

(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
2017年9月21日(21.09.2017)



(10) 国際公開番号

WO 2017/159576 A1

- (51) 国際特許分類:
H01F 1/057 (2006.01) C22C 33/02 (2006.01)
B22F 1/00 (2006.01) C22C 38/00 (2006.01)
B22F 3/00 (2006.01) H01F 41/02 (2006.01)
B22F 3/24 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2017/009794
- (22) 国際出願日: 2017年3月10日(10.03.2017)
- (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 2016-054153 2016年3月17日(17.03.2016) JP
- (71) 出願人: 日立金属株式会社(HITACHI METALS, LTD.) [JP/JP]; 〒1088224 東京都港区港南一丁目2番70号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 石井 倫太郎(ISHII, Rintaro); 〒6180013 大阪府三島郡島本町江川2丁目15番17号 日立金属株式会社 磁性材料研究所内 Osaka (JP). 佐藤 鉄兵(SATO, Teppei); 〒6180013 大阪府三島郡島本町江川2丁目15番17号 日立

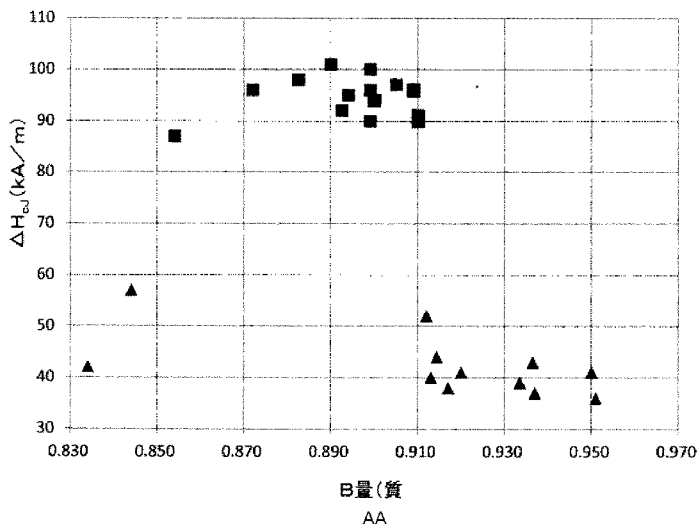
金属株式会社 磁性材料研究所内 Osaka (JP). 國吉 太(KUNIYOSHI, Futoshi); 〒6180013 大阪府三島郡島本町江川2丁目15番17号 日立金属株式会社 磁性材料研究所内 Osaka (JP).

- (74) 代理人: 鮫島 睦, 外(SAMEJIMA, Mutsumi et al.); 〒5300017 大阪府大阪市北区角田町8番1号梅田阪急ビルオフィスタワー青山特許事務所 Osaka (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, 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, 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, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, 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,

[続葉有]

(54) Title: METHOD FOR MANUFACTURING R-T-B BASED SINTERED MAGNET

(54) 発明の名称: R-T-B系焼結磁石の製造方法



AA Contained amount of B (mass%)

(57) Abstract: Provided is a method for manufacturing an R-T-B based sintered magnet that contains 28.5-33.0 mass% of R (R represents at least one type of rare-earth element, and includes Nd and/or Pr), 0.850-0.910 mass% of B, 0.2-0.7 mass% of Ga, 0.05-0.50 mass% of Cu, and 0.05-0.50 mass% of Al with the remainder being T (T represents Fe and Co, and at least 90 mass% of T is accounted for by Fe) and unavoidable impurities, and that satisfies formula (1) $14[B]/10.8 < [T]/55.85$, where [B] represents the contained amount of B in mass%, and [T] represents the contained amount of T in mass%, the method comprising: a step for preparing an alloy powder in which the particle size D_{50} and the particle size D_{99} satisfy formula (2) ($3.8 \mu\text{m} \leq D_{50} \leq 5.5 \mu\text{m}$) and formula (3) ($D_{99} \leq 10 \mu\text{m}$), respectively; a forming step for obtaining a compact by compressing the alloy powder; a sintering step for obtaining a sintered body by sintering the compact; and a heat treatment step for applying heat treatment to the sintered body.

(57) 要約: R: 28.5~33.0質量% (Rは希土類元素のうち少なくとも1種であり、NdおよびPrの少なくとも1種を含む)、B: 0.850~0.910質量%、Ga: 0.2~0.7質量%、Cu: 0.05~0.50質量%、およびA

l: 0.05~0.50質量%、を含有し、残部がT (TはFeとCoであり、Tの90質量%以上がFeである) および不可避免的不純物であり、式(1) $14[B]/10.8 < [T]/55.85$ ([B]は質量%で示すBの含有量であり、[T]は質量%で示すTの含有量である) を満足するR-T-B系焼結磁石の製造方法であって、粒径 D_{50} および粒径 D_{99} が式(2) ($3.8 \mu\text{m} \leq D_{50} \leq 5.5 \mu\text{m}$) および式(3) ($D_{99} \leq 10 \mu\text{m}$) を満足する合金粉末を準備する工程と、前記合金粉末を成形して成形体を得る成形工程と、前記成形体を焼結して焼結体を得る焼結工程と、前記焼結体に熱処理を施す熱処理工程と、を含む、R-T-B系焼結磁石の製造方法である。

WO 2017/159576 A1



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))

明 細 書

発明の名称： R－T－B系焼結磁石の製造方法

技術分野

[0001] 本開示は、R－T－B系焼結磁石の製造方法に関する。

背景技術

[0002] R－T－B系焼結磁石（Rは希土類元素のうち少なくとも一種であり、NdおよびPrの少なくとも一種を含む、Tは遷移金属元素のうち少なくとも一種でありFeを必ず含む）は、 $R_2T_{14}B$ 型結晶構造を有する化合物からなる主相と、この主相の粒界部分に位置する粒界相とから構成されており、永久磁石の中で最も高性能な磁石として知られている。

