

(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
2021年2月4日(04.02.2021)



(10) 国際公開番号

WO 2021/019784 A1

(51) 国際特許分類:

H01F 1/059 (2006.01) *C08L 63/00* (2006.01)
C08G 59/68 (2006.01) *H01F 41/02* (2006.01)
C08K 9/06 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2019/030347

(22) 国際出願日: 2019年8月1日(01.08.2019)

(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: 昭和電工マテリアルズ株式会社 (SHOWA DENKO MATERIALS CO., LTD.)
[JP/JP]; 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 竹内 一雅 (TAKEUCHI Kazumasa);
〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 前田 英雄 (MAEDA Hideo); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 伊藤 輝雄 (ITO Teruo); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 須田 聡一郎 (SUDA Sohichiroh); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 長谷川 芳樹, 外 (HASEGAWA Yoshiki et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内二丁目1番1号丸の内 M Y P L A Z A (明治安田生命ビル) 9階 創英国際特許法律事務所 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, 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, 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, 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, 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))

(54) **Title:** RARE EARTH BONDED MAGNET COMPOUND AND METHOD FOR PRODUCING SAME, COMPACT AND METHOD FOR PRODUCING SAME, AND CURED MATERIAL

(54) 発明の名称: 希土類ボンド磁石用コンパウンド及びその製造方法、成形体及びその製造方法、並びに硬化物

(57) **Abstract:** A rare earth bonded magnet compound according to the present invention comprises: a resin composition containing an epoxy resin, a phenolic resin, a cure accelerator, and a silicon compound; and coated particles obtained by at least partially coating the surfaces of Sm-Fe-N alloy particles with a silicon-containing inorganic coating.

(57) 要約: エポキシ樹脂、フェノール樹脂、硬化促進剤及びケイ素化合物を含む樹脂組成物と、Sm-Fe-N系合金粒子の表面の少なくとも一部がケイ素を含む無機被膜で覆われた被覆粒子と、を備える希土類ボンド磁石用コンパウンド。

WO 2021/019784 A1

明 細 書

発明の名称：

希土類ボンド磁石用コンパウンド及びその製造方法、成形体及びその製造方法、並びに硬化物

技術分野

[0001] 本開示は、希土類ボンド磁石用コンパウンド及びその製造方法、成形体及びその製造方法、並びに硬化物に関する。

背景技術

[0002] 金属粉末及び樹脂組成物を含むコンパウンドは、金属粉末の諸物性に応じて、例えば、インダクタ、電磁波シールド、又はボンド磁石等の多様な工業製品の原材料として利用される（下記特許文献1～3参照）。

[0003] 中でも、金属粉末として希土類磁石粉末を用いた希土類磁石は、高い磁気特性を有しており、今日様々な分野で使用されている。希土類磁石は、使用する原料粉末、製造方法等により希土類焼結磁石と希土類ボンド磁石に大きく分類される。希土類焼結磁石は焼結工程にて寸法変化が大きく、後加工を要する等形状に制約がある。これに対し、希土類ボンド磁石は熱硬化時の寸法変化が少なく、高寸法精度を維持でき、加工レスで異形状を呈するため、形状の自由度が大きい。また、希土類ボンド磁石は、磁石粉末同士の間絶縁体である樹脂が存在しているため、電気抵抗が高いという利点を有している。

[0004] 希土類ボンド磁石は樹脂バインダを含むため、成形体密度が合金真密度（例えばネオジム鉄ボロン系ボンド磁石用粉末の合金真密度は 7.6 g/cm^3 ）に比べて低く、一般的に比較的バインダの量が少ない圧縮ボンド磁石であっても焼結磁石に比べて磁気特性が低くなる。その一方で、希土類ボンド磁石は、形状自由度、寸法精度、さらには他部材との一体成形が可能である等の特徴を生かし、幅広い環境下で使用される場面が増えている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開平8－273916号公報

特許文献2：特開2001－214054号公報

特許文献3：特開2004－31786号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] コンパウンドから希土類ボンド磁石を製造する場合、コンパウンドを型内へ供給及び充填する工程においてコンパウンドの流動性が要求される。また、製造された希土類ボンド磁石には、幅広い環境下での使用に耐えられる高い機械強度が要求される。しかし、従来のコンパウンドでは、希土類ボンド磁石を成形する際の優れた流動性を実現しようとした場合には、成形体の保形性が不十分となり、得られる希土類ボンド磁石の機械強度が低下するという問題があった。そのため、従来のコンパウンドでは、成形時の流動性と、成形後の機械強度とを高水準で両立させることが困難であった。

[0007] そこで、本開示は、成形時の流動性に優れると共に、機械強度に優れた希土類ボンド磁石を製造可能な、希土類ボンド磁石用コンパウンドを提供することを目的とする。また、本開示は、上記希土類ボンド磁石用コンパウンドの製造方法、成形体及びその製造方法、並びに硬化物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

[0008] 上記目的を達成するために、本開示は、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、硬化促進剤及びケイ素化合物を含む樹脂組成物と、Sm－Fe－N系合金粒子の表面の少なくとも一部がケイ素を含む無機被膜で覆われた被覆粒子と、を備える希土類ボンド磁石用コンパウンドを提供する。

[0009] 上記希土類ボンド磁石用コンパウンドによれば、Sm－Fe－N系合金粒子の表面の少なくとも一部がケイ素を含む無機被膜で覆われた被覆粒子を用いることで、被覆粒子の凝集が抑制され、また被覆粒子間、及び被覆粒子と

バイнда樹脂（エポキシ樹脂及びフェノール樹脂等）間に作用する摩擦力が低減される。その結果、ケイ素を含む無機被膜で覆われていない $\text{Sm}-\text{Fe}-\text{N}$ 系合金粒子を用いた場合と比較して、コンパウンドの流動性を大幅に向上させることができる。また、上記被覆粒子を用いた場合、成形体の保形性が低下し易い傾向があるが、上記コンパウンドによれば、上記被覆粒子と混合する樹脂組成物がケイ素化合物を含むことで、成形体の保形性の低下を抑制することができ、優れた機械強度を有する希土類ボンド磁石を得ることができる。これは、樹脂組成物中のケイ素化合物と被覆粒子表面のケイ素を含む無機被膜との親和性が高いことから、樹脂組成物と被覆粒子との界面の密着性が向上すること、及び、ケイ素化合物がバイнда樹脂のゲル化を進め、成形体を取り出す時点でのバイнда樹脂の強度が高まること、により、得られる希土類ボンド磁石において樹脂組成物の硬化物と被覆粒子との界面を起点としてクラック等が生じることを抑制できるためであると考えられる。そのため、上記コンパウンドによれば、成形時の流動性に優れると共に、機械強度に優れた希土類ボンド磁石を製造することができる。

