(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
2022年6月16日(16.06.2022)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2022/123992 A1

(51) 国際特許分類:
B22F 9/04 (2006.01) *H01F 1/057* (2006.01)
C22C 38/00 (2006.01) *B22F 3/00* (2021.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2021/041377

(22) 国際出願日： 2021年11月10日(10.11.2021)

(25) 国際出願の言語： 日本語

(26) 国際公開の言語： 日本語

(30) 優先権データ：
特願 2020-204546 2020年12月9日(09.12.2020) JP

(71) 出願人: ＴＤＫ株式会社(**TDK CORPORATION**) [JP/JP]; 〒1036128 東京都中央区日本橋二丁目５番１号 Tokyo (JP).

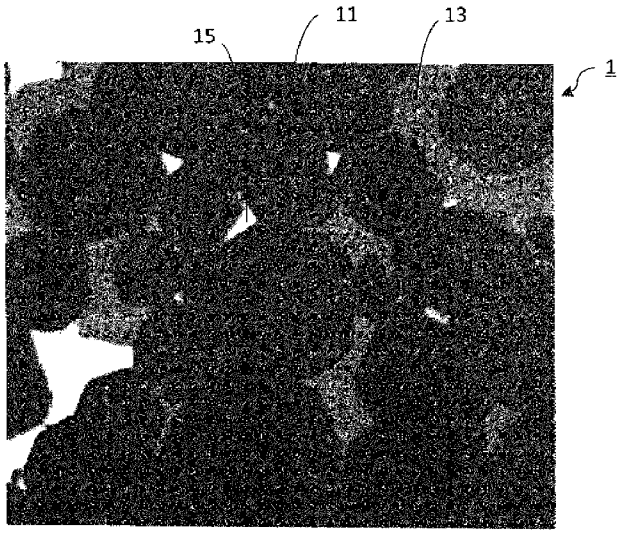
(72) 発明者: 工藤 光(**KUDO, Hikaru**); 〒1036128 東京都中央区日本橋二丁目５番１号 ＴＤＫ株式会社内 Tokyo (JP). 古田 敦(**KODA, Atsushi**); 〒1036128 東京都中央区日本橋二丁目５番１号 ＴＤＫ株式会社内 Tokyo (JP). 諏訪 孝裕(**SUWA, Takahiro**); 〒1036128 東京都中央区日本橋二丁目５番１号 ＴＤＫ株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 前田・鈴木国際特許業務法人(**MAEDA & SUZUKI**); 〒1010003 東京都千代田区一ツ橋２丁目５番５号 岩波書店一ツ橋ビル８階 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,

(54) **Title:** R-T-B-BASED PERMANENT MAGNET

(54) 発明の名称： Ｒ－Ｔ－Ｂ系永久磁石



(57) **Abstract:** [Problem] To obtain an inexpensive rare earth magnet that includes Ce, the rare earth magnet having high residual magnetic flux density (Br), coercive force (HcJ), and squareness ratio (Hk/HcJ), and also having high corrosion resistance. [Solution] An R-T-B-based permanent magnet including: R (rare earth element); T (Fe and Co); B (boron); and one or more selected from Al, Cu, Ga, and Zr. R includes Ce. The total R content is 31.3-34.0 mass% (inclusive), the Co content is 1.85-3.00 mass% (inclusive), the B content is 0.80-0.90 mass% (inclusive), the Al content is 0.03-0.90

WO 2022/123992 A1

［続葉有］

BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, 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, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, 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, IT, LT, LU, LV, MC, 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)）

mass% (inclusive), the Cu content is 0-0.25 mass% (inclusive), the Ga content is 0-0.10 mass% (inclusive), the Zr content is 0-0.60 mass% (inclusive), and the Fe content is substantially the remainder. The Ce content relative to R is 15-25 mass% (inclusive).

(57) 要約：【課題】Ｃｅを含む低コストな希土類磁石であって、残留磁束密度（Ｂｒ）、保磁力（ＨｃＪ）および角形比（Ｈｋ／ＨｃＪ）が高く、かつ、耐食性が高い希土類磁石を得る。【解決手段】Ｒ（希土類元素）と、Ｔ（ＦｅおよびＣｏ）と、Ｂ（ホウ素）と、さらにＡｌ、Ｃｕ、ＧａおよびＺｒから選択される１種以上と、を含むＲ－Ｔ－Ｂ系永久磁石である。ＲはＣｅを含む。Ｒの合計含有量が３１．３質量％以上３４．０質量％以下、Ｃｏの含有量が１．８５質量％以上３．００質量％以下、Ｂの含有量が０．８０質量％以上０．９０質量％以下、ＡｌのＣ含有量が０．０３質量％以上０．９０質量％以下、Ｃｕの含有量が０質量％以上０．２５質量％以下、Ｇａの含有量が０質量％以上０．１０質量％以下、Ｚｒの含有量が０質量％以上０．６０質量％以下、Ｆｅの含有量が実質的な残部である。Ｒに対するＣｅの含有量が１５質量％以上２５質量％以下である。

明　細　書

発明の名称 ： Ｒ－Ｔ－Ｂ系永久磁石

技術分野

[0001]　本発明は、Ｒ－Ｔ－Ｂ系永久磁石に関する。

背景技術

[0002]　特許文献１には、ＲとしてＣｅを含むＲ－Ｔ－Ｂ系永久磁石であって、Ｒ－Ｔ相を所定の範囲内で含む磁石が記載されている。上記の特徴により、抗折強度が向上したＲ－Ｔ－Ｂ系永久磁石を得ることができる。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開２０１８－１７４３２３号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004]　一般的に、希土類元素の中ではＣｅのコストが低い。そのため、Ｃｅを用いて十分な磁気特性を有する希土類磁石を得ることが求められている。

[0005]　本発明は、Ｃｅを含む低コストな希土類磁石であって、残留磁束密度（Ｂｒ）、保磁力（ＨｃＪ）および角形比（Ｈｋ／ＨｃＪ）が高く、かつ、耐食性が高い希土類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