[0003] このため、ハードディスクドライブのボイスコイルモータ（VCM）、電気自動車（EV、HV、PHV）用モータ、産業機器用モータなどの各種モータや家電製品など多種多様な用途に用いられている。

[0004] このように用途が広がるにつれ、例えば電気自動車用モータは、 100°C ～ 160°C のような高温下に曝される場合があり、高温下においても安定した動作が要求されている。

[0005] しかし、従来のR－T－B系焼結磁石は、高温になると保磁力 H_c （以下、単に「 H_c 」と記載する場合がある）が低下し、不可逆熱減磁が起こるといった問題がある。電気自動車用モータにR－T－B系焼結磁石が使用される場合、高温下での使用により H_c が低下し、モータの安定した動作が得られない恐れがある。そのため、室温において高い H_c を有し、かつ高温においても高い H_c を有するR－T－B系焼結磁石が求められている。

[0006] 従来、室温における H_c 向上のために、R－T－B系焼結磁石に重希土類元素RH（主としてDy）を添加していたが、残留磁束密度 B_r （以下、単に「 B_r 」と記載する場合がある）が低下するという問題があった。さらに、Dyは、産出地が限定されている等の理由から、供給が不安定であり、また価格が大きく変動することがあるなどの問題を有している。そのため、Dyな

どの重希土類元素 R H をできるだけ使用せずに R - T - B 系焼結磁石の H_c を向上させる技術が求められている。

[0007] このような技術として、例えば特許文献 1 は、通常の R - T - B 系合金よりも B 量を低くするとともに、Al、Ga および Cu のうちから選ばれる 1 種以上である金属元素 M を含有させることにより R_2T_{17} 相を生成させ、該 R_2T_{17} 相を原料として生成させた遷移金属リッチ相 (R - T - Ga 相) の体積率を十分に確保することにより、Dy の含有量を抑制しつつ、保磁力の高い R - T - B 系焼結磁石が得られることを開示している。

先行技術文献

特許文献

[0008] 特許文献 1：国際公開第 2013/008756 号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0009] しかし、特許文献 1 に記載される R - T - B 系焼結磁石は H_c が向上しているものの、近年の要求を満足するには不十分である。

[0010] そこで本発明の実施形態は、高い保磁力 H_c を有する R - T - B 系焼結磁石の製造方法を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0011] 本発明の態様 1 は、R : 28.5 ~ 33.0 質量% (R は希土類元素のうち少なくとも 1 種であり、Nd および Pr の少なくとも 1 種を含む)、B : 0.850 ~ 0.910 質量%、Ga : 0.2 ~ 0.7 質量%、Cu : 0.05 ~ 0.50 質量%、Al : 0.05 ~ 0.50 質量%、を含有し、残部が T (T は Fe と Co であり、T の 90 質量%以上が Fe である) および不可避免的不純物であり、下記式 (1) を満足する R - T - B 系焼結磁石の製造方法であって、

$$14 [B] / 10.8 < [T] / 55.85 \quad (1)$$

([B] は質量%で示す B の含有量であり、[T] は質量%で示す T の含

有量である)

粒径 D_{50} および粒径 D_{99} が下記式(2)および(3)を満足する合金粉末を準備する工程と、前記合金粉末を成形して成形体を得る成形工程と、前記成形体を焼結して焼結体を得る焼結工程と、前記焼結体に熱処理を施す熱処理工程と、を含む、R-T-B系焼結磁石の製造方法である。

$$3.8\mu\text{m} \leq D_{50} \leq 5.5\mu\text{m} \quad (2)$$

$$D_{99} \leq 10\mu\text{m} \quad (3)$$

[0012] 本発明の態様2は、前記R-T-B系焼結磁石におけるBが0.870～0.910質量%である、態様1に記載のR-T-B系焼結磁石の製造方法である

[0013] 本発明の態様3は、前記粒径 D_{50} および粒径 D_{99} がさらに下記式(4)および(5)を満足する、態様1又は2に記載のR-T-B系焼結磁石の製造方法である。

$$3.8\mu\text{m} \leq D_{50} \leq 4.5\mu\text{m} \quad (4)$$

$$D_{99} \leq 9\mu\text{m} \quad (5)$$

発明の効果

[0014] 本発明の実施形態によれば、高い保磁力 H_{cJ} を有するR-T-B系焼結磁石を製造できる方法を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0015] [図1]図1は、実施例における、保磁力の向上幅 ΔH_{cJ} とB量との関係を表す図である。

発明を実施するための形態

[0016] 以下に示す実施形態は、本発明の技術思想を具体化するためのR-T-B系焼結磁石の製造方法を例示するものであって、本発明を以下に限定するものではない。

[0017] 本発明者らは鋭意検討した結果、本発明の実施形態に記載するような特定の組成範囲、特に極めて狭い特定範囲のB含有量を有するR-T-B系焼結磁石の製造において、分級機等を用いて比較的大きな粒径を有する微粉末を

取り除くことによって、合金粉末の粒度分布を調整することで、最終的に得られる R-T-B 系焼結磁石の H_c を大幅に上昇できることを見出した。

[0018] 従来の R-T-B 系焼結磁石の製造においても比較的大きな粒径を有する微粉末を取り除くことは行われてきた。しかし、後述する実施例に示す通り、本発明の特定の組成範囲外では最終的に得られる R-T-B 系焼結磁石の H_c の向上幅が小さい。さらに比較的大きな粒径を有する微粉末を取り除くためには粉砕時間を長くしなければならず、粉砕能率が低下し、その結果、量産効率の悪化を招く。すなわち、従来は量産効率の悪化を招くにしては H_c の向上幅が小さすぎるため、実際の量産では積極的に行われることは無かった。