[0010] 上記希土類ボンド磁石用コンパウンドにおいて、上記ケイ素化合物は、アミノ基を有するシランカップリング剤を含んでいてもよい。コンパウンドを構成する樹脂組成物がアミノ基を有するシランカップリング剤を含むことで、樹脂組成物と被覆粒子との界面の密着性がより一層向上するため、得られる希土類ボンド磁石において樹脂組成物の硬化物と被覆粒子との界面を起点としてクラック等が生じることをより一層抑制することができる。その結果、上記コンパウンドによれば、より優れた機械強度を有する希土類ボンド磁石を製造することができる。

[0011] 上記希土類ボンド磁石用コンパウンドにおいて、上記ケイ素化合物の含有量は、コンパウンドの固形分全量を基準として 1.0 質量%以上 2.0 質量%以下であってもよい。ケイ素化合物の含有量が上記範囲内であることで、成形時の流動性により優れると共に、機械強度により優れた希土類ボンド磁石を製造可能なコンパウンドを提供することができる。

- [0012] 上記希土類ボンド磁石用コンパウンドにおいて、上記Sm-F e-N系合金粒子は、球状であってもよい。Sm-F e-N系合金粒子が球状であることで、コンパウンドの流動性をより一層向上させることができる。また、Sm-F e-N系合金粒子が球状であると希土類ボンド磁石の機械強度が低下し易い傾向があるが、本開示の希土類ボンド磁石用コンパウンドによれば、希土類ボンド磁石の機械強度の低下を十分に抑制することができる。
- [0013] 上記希土類ボンド磁石用コンパウンドにおいて、上記Sm-F e-N系合金粒子の平均粒子径は、1 μm以上5 μm以下であってもよい。Sm-F e-N系合金粒子の平均粒子径が上記範囲内であることで、成形時の流動性により優れると共に、機械強度により優れた希土類ボンド磁石を製造可能なコンパウンドを提供することができる。
- [0014] 上記希土類ボンド磁石用コンパウンドにおいて、上記硬化促進剤は、ボレート塩及びボラン化合物のうちの少なくとも一種を含んでいてもよい。硬化促進剤としてボレート塩及びボラン化合物のうちの少なくとも一種を用いることで、コンパウンドの速硬化性及び保存安定性を向上させることができると共に、成形時のより優れた流動性及び得られる希土類ボンド磁石のより優れた機械強度を実現することができる。
- [0015] 本開示はまた、上記本開示の希土類ボンド磁石用コンパウンドを含む、成形体を提供する。
- [0016] 本開示はまた、上記本開示の希土類ボンド磁石用コンパウンドの硬化物を提供する。
- [0017] 本開示はまた、上記本開示の希土類ボンド磁石用コンパウンドを製造する方法であって、上記被覆粒子と、上記樹脂組成物とを、有機溶剤の存在下で混合し、乾燥させる工程を備える、希土類ボンド磁石用コンパウンドの製造方法を提供する。
- [0018] 本開示は更に、上記本開示の希土類ボンド磁石用コンパウンドを圧縮成形する工程を備える、成形体の製造方法を提供する。

発明の効果

[0019] 本開示によれば、成形時の流動性に優れると共に、機械強度に優れた希土類ボンド磁石を製造可能な、希土類ボンド磁石用コンパウンドを提供することができる。また、本開示によれば、上記希土類ボンド磁石用コンパウンドの製造方法、成形体及びその製造方法、並びに硬化物を提供することができる。

発明を実施するための形態

[0020] 以下、本開示の好適な実施形態について説明する。ただし、本開示は下記実施形態に何ら限定されるものではない。

[0021] <コンパウンド>

本実施形態に係る希土類ボンド磁石用コンパウンド（本明細書中、単に「コンパウンド」とも言う）は、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、硬化促進剤及びケイ素化合物を含む樹脂組成物と、 $\text{Sm}-\text{Fe}-\text{N}$ 系合金粒子の表面の少なくとも一部がケイ素を含む無機被膜で覆われた被覆粒子と、を備える。以下、コンパウンドを構成する各成分について詳細に説明する。

[0022] [樹脂組成物]

本実施形態のコンパウンドに使用される樹脂組成物は、希土類ボンド磁石の結合材としての機能を有する。樹脂組成物は、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、硬化促進剤、及び、ケイ素化合物を配合することによって作製される。

[0023] (エポキシ樹脂)

エポキシ樹脂は、例えば、1分子中に2個以上のエポキシ基を有するエポキシ樹脂である。そのようなエポキシ樹脂には、例えば、ビフェニル型エポキシ樹脂、スチルベン型エポキシ樹脂、ジフェニルメタン型エポキシ樹脂、硫黄原子含有型エポキシ樹脂、ノボラック型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、サリチルアルデヒド型エポキシ樹脂、ナフトール類とフェノール類との共重合型エポキシ樹脂、アラルキル型フェノール樹脂のエポキシ化物、ビスフェノール型エポキシ樹脂、アルコール類のグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、パラキシリレン及び／又はメタキシリレン変性フ

エノール樹脂のグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、テルペン変性フェノール樹脂のグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、シクロペンタジエン型エポキシ樹脂、多環芳香環変性フェノール樹脂のグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、ナフタレン環含有フェノール樹脂のグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、グリシジルエステル型エポキシ樹脂、グリシジル型又はメチルグリシジルのエポキシ樹脂、脂環型エポキシ樹脂、ハロゲン化フェノールノボラック型エポキシ樹脂、ハイドロキノン型エポキシ樹脂、トリメチロールプロパン型エポキシ樹脂及びオレフィン結合を過酢酸等の過酸で酸化して得られる線状脂肪族エポキシ樹脂等が挙げられる。これらを単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0024] ビフェニル型エポキシ樹脂は、ビフェニル骨格を有するエポキシ樹脂であれば特に限定されないが、例えば、アルキル置換又は非置換のビフェノールのエポキシ樹脂である。

[0025] スチルベン型エポキシ樹脂は、スチルベン骨格を有するエポキシ樹脂であれば特に限定されないが、例えば、スチルベン系フェノール類等のジグリシジルエーテル型エポキシ樹脂である。

[0026] ジフェニルメタン型エポキシ樹脂は、ジフェニルメタン骨格を有するエポキシ樹脂であれば特に限定されない。

[0027] ノボラック型エポキシ樹脂は、ノボラック樹脂をエポキシ化した樹脂であり、フェノール類及び／又はナフトール類とアルデヒド基を有する化合物とを酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られる。フェノール類には、例えば、フェノール、クレゾール、キシレノール、レゾルシン、カテコール、ビスフェノールA及びビスフェノールF等が挙げられる。ナフトール類には、例えば、 α -ナフトール、 β -ナフトール及びジヒドロキシナフタレン等が挙げられる。アルデヒド基を有する化合物には、例えば、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、ベンズアルデヒド及びサリチルアルデヒド等が挙げられる。ノボラック型エポキシ樹脂には、例えば、フェノールノボラック型エポキシ樹脂及びオルソクレゾールノボラック型エポキ