[0006]　上記の目的を達成するために、本発明に係るＲ－Ｔ－Ｂ系永久磁石は、

Ｒ（希土類元素）と、Ｔ（ＦｅおよびＣｏ）と、Ｂ（ホウ素）と、さらにＡｌ、Ｃｕ、ＧａおよびＺｒから選択される１種以上と、を含むＲ－Ｔ－Ｂ系永久磁石であって、

ＲはＣｅを含み、

Ｒの合計含有量が３１．３質量％以上３４．０質量％以下、

Ｃｏの含有量が１．８５質量％以上３．００質量％以下、

Ｂの含有量が０．８０質量％以上０．９０質量％以下、

Ａｌの含有量が０．０３質量％以上０．９０質量％以下、

Ｃｕの含有量が０質量％以上０．２５質量％以下、

Ｇａの含有量が０質量％以上０．１０質量％以下、

Ｚｒの含有量が０質量％以上０．６０質量％以下、

Ｆｅの含有量が実質的な残部であり、

Ｒに対するＣｅの含有量が１５質量％以上２５質量％以下である。

[0007] $R_2T_{14}B$化合物からなる主相粒子と、粒界と、を含んでもよく、前記粒界にＲ－Ｔ相が含まれていてもよい。

[0008] 前記Ｒ－Ｔ相のＲに対するＣｅの含有量は前記主相粒子よりも多くてもよい。

[0009] 重希土類元素の合計含有量が０質量％以上０．１０質量％以下であってもよい。

[0010] Ｃｏの含有量が１．８５質量％以上２．０９質量％以下であってもよい。

図面の簡単な説明

[0011] [図1]実施例１のＳＥＭ画像である。

[図2]各実験例の磁気特性をプロットしたグラフである。

発明を実施するための形態

[0012] 以下、本発明を、実施形態に基づき説明する。本発明のＲ－Ｔ－Ｂ系永久磁石は、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石とすることができる。

[0013] （組成）

Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の組成について説明する。Ｒは希土類元素である。Ｒはセリウム（Ｃｅ）を含む。ＲがＣｅを含むことで、原料コストが低下する。また、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の原料コストおよびＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の磁気特性を好適に制御するため、Ｒとしてネオジム（Ｎｄ）およびプラセオジム（Ｐｒ）から選択される１種以上を含むことが好ましい。

[0014] Ｔは、ＦｅおよびＣｏである。Ｂはホウ素である。

[0015] さらに、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石は、アルミニウム（Ａｌ）、銅（Ｃｕ）、ガリウム（Ｇａ）およびＺｒ（ジルコニウム）から選択される１種以上を含

む。２種以上を含んでもよい。

[0016] 以下、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石における各元素の含有量について説明する。なお、以下に示す各元素の含有量は、特に記載が無い限り、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石全体を１００質量％とした場合の含有量である。

[0017] Ｒの合計含有量は、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石全体を１００質量％として、３１．３質量％以上３４．０質量％以下である。３２．０質量％以上３４．０質量％以下であってもよい。Ｒの合計含有量が少なすぎるとＨｃＪが低下する。Ｒの合計含有量が多すぎるとＢｒが低下する。

[0018] Ｂの含有量は、０．８０質量％以上０．９０質量％以下である。０．８０質量％以上０．８９質量％以下であってもよく、０．８０質量％以上０．８６質量％以下であってもよい。Ｂの含有量が少なすぎるとＨｋ／ＨｃＪが低下する。Ｂの含有量が多すぎるとＨｃＪが低下する。Ｂの含有量が少なすぎるとＨｋ／ＨｃＪが低下するのは、異相である２－１７相が粒界に形成され、Ｈｋが低下するためである。

[0019] Ｃｏの含有量は１．８５質量％以上３．００質量％以下である。１．８５質量％以上２．８０質量％以下であってもよく、１．８５質量％以上２．４０質量％以下であってもよい。また、Ｃｏの含有量は１．９１質量％以上であってもよく、２．００質量％以上であってもよい。さらに、Ｃｏの含有量は１．８５質量％以上２．０９質量％以下であってもよく、１．９１質量％以上２．０９質量％以下であってもよく、１．９１質量％以上２．００質量％以下であってもよい。Ｃｏの含有量が少なすぎると耐食性が低下する。Ｃｏの含有量が多すぎるとＨｃＪが低下する。

[0020] Ｇａの含有量は０質量％以上０．１０質量％以下である。すなわち、Ｇａを含まなくてもよい。Ｇａの含有量が少ないほど磁気特性および製造安定性が向上しやすくなる。Ｇａの含有量が多すぎると磁気特性、特にＨｃＪが低下する。

[0021] Ａｌの含有量は０．０３質量％以上０．９０質量％以下である。０．３０質量％以上０．９０質量％以下であってもよい。Ａｌの含有量が少なすぎる

とＨｃＪが低下する。Ａｌの含有量が多すぎるとＢｒが低下する。

[0022] Ｃｕの含有量は０質量％以上０．２５質量％以下である。すなわち、Ｃｕを含まなくてもよい。Ｃｕの含有量は０質量％以上０．１０質量％以下であってもよい。Ｃｕの含有量が多すぎるとＨｃＪが低下する。

[0023] Ｚｒの含有量は０質量％以上０．６０質量％以下である。すなわち、Ｚｒを含まなくてもよい。０．４０質量％以上０．６０質量％以下であってもよい。Ｚｒの含有量が少ないほど異常粒成長が発生しやすくなる。そして、異常粒成長が発生することによりＨｋ／ＨｃＪが低下する。Ｚｒの含有量が多すぎる場合には、異相である２－１７相が粒界に形成され、Ｈｋ／ＨｃＪが低下する。

[0024] Ｒの合計含有量（ＴＲＥ）に対するＣｅの含有量（Ｃｅ／ＴＲＥ）は１５質量％以上２５質量％以下である。１６質量％以上２４質量％以下であってもよい。Ｃｅ／ＴＲＥが小さすぎる場合には、原料コストが十分に低下しない。Ｃｅが他の希土類元素よりも低価格であるメリットが希土類元素を含む原料金属の種類を増やすことにより製造工程が煩雑になるデメリットに相殺されてしまうためである。Ｃｅ／ＴＲＥが大きすぎる場合には、ＨｃＪが低下する。

[0025] Ｒとして含まれる重希土類元素の合計含有量は０質量％以上０．１０質量％以下であってもよい。重希土類元素の含有量が多いほどＨｃＪが上昇しやすくなるが高コストとなる。また、重希土類元素の含有量が多いほどＢｒが低下しやすくなる。さらに、重希土類元素は後述する主相１１よりもＲ－Ｔ相１３に入りやすい。その結果、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石が好適な磁気特性になりにくい微細構造となる。重希土類元素とはＧｄ，Ｔｂ，Ｄｙ，Ｈｏ，Ｅｒ，Ｔｍ，Ｙｂ，Ｌｕのことをいう。

[0026] また、Ｒとしてイットリウム（Ｙ）およびランタン（Ｌａ）を実質的に含まないことが好ましい。ＹおよびＬａを実質的に含まないとは、Ｒに対するＹの含有量およびＲに対するＬａの含有量が合計で０．５質量％以下であるという意味である。ＹおよびＬａを実質的に含む場合には、後述するＲ－Ｔ

相が形成されにくくなり、そして、Ｒ－Ｔ相によるＨｃＪの向上効果が得られにくくなる。さらに、Ｙを含む場合には主相粒子の異方性磁界も低下しやすくなる。Ｌａを含む場合には主相粒子の異方性磁界が低下しやすくなる。

[0027] ＦｅはＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の構成要素における実質的な残部である。Ｆｅが実質的な残部であるとは、Ｒ，Ｂ，Ｃｏ，Ｇａ，Ａｌ，ＣｕおよびＺｒからなる群以外に含まれる元素がＦｅおよび不可避的不純物のみであるという意味である。そして、不可避不純物の含有量がＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石に対して合計で０．５質量％以下（０を含む）であってもよい。