[0019] しかし、本発明者らは、後述するように、本発明の実施形態の特定の組成範囲（特に B 含有量が 0.850～0.910 質量%）である R-T-B 系焼結磁石の製造において、平均粒径 D_{50} が $3.8\ \mu\text{m}$ 以上 $5.5\ \mu\text{m}$ 以下、かつ D_{99} が $10\ \mu\text{m}$ 以下（好ましくは、平均粒径 D_{50} が $3.8\ \mu\text{m}$ 以上 $4.5\ \mu\text{m}$ 以下、かつ D_{99} が $9\ \mu\text{m}$ 以下）となるように原料合金粉末を調整し、このような合金粉末を成形、焼結および熱処理することにより得られた R-T-B 系焼結磁石は、粉砕時間が長くなることによる量産効率の悪化を招いたとしても積極的に行うことができるほど、大幅に H_c が向上することを見出し、本発明に至ったものである。

以下に本発明の実施形態に係る製造方法について詳述する。

[0020] [R-T-B 系焼結磁石]

まず、本発明の実施形態に係る製造方法により得られる R-T-B 系焼結磁石について説明する。

[0021] [R-T-B 系焼結磁石の組成]

本実施形態に係る R-T-B 系焼結磁石の組成は、

R : 28.5～33.0 質量%（R は希土類元素のうち少なくとも 1 種であり、Nd および Pr の少なくとも 1 種を含む）、

B : 0.850～0.910 質量%、

Ga : 0.2 ~ 0.7 質量%、

Cu : 0.05 ~ 0.50 質量%、

Al : 0.05 ~ 0.50 質量%、を含有し、

残部がT (TはFeとCoであり、Tの90質量%以上がFeである) および不可避免的不純物であり、下記式(1)を満足する。

$$14 [B] / 10.8 < [T] / 55.85 \quad (1)$$

([B]は質量%で示すBの含有量であり、[T]は質量%で示すTの含有量である。)

[0022] 上記組成により、一般的なR-T-B系焼結磁石よりもB量を少なくするとともに、Ga等を含有させているので、二粒子粒界にR-T-Ga相が生成して、高い H_c を得ることができる。ここで、R-T-Ga相とは、代表的には $Nd_6Fe_{13}Ga$ 化合物である。 $R_6T_{13}Ga$ 化合物は、 $La_6Co_{11}Ga_3$ 型結晶構造を有する。また、 $R_6T_{13}Ga$ 化合物は、その状態によっては、 $R_6T_{13-\delta}Ga_{1+\delta}$ 化合物(δ は典型的には2以下)になっている場合がある。例えば、R-T-B系焼結磁石中にCu、Alが比較的多く含有される場合、 $R_6T_{13-\delta}(Ga_{1-x-y}Cu_xAl_y)_{1+\delta}$ になっている場合がある。

以下に、各組成について詳述する。

[0023] (R : 28.5 ~ 33.0 質量%)

Rは、希土類元素のうち少なくとも1種であり、NdおよびPrの少なくとも1種を含む。Rの含有量は、28.5 ~ 33.0 質量%である。Rが28.5 質量%未満であると焼結時の緻密化が困難となるおそれがあり、33.0 質量%を超えると主相比率が低下して高い B_r を得られないおそれがある。Rの含有量は、好ましくは29.5 ~ 32.5 質量%である。Rがこのような範囲であれば、より高い B_r を得ることができる。

[0024] (B : 0.850 ~ 0.910 質量%)

Bの含有量は、0.850 ~ 0.910 質量%である。本発明の実施形態では特にBの含有量がこのような狭い範囲であれば、後述する合金粉末を得る工程において、合金粉末の粒度 D_{50} および D_{99} が本発明の実施形態で規定

する所定の範囲になるように管理することで、最終的に得られる R-T-B 系焼結磁石の H_{cJ} を大幅に向上することができる。B の含有量が 0.850 質量%未満及び 0.910 質量%を超えると、高い H_{cJ} 向上効果を得ることができない。好ましくは、B の含有量は、0.870～0.910 質量%である。より高い H_{cJ} 向上効果が得られる。

[0025] さらに、B の含有量は下記式 (1) を満たす。

$$14 [B] / 10.8 < [T] / 55.85 \quad (1)$$

式 (1) を満足することにより、B の含有量が一般的な R-T-B 系焼結磁石よりも少なくなる。一般的な R-T-B 系焼結磁石は、主相である $R_2T_{14}B$ 相以外に軟磁性相である R_2T_{17} 相が生成しないように、 $[T] / 55.85$ (Fe の原子量) は $14 [B] / 10.8$ (B の原子量) よりも少ない組成となっている ($[T]$ は、質量%で示す T の含有量である)。本発明の実施形態の R-T-B 系焼結磁石は、一般的な R-T-B 系焼結磁石と異なり、 $[T] / 55.85$ が $14 [B] / 10.8$ よりも多くなるように式 (1) で規定している。なお、本発明の実施形態の R-T-B 系焼結磁石における T の主成分は Fe であるため、Fe の原子量を用いた。

[0026] (Ga : 0.2～0.7 質量%)

Ga の含有量は、0.2～0.7 質量%である。Ga が 0.2 質量%未満であると、R-T-Ga 相の生成量が少なすぎて、 R_2T_{17} 相を消失させることができず、高い H_{cJ} を得ることができないおそれがあり、0.7 質量%を超えると不要な Ga が存在することになり、主相比率が低下して B_r が低下するおそれがある。

[0027] (Cu : 0.05～0.50 質量%)

Cu の含有量は、0.05～0.50 質量%である。Cu が 0.05 質量%未満であると高い H_{cJ} を得ることができないおそれがあり、0.50 質量%を超えると焼結性が悪化して高い H_{cJ} が得られないおそれがある。

[0028] (Al : 0.05～0.50 質量%)

Al の含有量は、0.05～0.50 質量%である。Al を含有すること

により H_c を向上させることができる。Alは通常、製造工程で不可避免の不純物として0.05質量%以上含有されるが、不可避免の不純物で含有される量と意図的に添加した量の合計で0.5質量%以下含有してもよい。

[0029] (残部：Tおよび不可避免の不純物)

残部はTおよび不可避免の不純物である。ここでTはFeとCoであり、Tの90質量%以上がFeである。Coを含有することにより耐食性を向上させることができるが、Coの置換量がFeの10質量%を超えると、高い B_r が得られないおそれがある。