シ樹脂等が挙げられる。これらを単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0028] ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂は、ジシクロペンタジエン骨格を有する化合物を原料としてエポキシ化したエポキシ樹脂であれば特に限定されない。

[0029] サリチルアルデヒド型エポキシ樹脂は、サリチルアルデヒド骨格を持つ化合物を原料とするエポキシ樹脂であれば特に制限はない。

[0030] ナフトール類とフェノール類との共重合型エポキシ樹脂は、ナフトール骨格を有する化合物及びフェノール骨格を有する化合物を原料とするエポキシ樹脂であれば、特に限定されない。

[0031] アラルキル型フェノール樹脂のエポキシ化物には、例えば、フェノールアラルキル樹脂及びナフトールアラルキル樹脂等のエポキシ化物などが挙げられる。これらを単独で用いても2種を組み合わせ用いてもよい。

[0032] ビスフェノール型エポキシ樹脂には、例えば、ビスフェノールA、ビスフェノールF及びビスフェノールS等が挙げられる。これらを単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0033] アルコール類のグリシジルエーテル型エポキシ樹脂は、例えば、ブタンジオール、ポリエチレングリコール及びポリプロピレングリコール等のグリシジルエーテル型エポキシ樹脂である。これらを単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0034] グリシジルエステル型エポキシ樹脂は、例えば、フタル酸、イソフタル酸及びテトラヒドロフタル酸等のカルボン酸類のグリシジルエステル型エポキシ樹脂である。これらを単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0035] グリシジル型又はメチルグリシジル型のエポキシ樹脂は、例えば、アニリン及びイソシアヌル酸等の窒素原子に結合した活性水素をグリシジル基で置換したグリシジル型又はメチルグリシジル型のエポキシ樹脂である。

[0036] 脂環型エポキシ樹脂には、例えば、分子内のオレフィン結合をエポキシ化

して得られるビニルシクロヘキセンジエポキシド、3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル-3, 4-エポキシシクロヘキサンカルボキシレート及び2-(3, 4-エポキシ)シクロヘキシル-5, 5-スピロ(3, 4-エポキシ)シクロヘキサン-m-ジオキサン等が挙げられる。これらを単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0037] 上記エポキシ樹脂の中でも、耐水性、耐溶剤性及び耐オイル性の観点から、ビフェニル型エポキシ樹脂、スチルベン型エポキシ樹脂、ジフェニルメタン型エポキシ樹脂、硫黄原子含有型エポキシ樹脂、及び、アラルキル型フェノール樹脂のエポキシ化物がより好ましい。硫黄原子含有型エポキシ樹脂は、硫黄原子を含有するエポキシ樹脂であれば特に限定されない。より好ましいアラルキル型フェノール樹脂のエポキシ化物には、例えば、フェノールアラルキル樹脂、ナフトールアラルキル樹脂及びビフェニル型フェノールアラルキル樹脂等のアラルキル型フェノール樹脂のエポキシ化物等が挙げられる。このアラルキル型フェノール樹脂のエポキシ化物は、フェノール及びクレゾール等のフェノール類及び／又はナフトール及びジメチルナフトール等のナフトール類と、ジメトキシパラキシレン、ビス(メトキシメチル)ビフェニル及びこれらの誘導体等とから合成されるフェノール樹脂を原料とするエポキシ樹脂であれば、特に限定されない。これらを単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0038] 上記エポキシ樹脂の中でも、高温機械強度の観点からは、ノボラック型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、サリチルアルデヒド型エポキシ樹脂及びナフトール類とフェノール類との共重合型エポキシ樹脂がより好ましい。より好ましいノボラック型エポキシ樹脂には、例えば、フェノールノボラック、クレゾールノボラック及びナフトールノボラック等のノボラック型フェノール樹脂をグリリシジルエーテル化等の手法を用いてエポキシ化したエポキシ樹脂等が挙げられる。これらを単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0039] また、耐熱性の観点から、ナフタレン構造を有するエポキシ樹脂を用いて

もよい。ナフタレン構造を有するエポキシ樹脂としては、例えばナフタレン骨格にグリシジル基が結合したものが挙げられる。ナフタレン構造を有するエポキシ樹脂は、2官能型、3官能型又は4官能型であってもよい。ナフタレン構造を有するエポキシ樹脂におけるナフタレン骨格の数は1以上とすることができるが、2以上であることが好ましい。また、当該ナフタレン骨格の数の上限は8とすることができる。ナフタレン構造を有するエポキシ樹脂を樹脂組成物中に含めることで、高温における希土類ボンド磁石の機械強度の低下を抑制することができる。

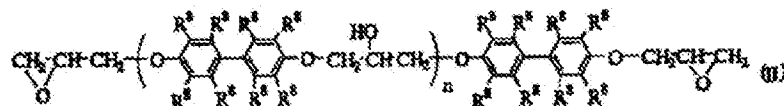
[0040] ナフタレン構造を有するエポキシ樹脂としては、室温及び高温での機械強度により優れる観点から、例えばナフタレンジエポキシ化合物、ナフチレンエーテル型エポキシ樹脂、ナフタレンノボラック型エポキシ樹脂、ナフタレンジエポキシ化合物のメチレン結合二量体、ナフタレンモノエポキシ化合物とナフタレンジエポキシ化合物のメチレン結合体等が挙げられる。ナフタレン構造を有するエポキシ樹脂としては、具体的には、HP-4032、HP-4032D、HP-4700、HP-4750、EXA-7311-G4、EXA-7734-G4、EXA-9540（以上、DIC株式会社製、商品名）等が挙げられる。これらを単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0041] エポキシ樹脂は、上述のより好ましいエポキシ樹脂以外のエポキシ樹脂を含んでもよい。しかし、上述のより好ましいエポキシ樹脂の性能を十分に発揮させるために、エポキシ樹脂中の上述のより好ましいエポキシ樹脂の含有量は、エポキシ樹脂全体の質量に対して、好ましくは30質量%以上であり、より好ましくは、50質量%以上である。

[0042] ビフェニル型エポキシ樹脂は、さらに好ましくは、下記一般式(11)で示されるエポキシ樹脂である。下記一般式(11)で示されるエポキシ樹脂の中で市販されているものには、例えば、YX-4000H（三菱ケミカル株式会社製、商品名、R⁸のうち酸素原子が置換している位置を4及び4'位とした時の3, 3', 5, 5'位がメチル基でそれ以外が水素原子である化