[0028] また、Ｃｕを含む場合において、Ｃｕの含有量は０．０５質量％付近、具体的には、０．０２質量％以上０．０８質量％以下であることが好ましい。他の元素の含有量が上記の範囲内であり、かつ、Ｃｕを０．０５％付近の含有量で含む場合には、熱処理時におけるＲリッチ相の濡れ性が改善する。その結果、Ｒリッチ相による主相粒子の被覆率が高くなり、主相粒子同士の間の磁気分断が促進され、ＨｃＪが向上する。しかし、Ｃｕの添加量が少なすぎる場合にも多すぎる場合にも濡れ性は低下し、ＨｃＪも低下する。

[0029] （微細構造）

以下、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石１について、図１を用いて説明する。なお、図１は後述する実施例１の断面を電界放射型走査型電子顕微鏡（ＦＥ－ＳＥＭ）で観察して得られた反射電子像である。ＦＥ－ＳＥＭで観察して得られた反射電子像のことを単にＳＥＭ画像と呼ぶ場合がある。

[0030] Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石１の一つの断面をＳＥＭで観察すると、図１に示すように主相粒子１１、および、粒界に存在する複数種の粒界相が見える。そして、複数種の粒界相は、それぞれ組成に応じた色の濃淡や結晶系に応じた形状を有する。

[0031] 例えば、ＦＥ－ＳＥＭに付属したエネルギー分散型Ｘ線分光器（ＥＤＳ）、電子線マイクロアナライザ（ＥＰＭＡ）、透過電子顕微鏡（ＴＥＭ）等を用いて各粒界相を点分析し組成を明らかにすることで、それらがどのような粒界相であるかを特定することができる。

[0032] さらに各粒界相の結晶構造を透過電子顕微鏡（ＴＥＭ）により確認してもよい。ＴＥＭにより各粒界相の結晶構造を確認することで、各粒界相をさらに明確に特定することができる。

[0033] Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石１は、図１のＳＥＭ画像に示すように、主相粒子１１および主相粒子１１の間に存在する粒界を含む。主相粒子１１は、$R_2T_{14}B$化合物からなる。$R_2T_{14}B$化合物は、$R_2T_{14}B$型の正方晶からなる結晶構造を有する化合物である。主相粒子１１はＳＥＭ画像では黒色である。主相粒子１１の大きさには特に制限はないが、円相当径が概ね１．０μｍ～１０．０μｍである。

[0034] 粒界は、多粒子粒界や二粒子粒界を含む。多粒子粒界とは３つ以上の主相粒子に囲まれた粒界であり、二粒子粒界とは隣り合う２つの主相粒子の間に存在する粒界である。

[0035] 粒界は、少なくとも２種類の粒界相を含む。図１では、Ｒ－Ｔ相１３、および、Ｒリッチ相１５を含む。なお、主相粒子１１と、Ｒ－Ｔ相１３と、Ｒリッチ相１５と、でＳＥＭ画像での明るさを比較すると、主相粒子１１が最も暗く、Ｒリッチ相１５が最も明るい。

[0036] Ｒ－Ｔ相１３は、ＲとＴとの含有比率が原子数比で概ね１：２である。具体的には、Ｒの含有量が２０．０ａｔ％以上４０．０ａｔ％以下であり、Ｔの含有量が５５．０ａｔ％以上８０．０ａｔ％以下である。Ｒの含有量が２４．０ａｔ％以上３２．０ａｔ％以下であってもよく、Ｔの含有量が６１．０ａｔ％以上７５．０ａｔ％以下であってもよい。そして、Ｒ－Ｔ相１３に含まれるＲ、Ｔ以外の元素の含有量が合計１０．０ａｔ％以下である。Ｒ－Ｔ相１３に含まれるＲ、Ｔ以外の元素の含有量が合計０．５ａｔ％以上８．０ａｔ％以下であってもよい。なお、Ｒ、ＴおよびＲ、Ｔ以外の元素の含有量は、酸素（Ｏ）、炭素（Ｃ）および窒素（Ｎ）を除いた含有量である。

[0037] Ｒリッチ相１５は、Ｒの含有量が４０．０ａｔ％以上であり、Ｔの含有量がＲ－Ｔ相１３よりも低い相を指す。Ｒの含有量が４７．０ａｔ％以上であってもよい。Ｒの含有量には特に上限はないが、Ｒの含有量が６８．０ａｔ

％以下であってもよい。Ｔの含有量が５５．０ａｔ％以下であってもよく、５０．０ａｔ％以下であってもよい。Ｔの含有量には特に下限はないが、Ｔの含有量が３１．０ａｔ％以上であってもよい。なお、ＲおよびＴの含有量は、Ｏ、ＣおよびＮを除いた含有量である。

[0038] 本発明者らは、低コストであるがＮｄ、Ｐｒと比べてＨｃＪを低下させる希土類元素であるＣｅを用いたＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石において、磁石組成を上記の範囲内とすることにより、Ｂｒ、ＨｃＪ、Ｈｋ／ＨｃＪ、耐食性がいずれも高い磁石が得られることを見出した。

[0039] Ｒリッチ相１５は主相粒子１１同士の間の磁気分断、および、主相粒子１１とＲ－Ｔ相１３との間の磁気分断を促進させる。その結果、Ｒリッチ相１５を含むことでＨｃＪを向上させることができる。さらに、磁石組成を上記の範囲内とすることにより、時効処理時における主相粒子１１とＲリッチ相１５との濡れ性が改善され、主相粒子１１のＲリッチ相１５による被覆率が向上する。

[0040] 磁石組成を上記の範囲内とすることにより、Ｒ－Ｔ相１３は主相粒子１１よりもＲに対するＣｅの含有量が大きくなりやすい。Ｒ－Ｔ相１３が形成される際に主相粒子１１からＣｅを排出させるためである。その結果、主相粒子１１におけるＣｅ以外のＲ、具体的にはＮｄの含有量が高くなる。そして、主相粒子１１における異方性磁界が高くなる。さらに、Ｒ－Ｔ相１３自身が厚い軟磁性粒界として磁気分断に寄与する。

[0041] 磁石組成が上記の範囲内である場合には、上記の磁気分断を促進させる効果と、上記の主相粒子１１からＣｅを排出させる効果と、が両立する。その結果、高いＨｃＪを有するＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石になる。

[0042] 粒界に対するＲ－Ｔ相１３の面積比率には特に制限はない。例えば、０．６０以上０．８５以下であってもよい。

[0043] 粒界に対するＲリッチ相１５の面積比率には特に制限はないが、粒界におけるＲ－Ｔ相１３以外の部分がＲリッチ相１５であることが好ましい。具体的には、粒界に対するＲリッチ相１５およびＲ－Ｔ相１３以外の相の面積割