さらに、本発明の実施形態のR-T-B系焼結磁石は、ジジム合金(Nd-Pr)、電解鉄、フェロボロンなどに通常含有される不可避免の不純物としてCr、Mn、Si、La、Ce、Sm、Ca、Mgなどを含有することができる。さらに、製造工程中の不可避免の不純物として、O(酸素)、N(窒素)およびC(炭素)などを例示できる。また、少量(0.1質量%程度)のV、Ni、Mo、Hf、Ta、W、Nb、Zrなどを含有してもよい。

[0030] 以下に、本発明の実施形態に係るR-T-B系焼結磁石の製造方法の詳細を説明する。

[0031] [R-T-B系焼結磁石の製造方法]

上述した組成を有するR-T-B系焼結磁石の製造方法を説明する。R-T-B系焼結磁石の製造方法は、合金粉末を得る工程、成形工程、焼結工程、熱処理工程を有する。

以下、各工程について説明する。

[0032] (1) 合金粉末を得る工程

この工程において、上述したR-T-B系焼結磁石と同じ組成を有し、粒径 D_{50} が $3.8\mu m$ 以上 $5.5\mu m$ 以下であり、かつ粒径 D_{99} が $10\mu m$ 以下の合金粉末を得る。粒径 D_{50} および D_{99} がこのような範囲であり、また、本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石の組成となるように調整した合金粉末を用いることにより、最終的に得られるR-T-B系焼結磁石は、高い保磁力 H_c を有することができる。

[0033] このような合金粉末は、例えば次のように得ることができる。

上述したR-T-B系焼結磁石の組成となるように各元素の金属または合金（溶解原料）を準備し、ストリップキャスティング法等によりフレーク状の原料合金を作製する。次に、前記フレーク状の原料合金から合金粉末を作製する。得られたフレーク状の原料合金を水素粉砕し、例えば1.0mm以下の粗粉砕粉を得る。次に、粗粉砕粉を不活性ガス中でジェットミル等により微粉砕し、分級機を用いて、粒径の大きな微粉砕粉を取り除き、粒径 D_{50} が $3.8\mu\text{m}$ 以上 $5.5\mu\text{m}$ 以下であり、かつ粒径 D_{99} が $10\mu\text{m}$ 以下の微粉砕粉（合金粉末）を得る。このような粒度分布を有する合金粉末を用いて上述した組成を有するR-T-B系焼結磁石を製造することにより、高い保磁力 H_c を有するR-T-B系焼結磁石を得ることができる。合金粉末は、粒径 D_{50} が $3.8\mu\text{m}$ 以上 $4.5\mu\text{m}$ 以下であり、かつ D_{99} が $9\mu\text{m}$ 以下であることがより好ましい。このような範囲であれば、最終的に得られるR-T-B系焼結磁石の H_c をより向上することができる。

[0034] 合金粉末は、1種類の合金粉末（単合金粉末）を用いてもよいし、2種類以上の合金粉末を混合することにより合金粉末（混合合金粉末）を得る、いわゆる2合金法を用いてもよく、公知の方法などを用いて本発明の実施形態の組成となるように合金粉末を作製すればよい。なお、ジェットミル粉砕前の粗粉砕粉、ジェットミル粉砕中およびジェットミル粉砕後の合金粉末に助剤として公知の潤滑剤を添加してもよい。

[0035] 上述のように、本実施形態に係る合金粉末は特定の範囲の粒径 D_{50} および D_{99} を有するが、粒径 D_{50} および D_{99} は、気流分散式レーザー回折法（JIS Z 8825：2013年改訂版に準拠する）により測定することができる。すなわち、本明細書において、 D_{50} は、小粒径側からの積算粒度分布（体積基準）が50%となる粒径（メジアン径）を意味し、 D_{99} は、小粒径側からの積算粒度分布（体積基準）が99%となる粒径を意味する。

なお本発明の実施形態における D_{50} と D_{99} は、Sympatec社製の粒度分布測定装置「HELOS&RODOS」において

分散圧：4 b a r

測定レンジ：R 2

計算モード：H R L D

の条件にて測定された D_{50} と D_{99} のことを示す。

[0036] (2) 成形工程

得られた合金粉末を用いて磁界中成形を行い、成形体を得る。磁界中成形は、金型のキャビティー内に乾燥した合金粉末を挿入し、磁界を印加しながら成形する乾式成形法、金型のキャビティー内に該合金粉末を分散させたスラリーを注入し、スラリーの分散媒を排出しながら成形する湿式成形法を含む既知の任意の磁界中成形方法を用いてよい。

[0037] (3) 焼結工程

成形体を焼結することにより焼結体（焼結磁石）を得る。成形体の焼結は既知の方法を用いることができる。なお、焼結時の雰囲気による酸化を防止するために、焼結は、真空雰囲気中または雰囲気ガス中で行うことが好ましい。雰囲気ガスは、ヘリウム、アルゴンなどの不活性ガスを用いることが好ましい。

[0038] (4) 熱処理工程

得られた焼結磁石に対し、磁気特性を向上させることを目的とした熱処理を行うことが好ましい。熱処理温度、熱処理時間などは既知の条件を用いることができる。例えば、比較的低い温度（400℃以上600℃以下）のみでの熱処理（一段熱処理）をしてもよく、あるいは比較的高い温度（700℃以上焼結温度以下（例えば1050℃以下））で熱処理を行った後比較的低い温度（400℃以上600℃以下）で熱処理（二段熱処理）をしてもよい。好ましい条件は、730℃以上1020℃以下で5分から500分程度の熱処理を施し、冷却後（室温まで冷却後、または440℃以上550℃以下まで冷却後）、さらに440℃以上550℃以下で5分から500分程度熱処理をすることが挙げられる。熱処理雰囲気は、真空雰囲気あるいは不活性ガス（ヘリウムやアルゴンなど）で行うことが好ましい。