合物) 及び Y L - 6 1 2 1 H (三菱ケミカル株式会社製、商品名、全ての R⁸ が水素原子である 4, 4' - ビス (2, 3 - エポキシプロポキシ) ビフェニルと、R⁸ のうち酸素原子が置換している位置を 4 及び 4' 位とした時の 3, 3', 5, 5' 位がメチル基でそれ以外が水素原子である化合物との混合物) 等が挙げられる。

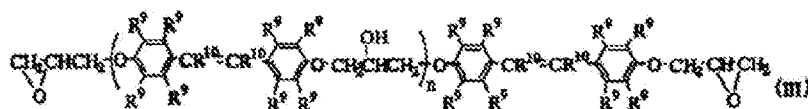
[化1]



(式 (I) 中、R⁸ は水素原子又は炭素数 1 ~ 12 のアルキル基又は炭素数 4 ~ 18 のアリール基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよく、n は平均値であり、0 ~ 20 の整数、小数又は帯小数を示す。)

[0043] スチルベン型エポキシ樹脂は、さらに好ましくは、下記一般式 (I I I) で示されるエポキシ樹脂である。下記一般式 (I I I) で示されるエポキシ樹脂の中で市販されているものは、例えば、E S L V - 2 1 0 (住友化学工業株式会社製、商品名、R⁹ のうち酸素原子が置換している位置を 4 及び 4' 位とした時の 3, 3', 5, 5' 位がメチル基でそれ以外が水素原子であり、R¹⁰ の全てが水素原子である化合物と、3, 3', 5, 5' 位のうちの 3 つがメチル基、1 つが t e r t - ブチル基でそれ以外が水素原子であり、R¹¹ の全てが水素原子である化合物との混合物) 等が挙げられる。

[化2]



(式 (I I I) 中、R⁹ 及び R¹⁰ は、それぞれ独立して、水素原子又は炭素数 1 ~ 18 の 1 価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよく、n は平均値であり、0 ~ 20 の整数、小数又は帯小数を示す。)

[0044] 「炭素数 1 ~ 18 の 1 価の有機基」は、炭素数 1 ~ 18 を有し、かつ置換

されても又は非置換であってもよい脂肪族炭化水素基、芳香族炭化水素基、脂肪族炭化水素オキシ基、芳香族炭化水素オキシ基、カルボニル基、オキシカルボニル基及びカルボニルオキシ基からなる群から選択される少なくとも1種類を含むことを意味する。

[0045] 上記脂肪族炭化水素オキシ基には、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、*n*-ブトキシ基、*sec*-ブトキシ基、*tert*-ブトキシ基、シクロプロピルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、アリルオキシ基及びビニルオキシ基等の上述の脂肪族炭化水素基に酸素原子が結合した構造のオキシ基並びにそれらをアルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アミノ基及びハロゲン原子等で置換したものなどが挙げられる。上記芳香族炭化水素オキシ基には、例えば、フェノキシ基、メチルフェノキシ基、エチルフェノキシ基、メトキシフェノキシ基、ブトキシフェノキシ基及びフェノキシフェノキシ基等の上述の芳香族炭化水素基に酸素原子が結合した構造のオキシ基など、並びにそれらをアルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アミノ基及びハロゲン原子等で置換したものなどが挙げられる。

[0046] 上記カルボニル基には、例えば、ホルミル基、アセチル基、エチルカルボニル基、ブチリル基、シクロヘキシルカルボニル基及びアリルカルボニル等の脂肪族炭化水素カルボニル基、フェニルカルボニル基及びメチルフェニルカルボニル基等の芳香族炭化水素カルボニル基など、並びにそれらをアルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アミノ基及びハロゲン原子等で置換したものなどが挙げられる。

[0047] 上記オキシカルボニル基には、例えば、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、ブトキシカルボニル基、アリルオキシカルボニル基及びシクロヘキシルオキシカルボニル基等の脂肪族炭化水素オキシカルボニル基、フェノキシカルボニル基及びメチルフェノキシカルボニル基等の芳香族炭化水素オキシカルボニル基など、並びにそれらをアルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アミノ基及びハロゲン原子等が置換したもの

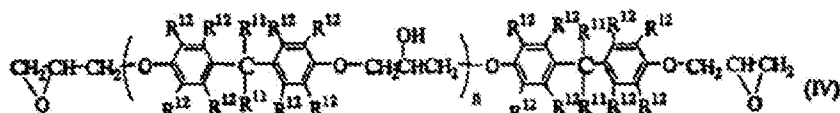
などが挙げられる。

[0048] 上記カルボニルオキシ基としては、例えば、メチルカルボニルオキシ基、エチルカルボニルオキシ基、ブチルカルボニルオキシ基、アリルカルボニルオキシ基及びシクロヘキシルカルボニルオキシ基等の脂肪族炭化水素カルボニルオキシ基、フェニルカルボニルオキシ基及びメチルフェニルカルボニルオキシ基等の芳香族炭化水素カルボニルオキシ基など、並びにそれらをアルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アミノ基及びハロゲン原子等で置換したものなどが挙げられる。

[0049] 一般式 (I I) ~ (I I I) 及び以下の一般式 (I V) ~ (X I) 中の $R^8 \sim R^{21}$ 及び $R^{37} \sim R^{41}$ について、「それぞれ全てが同一でも異なってもよい」とは、例えば、式 (I I) 中の 8 ~ 168 個の R^8 の全てが同一でも異なってもよいことを意味している。他の $R^9 \sim R^{21}$ 及び $R^{37} \sim R^{41}$ についても、式に含まれるそれぞれの個数について全てが同一でも異なってもよいことを意味している。また、 $R^8 \sim R^{21}$ 及び $R^{37} \sim R^{41}$ はそれぞれが同一でも異なってもよい。例えば、 R^9 と R^{10} の全てについて同一でも異なってもよい。また、本明細書において、他の「それぞれ全てが同一でも異なってもよい」の部分についても、上記と同じことを意味している。

[0050] ジフェニルメタン型エポキシ樹脂は、さらに好ましくは、下記一般式 (I V) で示されるエポキシ樹脂である。下記一般式 (I V) で示されるエポキシ樹脂の中で市販されているものは、例えば、YSLV-80XY (日鉄ケミカル&マテリアル株式会社製、商品名、 R^{11} の全てが水素原子であり、 R^{12} のうち酸素原子が置換している位置を 4 及び 4' 位とした時の 3, 3', 5, 5' 位がメチル基でそれ以外が水素原子である化合物) 等が挙げられる。