合が、１０．０％以下（０％を含む）であることが好ましい。

[0044] 上記の面積比率を算出するためのＳＥＭ画像の観察範囲の面積には特に制限はないが、上記の面積比率を算出するために十分に広い範囲とする。例えば観察範囲の面積は０．０１ｍｍ^{2}以上としてもよい。

[0045] （製造方法）

以下、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石を製造する方法の一例について説明する。Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石を製造する方法は、以下の工程を有する。

[0046] （ａ）Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石用合金（原料合金）を作製する合金準備工程

（ｂ）原料合金を粉砕する粉砕工程

（ｃ）得られた合金粉末を成形する成形工程

（ｄ）成形体を焼結し、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石を得る焼結工程

（ｅ）Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石を時効処理する時効処理工程

（ｆ）Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石を加工する加工工程

（ｇ）Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の粒界に重希土類元素を拡散させる粒界拡散工程

（ｈ）Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石に表面処理する表面処理工程

[0047] ［合金準備工程］

Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石用合金を準備する（合金準備工程）。以下、合金準備方法の一例としてストリップキャスティング法について説明するが、合金準備方法はストリップキャスティング法に限定されない。

[0048] Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の組成に対応する原料金属を準備し、真空またはアルゴン（Ａｒ）ガスなどの不活性ガス雰囲気中で準備した原料金属を溶解する。その後、溶解した原料金属を鋳造することによってＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の原料となる原料合金を作製する。なお、以下の記載では、１合金法について説明するが、第１合金と第２合金との２合金を混合して原料粉末を作製する２合金法でもよい。

[0049] 原料金属の種類には特に制限はない。例えば、希土類金属、純鉄、純コバルト、さらには、フェロボロン（ＦｅＢ）等の化合物、希土類合金等の合金

を使用することができる。原料金属を鋳造する鋳造方法には特に制限はない。例えばインゴット鋳造法やストリップキャスト法やブックモールド法や遠心鋳造法などが挙げられる。得られた原料合金は、凝固偏析がある場合は必要に応じて均質化処理（溶体化処理）を行ってもよい。

[0050] ［粉砕工程］

原料合金を作製した後、原料合金を粉砕する（粉砕工程）。粉砕工程は、粒径が数百μｍ～数ｍｍ程度になるまで粉砕する粗粉砕工程と、粒径が数μｍ程度になるまで微粉砕する微粉砕工程との２段階で行ってもよいが、微粉砕工程のみの１段階で行ってもよい。

[0051] （粗粉砕工程）

原料合金を粒径が数百μｍ～数ｍｍ程度になるまで粗粉砕する（粗粉砕工程）。これにより、原料合金の粗粉砕粉末を得る。粗粉砕は、例えば原料合金に水素を吸蔵させた後、異なる相間の水素吸蔵量の相違に基づいて水素を放出させ、脱水素を行なうことで自己崩壊的な粉砕を生じさせること（水素吸蔵粉砕）によって行うことができる。脱水素の条件には特に制限はないが、例えば３００～６５０℃、Ａｒフロー中または真空中で脱水素を行う。

[0052] 粗粉砕の方法は、上記の水素吸蔵粉砕に限定されない。例えば、不活性ガス雰囲気中にて、スタンプミル、ジョークラッシャー、ブラウンミル等の粗粉砕機を用いて粗粉砕を行ってもよい。

[0053] 高い磁気特性を有するＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石を得るために、粗粉砕工程から後述する焼結工程までの各工程の雰囲気は、低酸素濃度の雰囲気とすることが好ましい。酸素濃度は、各製造工程における雰囲気の制御等により調節される。各製造工程の酸素濃度が高いと原料合金を粉砕して得られる合金粉末中の希土類元素が酸化してＲ酸化物が生成されてしまう。Ｒ酸化物は、焼結中に還元されず、Ｒ酸化物の形でそのまま粒界に析出する。その結果、得られるＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の保磁力ＨｃＪが低下しやすくなる。そのため、例えば、各工程（微粉砕工程、成形工程）は酸素濃度を１００ｐｐｍ以下の雰囲気で実施することが好ましい。

[0054] （微粉砕工程）

原料合金を粗粉砕した後、得られた原料合金の粗粉砕粉末を平均粒子径が数μｍ程度になるまで微粉砕する（微粉砕工程）。これにより、原料合金の微粉砕粉末を得ることができる。微粉砕粉末に含まれる粒子のＤ５０には特に制限はない。例えば、Ｄ５０が１．０μｍ以上１０．０μｍ以下であってもよい。

[0055] 微粉砕は、粉砕時間等の条件を適宜調整しながら、例えば気流式粉砕機（ジェットミル）等の微粉砕機を用いて粗粉砕した粉末の更なる粉砕を行なうことで実施される。以下、ジェットミルについて説明する。ジェットミルは、高圧の不活性ガス（たとえば、Ｈｅガス、N_2ガス、Ａｒガス）を狭いノズルより開放して高速のガス流を発生させ、この高速のガス流により原料合金の粗粉砕粉末を加速して原料合金の粗粉砕粉末同士の衝突やターゲットまたは容器壁との衝突を発生させて粉砕する微粉砕機である。

[0056] 原料合金の粗粉砕粉末を微粉砕する際には潤滑剤、例えば、有機物潤滑剤や固体潤滑剤を添加してもよい。有機物潤滑剤としては、例えばオレイン酸アミド、ラウリン酸アミド、ステアリン酸亜鉛などが挙げられる。固体潤滑剤としては、例えばグラファイトなどが挙げられる。潤滑剤を添加することで、成形工程において磁場を印加した際に配向が生じやすい微粉砕粉末を得ることができる。有機物潤滑剤および固体潤滑剤は、いずれか一方のみを使用してもよいが、両方を混合して使用してもよい。

[0057] ［成形工程］

微粉砕粉末を目的の形状に成形する（成形工程）。成形工程では、微粉砕粉末を、磁場中に配置された金型内に充填して加圧することによって、微粉砕粉末を成形し、成形体を得る。このとき、磁場を印加しながら成形することで、微粉砕粉末の結晶軸を特定の方向に配向させた状態で成形することができる。得られる成形体は、特定方向に配向するので、より磁性の強い異方性を有するＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石が得られる。成形時に、成形助剤を添加してもよい。成形助剤の種類には特に制限はない。上記の潤滑剤を用いてもよ

い。

[0058] 加圧時の圧力は、例えば３０ＭＰａ以上３００ＭＰａ以下としてもよい。印加する磁場は、例えば１．０Ｔ以上５．０Ｔ以下としてもよい。印加する磁場は静磁場に限定されず、パルス状磁場とすることもできる。また、静磁場とパルス状磁場とを併用することもできる。

[0059] なお、成形方法としては、上記のように微粉砕粉末をそのまま成形する乾式成形のほか、微粉砕粉末を油等の溶媒に分散させたスラリーを成形する湿式成形を適用することもできる。