[0039] 最終的な製品形状にするなどの目的で、得られた焼結磁石に研削などの機械加工を施してもよい。その場合、熱処理は機械加工前でも機械加工後でもよい。さらに、得られた焼結磁石に、表面処理を施してもよい。表面処理は、既知の表面処理であってもよく、例えばA l 蒸着や電気N i めっきや樹脂塗料などの表面処理を行うことができる。

実施例

[0040] 本発明を実施例によりさらに詳細に説明するが、本発明はそれらに限定されるものではない。

[0041] ・実施例 1

表 1 の試料 N o. 1 ~ 2 7 に示す R - T - B 系焼結磁石の組成となるように各元素を秤量し、ストリップキャスト法により合金を作製した。得られた各合金を水素粉砕法により粗粉砕し粗粉砕粉を得た。前記粗粉砕粉を、以下に説明する A ~ C のいずれかの条件で、それぞれジェットミルにより微粉砕を行った（但し、条件 C で微粉砕を行ったのは試料 N o. 1 3 のみ）。

[0042] （条件 A）

条件 A は、ジェットミルへの原料供給量を 2 0 0 g / 分、分級ロータ回転数を 4 5 0 0 r p m にして微粉砕を行った。粉砕時間は約 1 0 分であった。条件 A は通常の粉砕条件であり、狙い値は粒径 D_{50} : 4 μ m、粒径 D_{99} : 1 2 μ m である。尚、前記 D_{50} 及び前記 D_{99} は、それぞれ、気流分散法によるレーザー回折法で得られる粒度分布において、小粒径側からの積算粒度分布（体積基準）が 5 0 % となる粒径及び小粒径側からの積算粒度分布（体積基準）が 9 9 % となる粒径である。また、 D_{50} 及び D_{99} は、S y m p a t e c 社製の粒度分布測定装置「H E L O S & R O D O S」を用いて、分散圧：4 b a r、測定レンジ：R 2、計算モード：H R L D の条件にて測定した。

[0043] （条件 B）

条件 B は、ジェットミルへの原料供給量を 5 0 g / 分、分級ロータ回転数を 5 5 0 0 r p m にして微粉砕を行った。粉砕時間は約 4 0 分であった。条件 B は、本発明の実施形態の粒径（ D_{50} 及び D_{99} ）を得るために行うもので

あり、狙い値は粒径 D_{50} ： $4\text{ }\mu\text{m}$ 、粒径 D_{99} ： $9.5\text{ }\mu\text{m}$ である。条件Cは、ジェットミルへの原料供給量を 50 g/分 、分級ロータ回転数を 6000 rpm にして微粉碎を行った。粉碎時間は約 40 分 であった。

[0044] (条件C)

条件Cは、本発明の実施形態の好ましい粒径(D_{50} 及び D_{99})を得るために行うものであり、狙い値は粒径 D_{50} ： $4\text{ }\mu\text{m}$ 、粒径 D_{99} ： $8.5\text{ }\mu\text{m}$ である。

[0045] 各条件で微粉碎して得られた微粉碎粉の粒径(D_{50} 及び D_{99})の実測値を表2及び表3に示す。表2の「条件A」には、試料No. 1～27を条件Aで微粉碎して得られた微粉碎粉の粒径の実測値が示されている。表2の「条件B」には、試料No. 1～27を条件Bで微粉碎して得られた微粉碎粉の粒径の実測値が示されている。表3の「条件A」には、試料No. 13を条件Aで微粉碎して得られた粒径の実測値が示されている。表3の「条件C」には、試料No. 13を条件Cで微粉碎して得られた粒径の実測値が示されている。

[0046] 得られた微粉碎粉(合金粉末)に、潤滑剤としてステアリン酸亜鉛を微粉碎粉 100 質量部 に対して 0.05 質量部 添加、混合した後、磁界中で成形し、成形体を得た。なお、成形装置には、磁界印加方向と加圧方向とが直交する、いわゆる直角磁界成形装置(横磁界成形装置)を用いた。得られた成形体を、真空中で組成に応じて $1030\sim 1070^{\circ}\text{C}$ で 4 時間 焼結し、R-T-B系焼結磁石を得た。焼結磁石の密度は 7.5 Mg/m^3 以上であった。さらに焼結後のR-T-B系焼結磁石に対し、 800°C で 2 時間 保持した後室温まで急冷し、次いで 500°C で 2 時間 保持した後室温まで冷却する熱処理を施した。

[0047] 得られた焼結磁石の成分を求めるために、Nd、Pr、Tb、B、Co、Al、Cu、Ga、Nb、Zr、Feの含有量をICP発光分光分析法により測定した。さらに、O(酸素量)はガス融解-赤外線吸収法、N(窒素量)はガス融解-熱伝導法、C(炭素量)は燃焼-赤外線吸収法、によるガス

分析装置を使用して測定した。結果を表 1 に示す。

[0048] 熱処理後の焼結磁石に機械加工を施し、縦 7 mm、横 7 mm、厚み 7 mm の試料を作製し、B-Hトレサによって各試料の特性 (B_r 及び H_{cJ}) を測定した。測定結果を表 2 及び表 3 に示す。

なお、表 2 および表 3 の備考欄に記載された「本発明例」とは、本発明の実施形態に規定する要件を満たす実施例であることを意味する。

[0049] 表 2 の「条件 A」には、表 1 の試料 No. 1 ~ 27 の組成を有する合金を条件 A で微粉砕し、得られた微粉砕粉を焼結、熱処理して得られた焼結磁石の特性値が示されている。表 2 の「条件 B」には、表 1 の試料 No. 1 ~ 27 の組成を有する合金を条件 B で微粉砕し、得られた微粉砕粉を焼結、熱処理して得られた焼結磁石の特性値 (B_r 及び H_{cJ} の値) が示されている。また、表 2 の「条件 B - 条件 A」には、微粉砕の条件を条件 A から条件 B に変更したことによる焼結磁石の H_{cJ} の向上幅 (ΔH_{cJ}) が示されている。つまり、表 2 における ΔH_{cJ} は、微粉砕粉を条件 A または条件 B で作製することにより得られた R-T-B 系焼結磁石における H_{cJ} の差 (条件 B を用いて得られた R-T-B 系焼結磁石の H_{cJ} の値から条件 A を用いて得られた R-T-B 系焼結磁石の H_{cJ} の値を引いたもの) である。