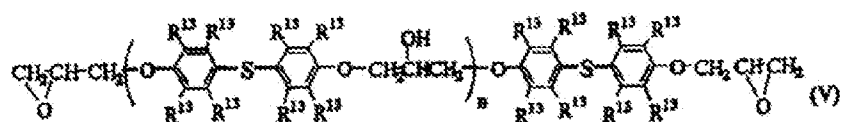
[化3]



(式 (I V) 中、 R^{11} 及び R^{12} は、それぞれ独立して、水素原子又は炭素数 1 ～ 18 の 1 価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよく、 n は平均値であり、0 ～ 20 の整数、小数又は帯小数を示す。)

[0051] 硫黄原子含有型エポキシ樹脂は、さらに好ましくは、下記一般式 (V) で示されるエポキシ樹脂である。下記一般式 (V) で示されるエポキシ樹脂の中で市販されているものは、例えば、YSLV-120TE (日鉄ケミカル & マテリアル株式会社、商品名、 R^{13} のうち酸素原子が置換している位置を 4 及び 4' 位とした時の 3, 3' 位が *tert*-ブチル基で 6, 6' 位がメチル基でそれ以外が水素原子である化合物) 等が挙げられる。

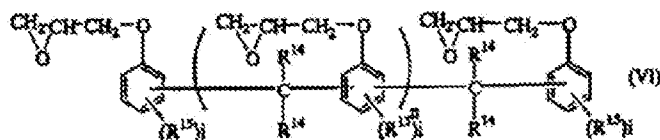
[化4]



(式 (V) 中、 R^{13} は水素原子又は炭素数 1 ～ 18 の 1 価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよく、 n は平均値であり、0 ～ 20 の整数、小数又は帯小数を示す。)

[0052] フェノールノボラック、クレゾールノボラック、ナフトールノボラック等のノボラック型フェノール樹脂をグリリシジルエーテル化等の手法を用いてエポキシ化したエポキシ樹脂は、さらに好ましくは、下記一般式 (VI) で示されるエポキシ樹脂がより好ましい。下記一般式 (VI) で示されるエポキシ樹脂の中で市販されているものには、例えば、ESC N-190、ESC N-195 (住友化学株式会社製、商品名、どちらも、 R^{14} の全てが水素原子であり、 R^{15} がメチル基であり、 $i = 1$ である化合物) 等が挙げられる。

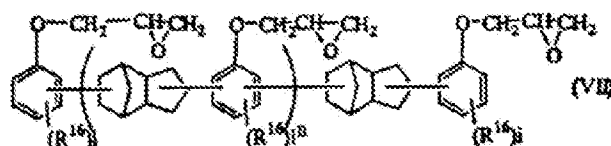
[化5]



(式(VI)中、 R^{14} 及び R^{15} は、それぞれ独立して、水素原子又は炭素数1～18の1価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよく、 i は0～3の整数を示し、 n は平均値であり、0～20の整数、小数又は帯小数を示し、 i はそれぞれ全て同一でも異なってもよい。)

[0053] ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂は、さらに好ましくは、下記一般式(VII)で示されるエポキシ樹脂である。下記一般式(VII)で示されるエポキシ樹脂の中で市販されているものは、例えば、HP-7200(DIC株式会社製、商品名、 $i=0$ である化合物)等が挙げられる。

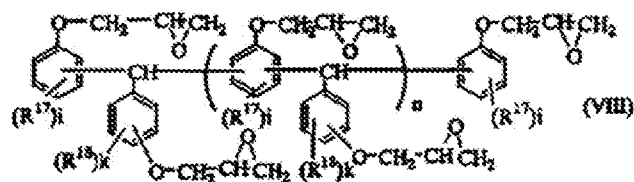
[化6]



(式(VII)中、 R^{16} は水素原子又は炭素数1～18の1価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよく、 i は0～3の整数を示し、 n は平均値であり、0～20の整数、小数又は帯小数を示し、 i はそれぞれ全て同一でも異なってもよい。)

[0054] サリチルアルデヒド型エポキシ樹脂は、さらに好ましくは、サリチルアルデヒド骨格を持つ化合物とフェノール性水酸基を有する化合物との反応物(ノボラック型フェノール樹脂等のサリチルアルデヒド型フェノール樹脂)をグリシジルエーテル化したエポキシ樹脂などのサリチルアルデヒド型エポキシ樹脂であり、例えば、下記一般式(VIII)で示されるエポキシ樹脂である。下記一般式(VIII)で示されるエポキシ樹脂の中で市販されているものには、例えば、EPPN-502H(日本化薬株式会社製、商品名)、1032H60(三菱ケミカル株式会社製、商品名、 $i=0$ 、 $k=0$ である化合物)及びEPPN-502H(日本化薬株式会社製、商品名)等が挙げられる。

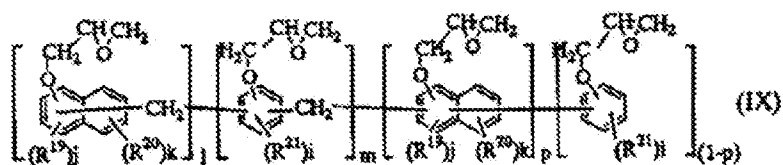
[化7]



(式(VIII)中、 R^{17} 及び R^{18} は、それぞれ独立して、水素原子又は炭素数1～18の1価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよく、 i は0～3の整数を示し、 k は0～4の整数を示し、 n は平均値であり、0～20の整数、小数又は帯小数を示し、 i 及び k はそれぞれ全て同一でも異なってもよい。)

[0055] ナフトール類とフェノール類との共重合型エポキシ樹脂は、さらに好ましくは、ナフトール骨格を有する化合物及びフェノール骨格を有する化合物を用いたノボラック型フェノール樹脂をグリシジルエーテル化したものであり、例えば、下記一般式(IX)で示されるエポキシ樹脂である。下記一般式(IX)で示されるエポキシ樹脂の中で市販されているものは、例えば、NC-7300(日本化薬株式会社製、商品名、 R^{21} がメチル基で $i=1$ であり、 $j=0$ 、 $k=0$ である化合物)等が挙げられる。

[化8]