[0060] 微粉砕粉末を成形して得られる成形体の形状は特に限定されるものではなく、例えば直方体、平板状、柱状、リング状、Ｃ型等、所望とするＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の形状に応じた形状とすることができる。

[0061] ［焼結工程］

得られた成形体を真空または不活性ガス雰囲気中で焼結し、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石を得る（焼結工程）。焼結温度は、組成、粉砕方法、粒度と粒度分布の違い等、諸条件により調整する必要がある。焼結温度には特に制限はないが、例えば９５０℃以上１１００℃以下としてもよい。焼結時間には特に制限はないが、例えば２時間以上１０時間以下としてもよい。焼結時の雰囲気には特に制限はない。例えば、不活性ガス雰囲気としてもよく、１００Ｐａ未満の真空雰囲気としてもよい。

[0062] 焼結温度が高いほど焼結が十分に進行しやすくなりＢｒ、ＨｃＪが向上しやすくなる。しかし、焼結温度が高いほど異常粒成長が生じやすくなる。異常粒成長が生じるとＨｋ／ＨｃＪが低下しやすくなる。焼結温度が低いほど焼結が十分に進行しにくくなりＢｒ、ＨｃＪが向上しにくくなる。しかし、焼結温度が低いほど異常粒成長が生じにくくなりＨｋ／ＨｃＪが低下しにくくなる。

[0063] ［時効処理工程］

成形体を焼結した後、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石を時効処理する（時効処理工程）。焼結後、得られたＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石を焼結時よりも低い温度でＲ

－Ｔ－Ｂ系焼結磁石に時効処理を施す。

[0064] 時効処理では、時効温度は４００℃以上６５０℃以下、時効時間は１０分以上３００分以下としてもよい。

[0065] 時効処理時の雰囲気には特に制限はない。例えば大気圧以上の圧力の不活性ガス雰囲気（例えば、Ｈｅガス、Ａｒガス）としてもよい。また、時効処理工程は後述する加工工程の後に行ってもよい。

[0066] ［加工工程］

得られたＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石は、必要に応じて所望の形状に加工してもよい（加工工程）。加工方法は、例えば切断、研削などの形状加工や、バレル研磨などの面取り加工などが挙げられる。

[0067] ［粒界拡散工程］

加工されたＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の粒界に対して、さらに重希土類元素を拡散させてもよい（粒界拡散工程）。粒界拡散の方法には特に制限はない。例えば、塗布または蒸着等により重希土類元素を含む化合物をＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の表面に付着させた後に熱処理を行うことで実施してもよい。また、重希土類元素の蒸気を含む雰囲気中でＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石に対して熱処理を行うことで実施してもよい。粒界拡散により、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石のＨｃＪをさらに向上させることができる。

[0068] ［表面処理工程］

以上の工程により得られたＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石は、めっきや樹脂被膜や酸化処理、化成処理などの表面処理を施してもよい（表面処理工程）。これにより、耐食性をさらに向上させることができる。

[0069] なお、上記の製造方法では、加工工程、粒界拡散工程、表面処理工程を行っているが、これらの工程は必ずしも行う必要はない。

[0070] 以上のようにして得られるＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石は、Ｃｅを含みながらＢｒ、ＨｃＪ、Ｈｋ／ＨｃＪおよび耐食性が良好なＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石となる。

[0071] 本発明は、上記の実施形態に限定されるものではなく、本発明の範囲内で

種々に改変することができる。例えば、本発明に係る永久磁石は熱間加工によって製造されていてもよい。

[0072] 本発明のＲ－Ｔ－Ｂ系永久磁石は、一般的なＲ－Ｔ－Ｂ系永久磁石の用途に用いることができる。例えば、自動車の回転機などに用いることができる。

実施例

[0073] 以下、実施例により発明をより詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

[0074] （合金準備工程）

原料合金として、所定の元素を含む原料金属を準備した。原料金属としては、それぞれ純度９９．９％であるＮｄ、Ｐｒ、Ｃｅ、Ｆｅ、Ｃｏ、ＦｅＢ、Ａｌ、Ｃｕ、ＺｒおよびＧａを準備した。

[0075] 次に、これらの原料金属を、最終的に表１～表８に示す組成のＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石が得られるように秤量し、ストリップキャスティング法により薄板形状の原料合金を準備した。なお、表１～表８におけるＣｅ以外のＲはＮｄおよびＰｒであり、質量比でＮｄ：Ｐｒ＝８：２である。また、残部は実質的にＦｅのみである。

[0076] （粉砕工程）

合金準備工程により得られた原料合金を粉砕し、合金粉末を得た。粗粉砕と微粉砕との２段階で粉砕を行った。粗粉砕は、水素吸蔵粉砕により行った。原料合金に対して水素を６００℃で吸蔵させた後、Ａｒフロー中または真空中、６００℃で３時間、脱水素を行った。粗粉砕により、数百μｍ～数ｍｍ程度の粒径の合金粉末を得た。

[0077] 微粉砕は、粗粉砕で得られた合金粉末１００質量部に対して潤滑剤としてオレイン酸アミドを０．１質量部、添加し、混合した後にジェットミルを用いて高圧窒素ガス雰囲気中で行った。微粉砕は、合金粉末のＤ５０が３．５μｍ程度となるまで行った。

[0078] （成形工程）

粉砕工程により得られた混合粉末を磁場中で成形して成形体を得た。混合粉末を電磁石の間に配置された金型内に充填した後に、電磁石により磁場を印加しながら加圧して成形した。具体的には、混合粉末を２．２Ｔの磁場中、１１０ＭＰａの圧力で圧粉成形した。磁場を印加する方向はプレス方向と垂直な方向とした。

[0079] （焼結工程）

得られた成形体を焼結して焼結体を得た。特に記載がない場合、焼結温度を１０００℃、焼結時間を８時間として焼結体を得た。焼結時の雰囲気は真空雰囲気とした。

[0080] 実施例２８ａは焼結温度を９８０℃、実施例２８ｂおよび実施例２８ｃは焼結温度を９９０℃として焼結体を得た。

[0081] （時効工程）

得られた焼結体に時効処理を行いＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石を得た。時効処理は時効温度６００℃、時効時間１時間で行った。時効処理時の雰囲気はＡｒ雰囲気とした。

[0082] （評価）

各実施例および比較例において最終的に得られたＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の組成が表１～表９に示す組成となっていることは、蛍光Ｘ線分析法、誘導結合プラズマ質量分析法（ＩＣＰ法）、およびガス分析により組成分析することで確認した。

[0083] 各実施例および比較例のＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の磁気特性をＢ－Ｈトレーサーを用いて測定した。具体的には、Ｂｒ、ＨｃＪ、Ｈｋ／ＨｃＪを室温で測定した。結果を表１～表９に示す。Ｂｒは１２２０ｍＴ以上である場合を良好とした。ＨｃＪは１４４５ｋＡ／ｍを上回る場合を良好とし、１４５０ｋＡ／ｍ以上である場合をさらに良好とした。Ｈｋ／ＨｃＪは９５％以上であるか否かを評価した。表１～表９では、９５％以上である場合を可とし、９５％未満である場合を不可とした。