[0050] 表 3 の「条件 A」には、表 1 の試料 No. 13 の組成を有する合金を条件 A で微粉砕し、得られた微粉砕粉を焼結、熱処理して得られた焼結磁石の特性値が示されている。表 3 の「条件 C」には、表 1 の試料 No. 13 の組成を有する合金を条件 C で微粉砕し、得られた微粉砕粉を焼結、熱処理して得られた焼結磁石の特性値が示されている。表 3 の「条件 C - 条件 A」には、微粉砕の条件を条件 A から条件 C に変更したことによる焼結磁石の H_{cJ} の向上幅 (ΔH_{cJ}) が示されている。つまり、表 3 における ΔH_{cJ} は、微粉砕粉を条件 A または条件 C で作製することにより得られた R-T-B 系焼結磁石における H_{cJ} の差 (条件 C を用いて得られた R-T-B 系焼結磁石の H_{cJ} の値から条件 A を用いて得られた R-T-B 系焼結磁石の H_{cJ} の値を引いたもの) である。

[0051] [表1]

試料 No.	R-T-B系焼結磁石の組成(質量%)													
	Nd	Pr	Tb	B	Co	Al	Cu	Ga	Nb	Zr	Fe	O	N	C
1	24.3	8.2	0.0	0.872	0.48	0.1	0.1	0.7	0.0	0.0	64.50	0.4	0.0	0.1
2	24.3	8.3	0.0	0.854	0.48	0.1	0.1	0.7	0.0	0.0	64.42	0.4	0.0	0.1
3	23.6	7.8	0.0	0.890	0.50	0.1	0.2	0.5	0.0	0.0	66.10	0.1	0.1	0.1
4	23.6	7.8	0.0	0.899	0.50	0.1	0.2	0.5	0.0	0.0	66.09	0.1	0.1	0.1
5	31.5	0.0	0.0	0.899	0.90	0.1	0.1	0.5	0.0	0.0	65.61	0.1	0.1	0.1
6	23.6	7.8	0.0	0.899	0.50	0.1	0.3	0.5	0.0	0.0	65.95	0.1	0.1	0.1
7	23.6	7.7	0.0	0.899	0.90	0.4	0.1	0.4	0.0	0.0	65.71	0.1	0.1	0.1
8	23.6	7.7	0.0	0.883	0.50	0.1	0.2	0.5	0.0	0.0	66.19	0.1	0.1	0.1
9	23.1	7.7	0.0	0.894	0.50	0.1	0.1	0.5	0.0	0.0	66.68	0.1	0.1	0.1
10	23.0	7.7	0.0	0.905	0.48	0.1	0.1	0.5	0.0	0.0	66.79	0.1	0.1	0.1
11	22.7	7.4	0.0	0.909	0.90	0.1	0.2	0.3	0.0	0.0	67.04	0.1	0.1	0.1
12	22.7	7.4	0.0	0.910	0.90	0.1	0.2	0.2	0.0	0.0	67.10	0.1	0.1	0.1
13	21.6	7.1	0.0	0.900	0.49	0.1	0.1	0.4	0.0	0.0	68.87	0.1	0.1	0.1
14	22.4	7.2	0.3	0.910	0.90	0.1	0.1	0.4	0.1	0.1	67.12	0.1	0.1	0.1
15	24.3	8.2	0.0	0.937	0.48	0.1	0.1	0.7	0.0	0.0	64.42	0.4	0.0	0.1
16	23.7	7.7	0.0	0.920	0.53	0.1	0.1	0.5	0.0	0.0	66.01	0.1	0.1	0.1
17	23.7	7.7	0.0	0.914	0.53	0.2	0.2	0.5	0.0	0.1	65.63	0.1	0.1	0.1
18	23.4	7.9	0.0	0.834	0.50	0.1	0.1	0.4	0.0	0.0	66.59	0.1	0.1	0.1
19	23.4	7.4	0.0	0.951	0.50	0.1	0.2	0.5	0.0	0.0	66.60	0.1	0.1	0.1
20	23.1	7.7	0.0	0.913	0.48	0.1	0.1	0.1	0.0	0.0	67.03	0.1	0.1	0.1
21	23.1	7.6	0.0	0.844	0.49	0.1	0.1	0.5	0.0	0.0	66.80	0.1	0.1	0.1
22	23.1	7.6	0.0	0.934	0.50	0.1	0.1	0.5	0.0	0.0	66.62	0.1	0.1	0.1
23	23.1	7.6	0.0	0.917	0.50	0.1	0.1	0.5	0.0	0.0	66.81	0.1	0.1	0.1
24	23.1	7.6	0.0	0.937	0.49	0.1	0.1	0.5	0.0	0.0	66.80	0.1	0.1	0.1
25	22.7	7.4	0.0	0.912	0.49	0.1	0.1	0.1	0.0	0.0	67.66	0.1	0.1	0.1
26	22.5	7.4	0.9	0.950	0.92	0.1	0.1	0.4	0.0	0.1	66.25	0.1	0.0	0.1
27	22.5	7.4	0.9	0.893	0.90	0.1	0.1	0.4	0.0	0.1	66.31	0.1	0.0	0.1

[0052]

[表2]