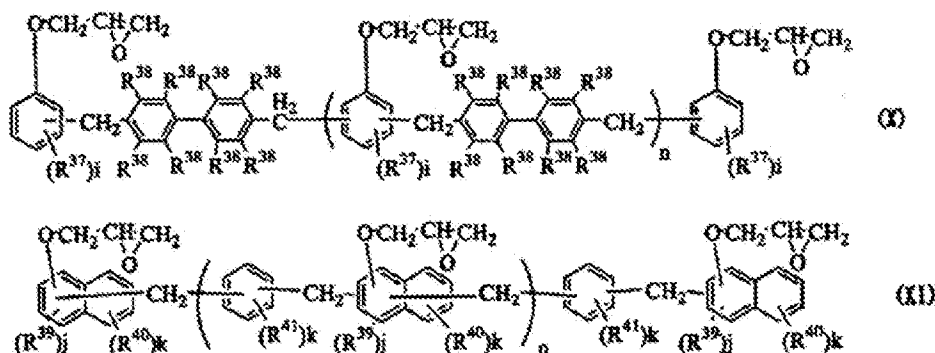


(式(IX)中、 $R^{19} \sim R^{21}$ は、それぞれ独立して、水素原子又は炭素数1～18の1価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよく、 i は0～3の整数を示し、 j は0～2の整数を示し、 k は0～4の整数を示し、 p は平均値で0～1の整数又は小数を示し、 l 、 m はそれぞれ平均値で0～21の整数、小数又は帯小数であり、 $(l+m)$ は1～21の整数又は帯小数を示し、 j 及び k はそれぞれ全て同一でも異なってもよい。)

[0056] 上記一般式 (I X) で示されるエポキシ樹脂としては、1 個の構成単位及び m 個の構成単位をランダムに含むランダム共重合体、交互に含む交互共重合体、規則的に含む共重合体、ブロック状に含むブロック共重合体が挙げられ、これらのいずれか 1 種を単独で用いても、2 種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0057] フェノールアラルキル樹脂、ナフトールアラルキル樹脂、ビフェニル型フェノールアラルキル樹脂等のアラルキル型フェノール樹脂のエポキシ化物は、好ましくは、フェノール及びクレゾール等のフェノール類及び／又はナフトール及びジメチルナフトール等のナフトール類とジメトキシパラキシレン、ビス(メトキシメチル)ビフェニル及びこれらの誘導体等とから合成されるフェノール樹脂をグリシジルエーテル化したものであり、例えば、下記一般式 (X) 及び (XI) で示されるエポキシ樹脂である。下記一般式 (X) で示されるエポキシ樹脂の中で市販されているものは、例えば、NC-3000 (日本化薬株式会社製、商品名、 $i = 0$ 、 R^{38} が水素原子である化合物) 及び CER-3000 (日本化薬株式会社製、商品名、 $i = 0$ 、 R^{38} が水素原子であるエポキシ樹脂と、一般式 (I I) の全ての R^8 が水素原子であるエポキシ樹脂とを質量比 80 : 20 で混合した混合品) 等が挙げられる。また、下記一般式 (XI) で示されるエポキシ樹脂の中で市販されているものは、例えば、ESN-175 (日鉄ケミカル&マテリアル株式会社製、商品名、 $i = 0$ 、 $j = 0$ 、 $k = 0$ である化合物) 等が挙げられる。

[化9]



(式 (X) 及び (X I) において、 $R^{37} \sim R^{41}$ は、それぞれ独立して、水素原子又は炭素数 1 ～ 18 の 1 価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよく、 i は 0 ～ 3 の整数を示し、 j は 0 ～ 2 の整数を示し、 k は 0 ～ 4 の整数を示し、 n は平均値であり、0 ～ 20 の整数、小数又は帯小数を示し、 i 、 j 及び k はそれぞれ全て同一でも異なってもよい。)

[0058] 上記一般式 (I I) ～ (X I) 中の n は、平均値で、好ましくは 0 ～ 20 の整数、小数又は帯小数である。 n が 0 ～ 20 であると、エポキシ樹脂の溶融粘度を低減でき、希土類ボンド磁石用コンパウンドの溶融成形時の粘度も低減できるため、粘度が高いことに起因した成形性の悪化の発生を抑制することができる。1 分子中の平均 n は 0 ～ 10 の範囲に設定されることがより好ましい。

[0059] 上記一般式 (I I) ～ (X I) で示されるエポキシ樹脂の中で、より好ましいエポキシ樹脂は、高温機械強度の観点からは、上記一般式 (V I) ～ (V I I I) で示されるエポキシ樹脂である。

[0060] (フェノール樹脂)

フェノール樹脂は、エポキシ樹脂の硬化剤として機能する。フェノール樹脂としては特に制限はないが、例えば、硬化剤として一般に使用される 1 分子中に 2 個以上のフェノール性水酸基を有するフェノール樹脂が挙げられる。フェノール樹脂には、例えば、1 分子中に 2 個のフェノール性水酸基を有する化合物、アラルキル型フェノール樹脂、ジシクロペンタジエン型フェノール樹脂、サリチルアルデヒド型フェノール樹脂、ノボラック型フェノール樹脂、ベンズアルデヒド型フェノールとアラルキル型フェノールとの共重合型フェノール樹脂、パラキシリレン及び／又はメタキシリレン変性フェノール樹脂、メラミン変性フェノール樹脂、テルペン変性フェノール樹脂、ジシクロペンタジエン型ナフトール樹脂、シクロペンタジエン変性フェノール樹脂、多環芳香環変性フェノール樹脂、ビフェニル型フェノール樹脂、トリフェニルメタン型フェノール樹脂、並びにこれらの 2 種以上を共重合して得たフェノール樹脂等が挙げられる。これらを単独で用いても 2 種以上を組み合

わせて用いてもよい。なお、1分子中に2個のフェノール性水酸基を有する化合物には、例えば、レゾルシン、カテコール、ビスフェノールA、ビスフェノールF及び置換又は非置換のビフェノール等が挙げられる。

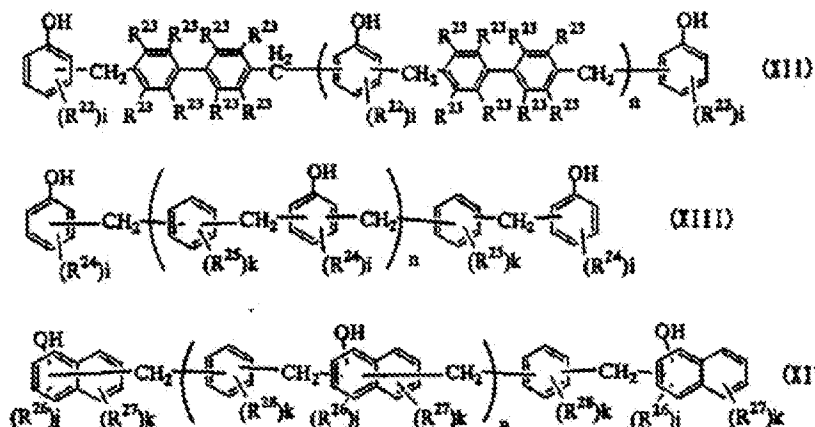
[0061] 上述のフェノール樹脂の中で、耐水性、耐溶剤性及び耐オイル性の観点から、好ましくは、アラルキル型フェノール樹脂及びベンズアルデヒド型フェノールとアラルキル型フェノールとの共重合型フェノール樹脂である。また、上述のフェノール樹脂の中で、高温機械強度の観点からは、好ましくは、ジシクロペンタジエン型フェノール樹脂、サリチルアルデヒド型フェノール樹脂及びノボラック型フェノール樹脂である。これらアラルキル型フェノール樹脂、ジシクロペンタジエン型フェノール樹脂、サリチルアルデヒド型フェノール樹脂、ベンズアルデヒド型フェノールとアラルキル型フェノールとの共重合型フェノール樹脂及びノボラック型フェノール樹脂を、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0062] また、フェノール樹脂の全部が上述の好ましいフェノール樹脂である必要はなく、フェノール樹脂の一部が上述の好ましいフェノール樹脂であってもよい。この場合、フェノール樹脂中の上述の好ましいフェノール樹脂の含有量は、その性能を十分に発揮する観点から、フェノール樹脂の全質量に対して、好ましくは、30質量%以上であり、より好ましくは、50質量%以上である。