[0084] 各実施例および比較例のＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石に対し、耐食性試験を行っ

た。耐食性試験は、飽和蒸気圧下におけるＰＣＴ試験（プレッシャークッカー試験：Ｐｒｅｓｓｕｒｅ　Ｃｏｏｋｅｒ　Ｔｅｓｔ）により実施した。具体的には、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石を２気圧、１００％ＲＨの環境下に１０００時間おいて、試験前後での質量変化を測定した。Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の表面積あたりの質量減少が３ｍｇ／ｃｍ^{2}以下であるか否かを評価した。表１～表９では、３ｍｇ／ｃｍ^{2}以下である場合を可とし、３ｍｇ／ｃｍ^{2}を上回る場合を不可とした。

[0085]

[表1]

	Ce/TRE (質量%)	単位：質量%							Br	HcJ	Hk/HcJ	耐食性
		TRE	B	Co	Cu	Al	Ga	Zr	mT	kA/m		
実施例2	16	33.0	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	0.50	1261	1564	可	可
実施例3	18	33.0	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	0.50	1257	1545	可	可
実施例1	20	33.0	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	0.50	1256	1522	可	可
実施例4	22	33.0	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	0.50	1253	1506	可	可
実施例5	24	33.0	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	0.50	1250	1475	可	可
比較例1	*26*	33.0	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	0.50	1245	*1445*	可	可

[0086] [表2]

	Ce/TRE (質量%)	単位：質量% TRE	B	Co	Cu	Al	Ga	Zr	Br mT	HcJ kA/m	Hk/HcJ	耐食性
実施例6	20	32.0	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	0.50	1271	1460	可	可
実施例7	20	32.5	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	0.50	1263	1497	可	可
実施例1	20	33.0	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	0.50	1256	1522	可	可
実施例8	20	33.5	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	0.50	1250	1550	可	可
実施例9	20	34.0	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	0.50	1234	1577	可	可
比較例3	20	*34.5*	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	0.50	*1219*	1589	可	可

[0087] [表3]

	Ce/TRE (質量%)	単位:質量%							Br	HcJ	Hk/HcJ	耐食性
		TRE	B	Co	Cu	Al	Ga	Zr	mT	kA/m		
比較例4	20	33.0	*0.77*	2.00	0.05	0.50	0.00	0.50	1234	1520	*不可*	可
実施例10	20	33.0	0.80	2.00	0.05	0.50	0.00	0.50	1255	1522	可	可
実施例1	20	33.0	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	0.50	1256	1522	可	可
実施例11	20	33.0	0.86	2.00	0.05	0.50	0.00	0.50	1257	1510	可	可
実施例12	20	33.0	0.89	2.00	0.05	0.50	0.00	0.50	1260	1499	可	可
比較例5	20	33.0	*0.92*	2.00	0.05	0.50	0.00	0.50	1275	*1432*	可	可

[0088] [表4]

	Ce/TRE (質量%)	単位：質量%							Br	HcJ	Hk/HcJ	耐食性
		TRE	B	Co	Cu	Al	Ga	Zr	mT	kA/m		
実施例13	20	33.0	0.83	2.00	0.00	0.50	0.00	0.50	1257	1515	可	可
実施例1	20	33.0	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	0.50	1256	1522	可	可
実施例14	20	33.0	0.83	2.00	0.10	0.50	0.00	0.50	1255	1505	可	可
実施例15	20	33.0	0.83	2.00	0.15	0.50	0.00	0.50	1255	1491	可	可
実施例16	20	33.0	0.83	2.00	0.20	0.50	0.00	0.50	1255	1475	可	可
実施例17	20	33.0	0.83	2.00	0.25	0.50	0.00	0.50	1253	1457	可	可
比較例6	20	33.0	0.83	2.00	*0.30*	0.50	0.00	0.50	1251	*1445*	可	可

[0089] [表5]

	Ce/TRE (質量%)	単位：質量%							Br	HcJ	Hk/HcJ	耐食性
		TRE	B	Co	Cu	Al	Ga	Zr	mT	kA/m		
実施例18a	20	34.0	0.83	2.00	0.05	0.03	0.00	0.50	1262	1473	可	可
実施例18b	20	33.0	0.83	2.00	0.05	0.10	0.00	0.50	1290	1448	可	可
実施例18	20	33.0	0.83	2.00	0.05	0.30	0.00	0.50	1275	1491	可	可
実施例1	20	33.0	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	0.50	1256	1522	可	可
実施例19	20	33.0	0.83	2.00	0.05	0.70	0.00	0.50	1239	1532	可	可
実施例20	20	33.0	0.83	2.00	0.05	0.90	0.00	0.50	1221	1533	可	可
比較例8	20	33.0	0.83	2.00	0.05	*1.10*	0.00	0.50	*1203*	1530	可	可

[0090] [表6]

	Ce/ΣRE (質量%)	単位：質量%							Br	HcJ	Hk/HcJ	耐食性
		TRE	B	Co	Cu	Al	Ga	Zr	mT	kA/m		
実施例1	20	33.0	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	0.50	1256	1522	可	可
実施例21	20	33.0	0.83	2.00	0.05	0.50	0.05	0.50	1254	1499	可	可
実施例22	20	33.0	0.83	2.00	0.05	0.50	0.10	0.50	1250	1477	可	可
比較例9	20	33.0	0.83	2.00	0.05	0.50	*0.15*	0.50	1246	*1443*	可	可

[0091] [表7]

	Ce/TRE (質量%)	単位:質量%							Br	HcJ	Hk/HcJ	耐食性
		TRE	B	Co	Cu	Al	Ga	Zr	mT	kA/m		
比較例10	20	33.0	0.83	*1.60*	0.05	0.50	0.00	0.50	1254	1535	可	*不可*
実施例23	20	33.0	0.83	1.85	0.05	0.50	0.00	0.50	1254	1531	可	可
実施例24	20	33.0	0.83	1.91	0.05	0.50	0.00	0.50	1255	1527	可	可
実施例1	20	33.0	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	0.50	1256	1522	可	可
実施例25	20	33.0	0.83	2.09	0.05	0.50	0.00	0.50	1257	1505	可	可
実施例26	20	33.0	0.83	2.40	0.05	0.50	0.00	0.50	1259	1485	可	可
実施例27	20	33.0	0.83	2.80	0.05	0.50	0.00	0.50	1264	1453	可	可
比較例11	20	33.0	0.83	*3.20*	0.05	0.50	0.00	0.50	1270	*1412*	可	可

[0092] [表8]

