株式会社）27.05.2022（2022 - 05 - 27）	1-8
A	JP 2016-152246 A（TDK株式会社）22.08.2016（2016 - 08 - 22）	1-8
A	JP 1-164007 A（株式会社東芝）28.06.1989（1989 - 06 - 28）	1-8
A	JP 2022-54231 A（トヨタ自動車株式会社）06.04.2022（2022 - 04 - 06）	1-8
A	JP 2015-153813 A（トヨタ自動車株式会社）24.08.2015（2015 - 08 - 24）	1-8
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日	14.11.2023	国際調査報告の発送日 28.11.2023
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官）  後藤 嘉宏 5D 3660  電話番号 03-3581-1101 内線 3551	

国際調査報告  
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2023/033579

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
WO 2023/012929 A1	09.02.2023	(ファミリーなし)	
WO 2021/205580 A1	14.10.2021	US 2023/0079836 A1 KR 10-2022-0144858 A CN 115398574 A	
WO 2022/107221 A1	27.05.2022	KR 10-2023-0068424 A CN 116391243 A	
JP 2016-152246 A	22.08.2016	US 2016/0240293 A1 DE 102016001717 A1 CN 105895287 A	
JP 1-164007 A	28.06.1989	(ファミリーなし)	
JP 2022-54231 A	06.04.2022	US 2022/0102033 A1 CN 114255949 A	
JP 2015-153813 A	24.08.2015	US 2015/0228386 A1 EP 2908319 A1 CN 104835641 A KR 10-2015-0095211 A	