試料 No.	条件A				条件B				条件B－条件A	備考
	D ₅₀ [μm]	D ₉₉ [μm]	B _r [T]	H _{cJ} [kA/m]	D ₅₀ [μm]	D ₉₉ [μm]	B _r [T]	H _{cJ} [kA/m]	ΔH _{cJ} [kA/m]	
1	4.3	12.2	1.328	1471	4.6	9.8	1.329	1567	96	本発明例(条件B)
2	4.3	12.2	1.321	1458	4.6	9.8	1.322	1545	87	本発明例(条件B)
3	4.2	12.4	1.389	1480	4.4	9.4	1.390	1581	101	本発明例(条件B)
4	4.0	12.3	1.373	1572	4.4	9.5	1.375	1672	100	本発明例(条件B)
5	4.0	12.3	1.375	1560	4.4	9.5	1.377	1656	96	本発明例(条件B)
6	4.0	12.3	1.373	1572	4.4	9.5	1.375	1672	100	本発明例(条件B)
7	4.0	12.3	1.369	1579	4.4	9.5	1.371	1669	90	本発明例(条件B)
8	3.9	11.9	1.371	1580	4.3	9.6	1.372	1678	98	本発明例(条件B)
9	4.1	12.1	1.360	1525	4.6	9.7	1.361	1620	95	本発明例(条件B)
10	4.0	12.0	1.384	1505	4.5	9.5	1.385	1602	97	本発明例(条件B)
11	4.1	12.2	1.429	1427	4.6	9.7	1.430	1523	96	本発明例(条件B)
12	4.3	12.3	1.415	1438	4.7	9.8	1.416	1529	91	本発明例(条件B)
13	4.0	12.1	1.401	1477	4.4	9.3	1.402	1571	94	本発明例(条件B)
14	4.2	12.0	1.394	1592	4.6	9.5	1.396	1682	90	本発明例(条件B)
15	4.2	12.0	1.364	1260	4.4	9.6	1.365	1303	43	比較例
16	4.1	11.7	1.403	1250	4.5	9.7	1.404	1291	41	比較例
17	4.0	11.9	1.399	1259	4.3	9.4	1.399	1303	44	比較例
18	3.9	12.1	1.330	1510	4.4	9.5	1.329	1552	42	比較例
19	4.2	11.6	1.403	1202	4.6	9.8	1.404	1238	36	比較例
20	4.0	12.4	1.404	1181	4.5	9.7	1.405	1221	40	比較例
21	3.8	11.8	1.345	1500	4.2	9.2	1.346	1557	57	比較例
22	4.1	11.7	1.397	1249	4.6	9.6	1.398	1288	39	比較例
23	4.0	11.5	1.390	1279	4.4	9.5	1.391	1317	38	比較例
24	4.2	12.2	1.398	1275	4.5	9.8	1.399	1312	37	比較例
25	4.1	12.1	1.401	1280	4.3	9.5	1.402	1332	52	比較例
26	4.3	11.8	1.395	1528	4.3	9.8	1.394	1569	41	比較例
27	4.4	11.8	1.376	1714	4.3	9.9	1.377	1806	92	本発明例(条件B)

[0053] [表3]

試料 No.	条件A				条件C				条件C－条件A	備考
	D ₅₀ [μm]	D ₉₉ [μm]	B _r [T]	H _{cJ} [kA/m]	D ₅₀ [μm]	D ₉₉ [μm]	B _r [T]	H _{cJ} [kA/m]	ΔH _{cJ} [kA/m]	
13	4.0	12.1	1.401	1477	3.8	8.8	1.403	1650	173	本発明例(条件C)

[0054] 表2に示すように、試料No. 1～27のいずれの焼結磁石も、使用する微粉碎粉（合金粉末）の粒径D₅₀及び粒径D₉₉を本発明の実施形態の粒径（条件Bで作製した微粉碎粉）にすることにより、通常の粒径（条件Aで作製）の場合と比べて、B_rの低下なしにH_{cJ}が向上（ΔH_{cJ}が0を超えている）している。しかし、本発明の実施形態の組成を満たしていない試料No. 15～26の比較例は、焼結磁石のH_{cJ}の向上幅（ΔH_{cJ}）が36～57 kA/mと十分ではなかった。これ対し、本発明の実施形態の組成範囲（試料N

○、1～14及び27)であると、 ΔH_{cJ} が87～101 kA/mとなり、比較例の約1.5～2.5倍と大幅に向上した。このように、本発明の実施形態の組成を満たすことにより、高い B_r と高い H_{cJ} が得られている。上述したように、条件A(通常の粒度)から条件B(本発明の実施形態の粒度)にすることにより、粉碎時間が10分から40分と長くなる。よって、本発明の実施形態の組成を満たしていない場合は H_{cJ} の向上幅が小さいため、本発明の実施形態の粒度で粉碎は行わない。しかし、本発明の実施形態の組成範囲であると大幅に H_{cJ} が向上するので、粉碎時間が長くなったとしても行う価値が十分にある。

[0055] ここで、表1に示すB量と、表2および3に示した保磁力の向上幅 ΔH_{cJ} との関係を図1に示す。図1は、縦軸に本発明例及び比較例の ΔH_{cJ} を、横軸にB量を示したものである。図1における四角のプロット(■)が本発明例であり、三角のプロット(▲)が比較例である。図1に示すように、B量が0.850～0.910質量%と極めて狭い範囲において高い ΔH_{cJ} が得られていることが分かる。また、B量が0.870～0.910質量%の方がさらに高い(90 kA/m以上) ΔH_{cJ} が得られている。

[0056] また、表3に示すように、微粉碎粉(合金粉末)における粒径 D_{50} 及び粒径 D_{99} が本発明の実施形態の好ましい範囲($3.8 \mu m \leq D_{50} \leq 4.5 \mu m$ 及び $D_{99} \leq 9 \mu m$)であると、 B_r の低下なしに ΔH_{cJ} が173 kA/mと、さらに高い B_r と高い H_{cJ} が得られている。

[0057] 本出願は、出願日が2016年3月17日である日本国特許出願、特願第2016-054153号を基礎出願とする優先権主張を伴う。特願第2016-054153号は参照することにより本明細書に取り込まれる。