	Ce/TRE (質量%)	単位：質量%							Br	HcJ	Hk/HcJ	耐食性
		TRE	B	Co	Cu	Al	Ga	Zr	mT	kA/m		
実施例28a	20	33.0	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	0.00	1244	1500	可	可
実施例28b	20	33.0	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	0.10	1250	1515	可	可
実施例28c	20	33.0	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	0.30	1254	1520	可	可
実施例28	20	33.0	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	0.40	1255	1524	可	可
実施例1	20	33.0	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	0.50	1256	1522	可	可
実施例29	20	33.0	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	0.60	1253	1522	可	可
比較例13	20	33.0	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	*0.70*	1253	1523	*不可*	可
参考例1	20	33.0	0.83	2.00	0.05	0.50	0.00	0.30	1256	1523	*不可*	可

[0093] [表9]

	Ce/TRE (質量%)	単位：質量%						Br	HcJ	Hk/HcJ	耐食性
		TRE	B	Co	Cu	Al	Ga	Zr	mT	kA/m		
比較例14	16	*31.0*	0.83	2.00	0.05	0.70	0.00	0.50	1273	*1420*	可	可
実施例30	16	31.3	0.83	2.00	0.05	0.70	0.00	0.50	1267	1451	可	可
実施例31	16	31.5	0.83	2.00	0.05	0.70	0.00	0.50	1262	1465	可	可

[0094] 表１～表９より、組成が上記の範囲内である各実施例はＢｒ、ＨｃＪ、Ｈｋ／ＨｃＪおよび耐食性が全て良好であった。これに対し、組成が上記の範囲外である各比較例は、Ｂｒ、ＨｃＪ、Ｈｋ／ＨｃＪおよび耐食性のうちいずれか一つ以上が良好ではなかった。

[0095] 特に、Ｂが少なすぎる表３の比較例４は異相、特に２－１７相が生じるためＨｋ／ＨｃＪが低下した。Ｃｏが少なすぎる表７の比較例１０は耐食性が低下した。Ｚｒが多すぎる表８の比較例１３は異相、特に２－１７相が生じるためにＨｋ／ＨｃＪが低下した。

[0096] 表８の実施例２８ｃおよび参考例１は焼結温度以外、同条件で焼結体を作製した実験例である。

[0097] 実施例２８ｃは、実施例２８等と比較してＺｒの含有量を小さくし、同時に焼結温度を低下させた実施例である。実施例２８ｃは、組成に応じて適切な焼結温度を選択したために異常粒成長が発生せずＨｋ／ＨｃＪが良好となった。

[0098] これに対し、参考例１は、実施例２８等と比較してＺｒの含有量を小さくしたが、同時に焼結温度を低下させなかった参考例である。参考例１は、組成に応じて適切な焼結温度を選択しなかったために異常粒成長が発生しＨｋ／ＨｃＪが低下した。

[0099] 図２は、全ての実施例、および、ＢｒまたはＨｃＪが良好ではない全ての比較例について、横軸がＨｃＪであり縦軸がＢｒであるグラフにプロットした図面である。図２からもＢｒを１２２０ｍＴ以上とし、ＨｃＪを１４４５ｋＡ／ｍより大きくし、その他の特性も良好とするためには、磁石組成を特定の範囲内とする必要があることがわかる。

[0100] また、全ての実施例について微細構造を確認し、$R_2T_{14}B$化合物からなる主相粒子と、粒界と、を含み、前記粒界にＲ－Ｔ相が含まれること、および、前記Ｒ－Ｔ相のＲに対するＣｅの含有量が前記主相粒子よりも多いことを確認した。

符号の説明

[0101] １・・・Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石

１１・・・主相粒子

１３・・・Ｒ－Ｔ相

１５・・・Ｒリッチ相

請求の範囲

[請求項1] Ｒ（希土類元素）と、Ｔ（ＦｅおよびＣｏ）と、Ｂ（ホウ素）と、さらにＡｌ、Ｃｕ、ＧａおよびＺｒから選択される１種以上と、を含むＲ－Ｔ－Ｂ系永久磁石であって、

ＲはＣｅを含み、

Ｒの合計含有量が３１．３質量％以上３４．０質量％以下、

Ｃｏの含有量が１．８５質量％以上３．００質量％以下、

Ｂの含有量が０．８０質量％以上０．９０質量％以下、

Ａｌの含有量が０．０３質量％以上０．９０質量％以下、

Ｃｕの含有量が０質量％以上０．２５質量％以下、

Ｇａの含有量が０質量％以上０．１０質量％以下、

Ｚｒの含有量が０質量％以上０．６０質量％以下、

Ｆｅの含有量が実質的な残部であり、

Ｒに対するＣｅの含有量が１５質量％以上２５質量％以下であるＲ－Ｔ－Ｂ系永久磁石。

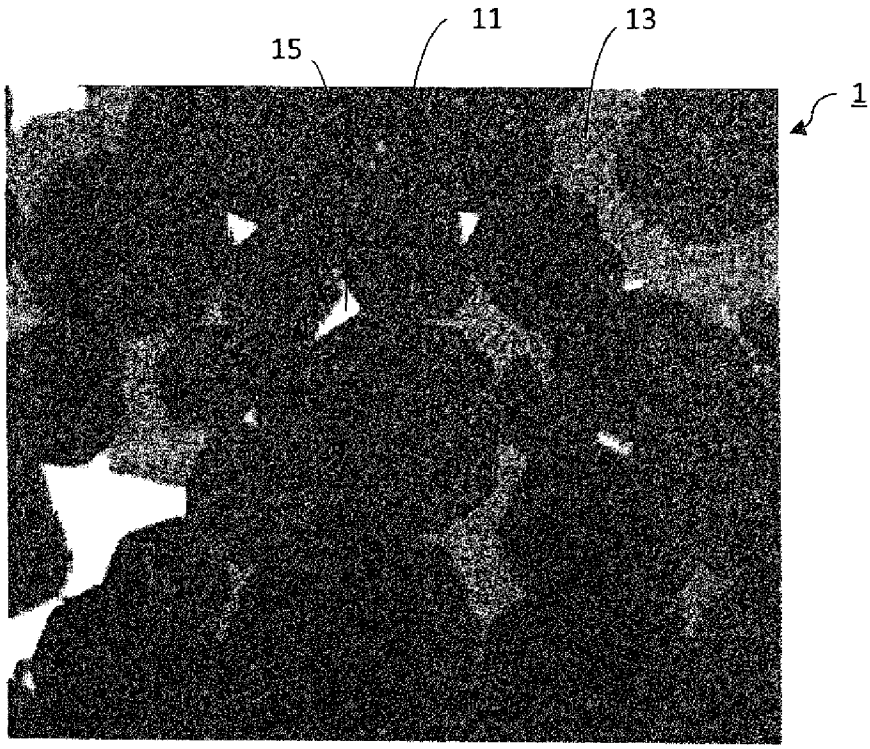
[請求項2] $R_2T_{14}B$化合物からなる主相粒子と、粒界と、を含み、前記粒界にＲ－Ｔ相が含まれる請求項１に記載のＲ－Ｔ－Ｂ系永久磁石。