[0063] アラルキル型フェノール樹脂は、フェノール類及び／又はナフトール類と、ジメトキシパラキシレン、ビス（メトキシメチル）ビフェニル又はこれらの誘導体とから合成されるフェノール樹脂であれば特に限定されない。アラルキル型フェノール樹脂は、好ましくは、下記一般式（XⅠⅠ）～（XⅠⅤ）で示されるフェノール樹脂である。

[0064]

[化10]

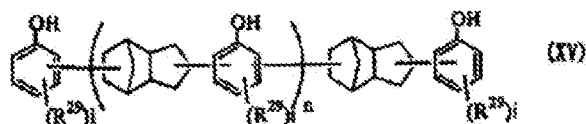


(式 (X I I) ~ (X I V) において、 $R^{22} \sim R^{28}$ は、それぞれ独立して、水素原子又は炭素数 1 ~ 18 の 1 価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよく、 i は 0 ~ 3 の整数を示し、 k は 0 ~ 4 の整数を示し、 j は 0 ~ 2 の整数を示し、 n は平均値であり、0 ~ 20 の整数、小数又は帯小数を示し、 i 、 j 、 k 及び n はそれぞれ全て同一でも異なってもよい。)

- [0065] 上記一般式 (X I I) で示されるフェノール樹脂の中で市販されているものは、例えば、MEH-7851 (明和化成株式会社、商品名、 $i = 0$ 、 R^{23} が全て水素原子である化合物) 等が挙げられる。
- [0066] 上記一般式 (X I I I) で示されるフェノール樹脂の中で市販されているものには、例えば、XLC (三井化学株式会社製、商品名、 $i = 0$ 、 $k = 0$ である化合物)、XL-225 (三井化学株式会社製、商品名) 及び MEH-7800 (明和化成株式会社製、商品名) 等が挙げられる。
- [0067] 上記一般式 (X I V) で示されるフェノール樹脂の中で市販されているものは、例えば、SN-170 (日鉄ケミカル & マテリアル株式会社製、商品名、 $j = 0$ 、 R^{27} の $k = 0$ 、 R^{28} の $k = 0$ である化合物) 等が挙げられる。
- [0068] ジシクロペンタジエン型フェノール樹脂は、ジシクロペンタジエン骨格を有する化合物を原料として用いたフェノール樹脂であれば特に限定されない。ジシクロペンタジエン型フェノール樹脂は、好ましくは、下記一般式 (X

V) で示されるフェノール樹脂である。下記一般式 (X V) で示されるフェノール樹脂の中で市販されているものは、例えば、D P P (新日本石油化学株式会社製、商品名、 $i = 0$ である化合物) 等が挙げられる。

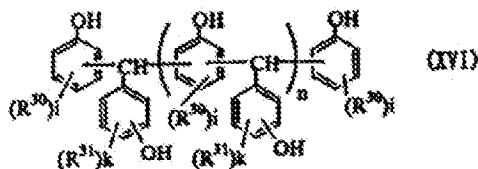
[化11]



(式 (X V) 中、 R^{29} は水素原子又は炭素数 1 ～ 1 8 の 1 価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよく、 i は 0 ～ 3 の整数を示し、 n は平均値であり、0 ～ 2 0 の整数、小数又は帯小数を示し、 i はそれぞれ全て同一でも異なってもよい。)

[0069] サリチルアルデヒド型フェノール樹脂は、サリチルアルデヒド骨格を有する化合物を原料として用いたフェノール樹脂であれば特に限定されない。サリチルアルデヒド型フェノール樹脂は、好ましくは、下記一般式 (X V I) で示されるフェノール樹脂である。下記一般式 (X V I) で示されるフェノール樹脂の中で市販されているものは、例えば、M E H - 7 5 0 0 (明和化成株式会社製、商品名、 $i = 0$ 、 $k = 0$ である化合物) 等が挙げられる。

[化12]

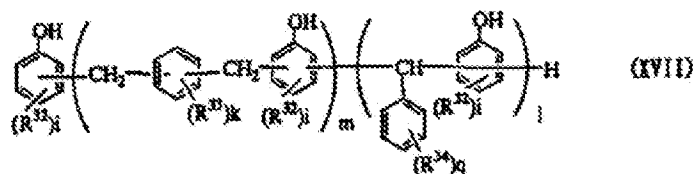


(式 (X V I) 中、 R^{30} 及び R^{31} は、それぞれ独立して、水素原子又は炭素数 1 ～ 1 8 の 1 価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよく、 i は 0 ～ 3 の整数を示し、 k は 0 ～ 4 の整数を示し、 n は平均値であり、0 ～ 2 0 の整数、小数又は帯小数を示し、 i 及び k はそれぞれ全て同一でも異なってもよい。)

[0070] ベンズアルデヒド型とアラルキル型との共重合型フェノール樹脂は、ベン

ズアルデヒド骨格を有する化合物を原料として用いたフェノール樹脂とアラ
ルキル型フェノール樹脂との共重合型フェノール樹脂であれば特に限定され
ない。ベンズアルデヒド型とアラルキル型との共重合型フェノール樹脂は、
好ましくは、下記一般式（X V I I）で示されるフェノール樹脂である。下
記一般式（X V I I）で示されるフェノール樹脂の中で市販されているもの
は、例えば、H E - 5 1 0（エア・ウォーター・ケミカル株式会社製、商品
名、 $i = 0$ 、 $k = 0$ 、 $q = 0$ である化合物）等が挙げられる。

[化13]