請求の範囲

[請求項1] R : 28.5 ~ 33.0 質量% (Rは希土類元素のうち少なくとも1種であり、NdおよびPrの少なくとも1種を含む)、

B : 0.850 ~ 0.910 質量%、

Ga : 0.2 ~ 0.7 質量%、

Cu : 0.05 ~ 0.50 質量%、

Al : 0.05 ~ 0.50 質量%、を含有し、

残部がT (TはFeとCoであり、Tの90質量%以上がFeである) および不可避免的不純物であり、下記式(1)を満足するR-T-B系焼結磁石の製造方法であって、

$$14[B] / 10.8 < [T] / 55.85 \quad (1)$$

([B]は質量%で示すBの含有量であり、[T]は質量%で示すTの含有量である)

粒径 D_{50} および粒径 D_{99} が下記式(2)および(3)を満足する合金粉末を準備する工程と、

$$3.8 \mu\text{m} \leq D_{50} \leq 5.5 \mu\text{m} \quad (2)$$

$$D_{99} \leq 10 \mu\text{m} \quad (3)$$

前記合金粉末を成形して成形体を得る成形工程と、

前記成形体を焼結して焼結体を得る焼結工程と、

前記焼結体に熱処理を施す熱処理工程と、

を含む、R-T-B系焼結磁石の製造方法。

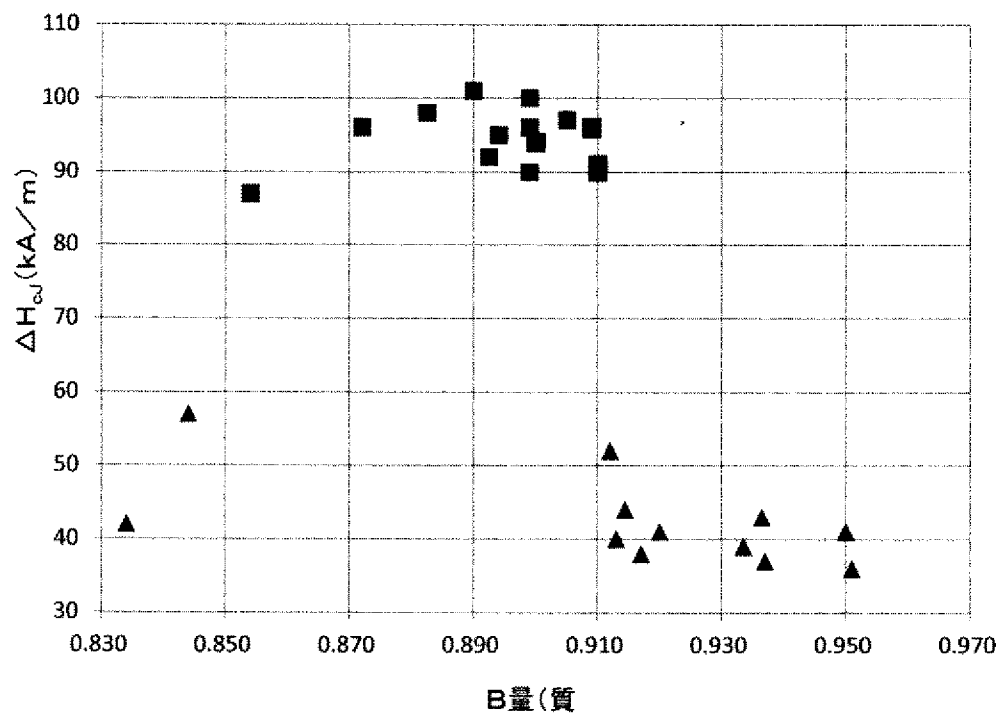
[請求項2] 前記R-T-B系焼結磁石におけるBが0.870 ~ 0.910 質量%である、請求項1に記載のR-T-B系焼結磁石の製造方法。

[請求項3] 前記粒径 D_{50} および粒径 D_{99} がさらに下記式(4)および(5)を満足する、請求項1又は2に記載のR-T-B系焼結磁石の製造方法。

$$3.8 \mu\text{m} \leq D_{50} \leq 4.5 \mu\text{m} \quad (4)$$

$$D_{99} \leq 9 \mu\text{m} \quad (5)$$

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/009794

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01F1/057(2006.01)i, B22F1/00(2006.01)i, B22F3/00(2006.01)i, B22F3/24(2006.01)i, C22C33/02(2006.01)i, C22C38/00(2006.01)i, H01F41/02(2006.01)i

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)

H01F1/057, B22F1/00, B22F3/00, B22F3/24, C22C33/02, C22C38/00, H01F41/02

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

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.
Y	WO 2015/147053 A1 (Hitachi Metals, Ltd.), 01 October 2015 (01.10.2015), claims; paragraphs [0020] to [0038] & CN 106030736 A	1-3
Y	JP 2004-303909 A (TDK Corp.), 28 October 2004 (28.10.2004), claims; paragraphs [0013] to [0048]; fig. 4 (Family: none)	1-3

☐ 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
25 April 2017 (25.04.17)

Date of mailing of the international search report
16 May 2017 (16.05.17)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. H01F1/057(2006.01)i, B22F1/00(2006.01)i, B22F3/00(2006.01)i, B22F3/24(2006.01)i,
C22C33/02(2006.01)i, C22C38/00(2006.01)i, H01F41/02(2006.01)i

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））

Int.Cl. H01F1/057, B22F1/00, B22F3/00, B22F3/24, C22C33/02, C22C38/00, 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	1971-2017年
日本国実用新案登録公報	1996-2017年
日本国登録実用新案公報	1994-2017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
Y	WO 2015/147053 A1（日立金属株式会社）2015.10.01, 特許請求の範囲, 段落[0020]-[0038] & CN 106030736 A	1-3
Y	JP 2004-303909 A（TDK 株式会社）2004.10.28, 特許請求の範囲, 段落[0013]-[0048], 図4 (ファミリーなし)	1-3

☐ 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	「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矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「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	「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
「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）	「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
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」同一パテントファミリー文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	

国際調査を完了した日

25.04.2017

国際調査報告の発送日

16.05.2017

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（ISA/J P）

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

右田 勝則

5D

6309

電話番号 03-3581-1101 内線 3551