[請求項3] 前記Ｒ－Ｔ相のＲに対するＣｅの含有量は前記主相粒子よりも多いことを特徴とする請求項２に記載のＲ－Ｔ－Ｂ系永久磁石。

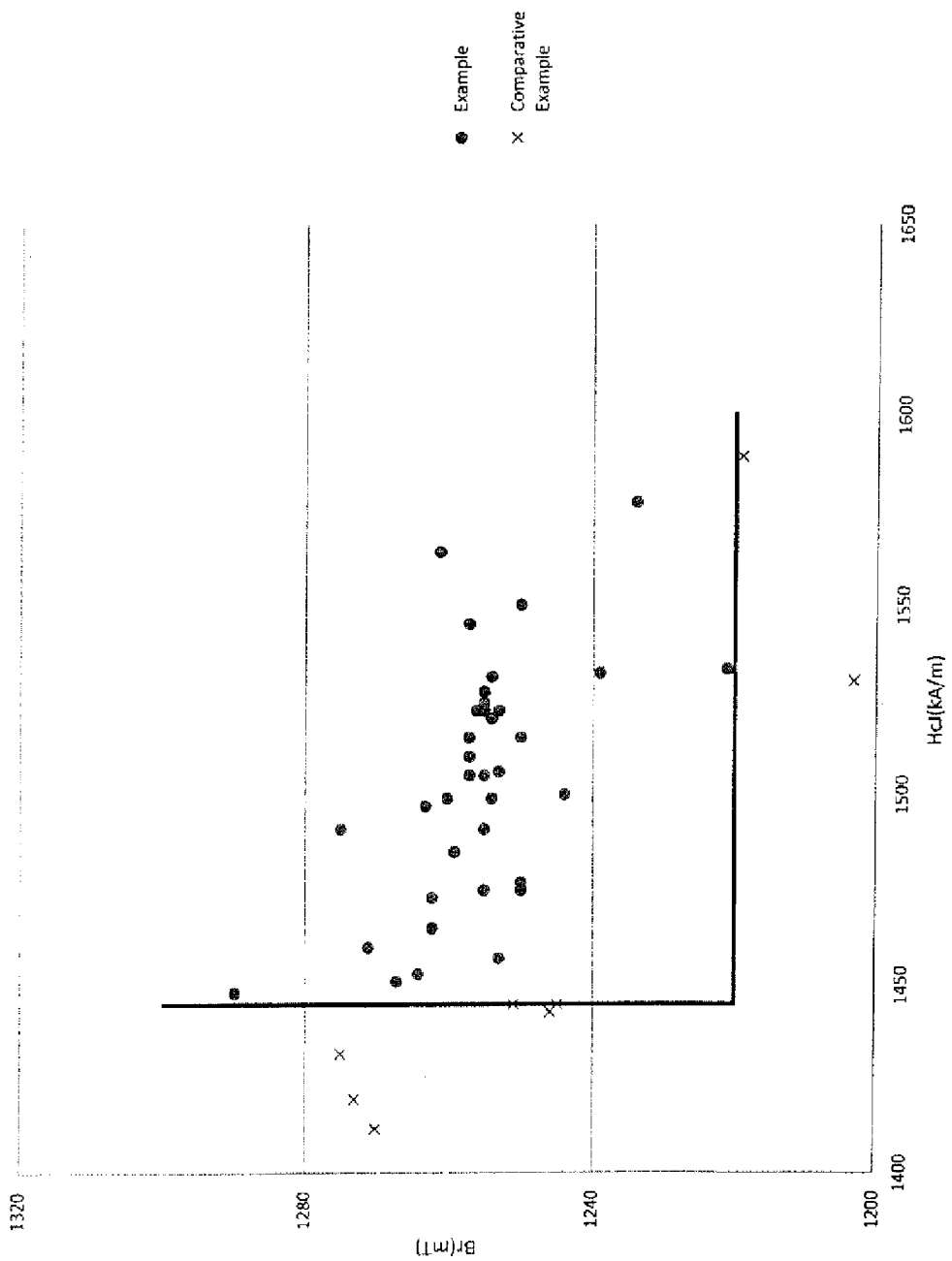
[請求項4] 重希土類元素の合計含有量が０質量％以上０．１０質量％以下である請求項１から３のいずれかに記載のＲ－Ｔ－Ｂ系永久磁石。

[請求項5] Ｃｏの含有量が１．８５質量％以上２．０９質量％以下である請求項１から４のいずれかに記載のＲ－Ｔ－Ｂ系永久磁石。

[図1]



[図2]


Example
Comparative Example
Br(mT)
1320
1280
1240
1200
HcJ(kA/m)
1400
1450
1500
1550
1600
1650

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2021/041377

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B22F 9/04(2006.01)i; ***C22C 38/00***(2006.01)i; ***H01F 1/057***(2006.01)i; ***B22F 3/00***(2021.01)i
FI: H01F1/057 170; C22C38/00 303D; C22C38/00 304; B22F9/04 C; B22F9/04 E; B22F3/00 F; B22F9/04 D

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

B22F9/04; C22C38/00; H01F1/057; B22F3/00

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 1971-2022
Registered utility model specifications of Japan 1996-2022
Published registered utility model applications of Japan 1994-2022

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2020-95992 A (TDK CORP) 18 June 2020 (2020-06-18) entire text, all drawings	1-5
A	JP 2020-95991 A (TDK CORP) 18 June 2020 (2020-06-18) entire text, all drawings	1-5

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☑ 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	Date of mailing of the international search report
21 January 2022	**01 February 2022**

Name and mailing address of the ISA/JP	Authorized officer
Japan Patent Office (ISA/JP) **3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915** **Japan**	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2021/041377

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2020-95992 A	18 June 2020	WO 2018/181592 A1 entire text, all drawings	
JP 2020-95991 A	18 June 2020	WO 2018/181580 A1 entire text, all drawings	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2021/041377

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

B22F 9/04(2006.01)i; C22C 38/00(2006.01)i; H01F 1/057(2006.01)i; B22F 3/00(2021.01)i
FI: H01F1/057 170; C22C38/00 303D; C22C38/00 304; B22F9/04 C; B22F9/04 E; B22F3/00 F; B22F9/04 D

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））

B22F9/04; C22C38/00; H01F1/057; B22F3/00

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	１９７１－２０２２年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２２年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２２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	JP 2020-95992 A (ＴＤＫ株式会社) 18.06.2020 (2020-06-18) 全文全図	1-5
A	JP 2020-95991 A (ＴＤＫ株式会社) 18.06.2020 (2020-06-18) 全文全図	1-5

☐ Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。

☑ 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	国際調査報告の発送日
21.01.2022	01.02.2022

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）
工藤　一光 5D 9274
電話番号 03-3581-1101 内線 3576

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/JP2021/041377

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2020-95992 A	18.06.2020	WO 2018/181592 A1 全文全図	
JP 2020-95991 A	18.06.2020	WO 2018/181580 A1 全文全図	