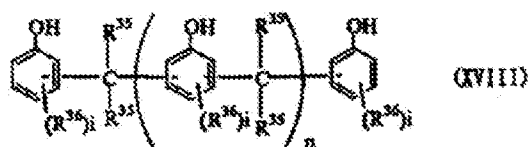


（式（X V I I）中、 $R^{32} \sim R^{34}$ は、それぞれ独立して、水素原子又は炭素
数 1 ～ 1 8 の 1 価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なっても
よく、 i は 0 ～ 3 の整数を示し、 k は 0 ～ 4 の整数を示し、 q は 0 ～ 5 の整
数を示し、 l 、 m はそれぞれ平均値で 0 ～ 2 1 の整数、小数又は帯小数であ
り（ $l + m$ ）は 1 ～ 2 1 の正数を示し、 i はそれぞれ全て同一でも異なっ
てもよい。）

[0071] ノボラック型フェノール樹脂には、例えば、フェノール、クレゾール、キ
シレノール、レゾルシン、カテコール、ビスフェノール A、ビスフェノール
F、フェニルフェノール及びアミノフェノール等のフェノール類及び／又は
 α -ナフトール、 β -ナフトール及びジヒドロキシナフタレン等のナフトール
類とホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、ベン
ズアルデヒド及びサリチルアルデヒド等のアルデヒド類とを酸性触媒下で縮
合又は共縮合させて得られるものなどが挙げられる。ノボラック型フェノール
樹脂は、上記フェノール類及び／又は上記ナフトール類と上記アルデヒド
類とを酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られるフェノール樹脂であれば
特に限定されない。ノボラック型フェノール樹脂は、好ましくは、下記一般

式 (X V I I I) で示されるフェノール樹脂である。下記一般式 (X V I I I) で示されるフェノール樹脂の中で市販されているものには、例えば、タマノル 7 5 8、7 5 9 (荒川化学工業株式会社製、商品名、 $i = 0$ 、 R^{35} が全て水素原子である化合物) 及び H P - 8 5 0 N (日立化成株式会社製、商品名) 等が挙げられる。

[化14]



(式 (X V I I) 中、 R^{35} 及び R^{36} は、それぞれ独立して、水素原子又は炭素数 1 ~ 1 8 の 1 価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよく、 i は 0 ~ 3 の整数を示し、 k は 0 ~ 4 の整数を示し、 n は平均値であり、0 ~ 2 0 の整数、小数又は帯小数を示し、 i はそれぞれ全て同一でも異なってもよい。)

[0072] 上記一般式 (X I I) ~ (X V I I I) における n は、好ましくは 0 ~ 2 0 の範囲である。 n が 0 ~ 2 0 の範囲であると、フェノール樹脂の熔融粘度が高くなりすぎないようにし、コンパウンドの成形性を良好にすることができる。平均 n は 0 ~ 1 0 の範囲であることがより好ましい。

[0073] 本実施形態の希土類ボンド磁石用コンパウンドにおいて、エポキシ樹脂とフェノール樹脂との配合比率は、全エポキシ樹脂のエポキシ当量に対する全フェノール樹脂の水酸基当量の比率 (フェノール樹脂中の水酸基数 / エポキシ樹脂中のエポキシ基数) で、0. 5 ~ 2. 0 であることが好ましく、0. 7 ~ 1. 5 であることがより好ましく、0. 8 ~ 1. 3 であることがさらに好ましい。上記比率が 0. 5 ~ 2. 0 であると、エポキシ樹脂は十分に硬化し、硬化物の耐熱性及び機械強度が良好になる。

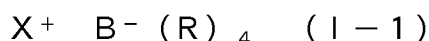
[0074] (硬化促進剤)

硬化促進剤は、例えば、エポキシ樹脂と反応してエポキシ樹脂の硬化を促進させる組成物であれば限定されない。硬化促進剤は、1 種を単独で用いて

も2種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0075] 硬化促進剤は、例えば、ボレート塩及びボラン化合物のうちの少なくとも一種を含んでいてもよい。硬化促進剤としてボレート塩及びボラン化合物のうちの少なくとも一種を含むコンパウンドは、他の硬化促進剤（例えば、イミダゾール類）を含むコンパウンドに比べて、流動性、保存安定性及び成形性に優れている。

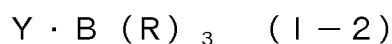
[0076] 硬化促進剤として用いられるボレート塩は、下記一般式（1-1）で表される化合物であってよい。



（一般式（1-1）中、Xは、アルキルホスホニウム塩、アリールホスホニウム塩、イミダゾール塩、イミダゾール誘導体の塩、3級アミン塩及び4級アンモニウム塩からなる群より選ばれる少なくとも一種を示し、Bはホウ素を示し、Rは、アルキル基、アリール基及びフルオロ基からなる群より選ばれる少なくとも一種を示す。）

[0077] 一般式（1-1）で表されるボレート塩は、例えば、テトラブチルホスフォニウムテトラフェニルボレート、テトラフェニルホスホニウム・テトラキス（4-メチルフェニル）ボレート、テトラフェニルホスホニウム・テトラフェニルボレートテトラフェニルホスホニウム・テトラ-p-トリルボレート、及びトリ-tert-ブチルホスホニウム・テトラフェニルボレート、トリフェニルホスフィン-ベンゾキノン・テトラフェニルホスホニウム、テトラフェニルホスホニウム・テトラキス（4-メチルフェニル）ボレート、テトラ（n-ブチル）ホスホニウムテトラフェニルボレートから選ばれる少なくとも一種であってよい。

[0078] 硬化促進剤として用いられるボラン化合物は、下記一般式（1-2）で表される化合物であってよい。



（一般式（1-2）中、Yはアルキルホスフィン、アリールホスフィン、イミダゾール、イミダゾール誘導体及び3級アミンからなる群より選ばれる少

なくとも一種を示し、Bはホウ素を示し、Rはアルキル基、アリール基及びフルオロ基からなる群より選ばれる少なくとも一種を示す。)

[0079] 一般式(1-2)で表されるボラン化合物は、例えば、トリフェニルホスフィントリフェニルボラン、2-メチルイミダゾールトリフェニルボラン、及びトリエタノールアミントリフェニルホスフィンから選ばれる少なくとも一種であってよい。

[0080] 硬化促進剤は、例えば、イミダゾール類を含んでいてもよい。硬化促進剤として用いられるイミダゾール類は、アルキル基置換イミダゾール、又はベンゾイミダゾール等であってよい。イミダゾール類の活性化温度は、上述のボレート塩及びボラン化合物の活性化温度に比べて低い傾向がある。したがって、イミダゾール類を含むコンパウンドは、ボレート塩又はボラン化合物を含むコンパウンドに比べて、より低温度において短時間で硬化し易い。よって、成形体を短時間で硬化させる場合、イミダゾール類は硬化促進剤に適している。コンパウンドは、イミダゾール系硬化促進剤として、例えば、1-シアノエチル-2-ウンデシルイミダゾール、2-ウンデシルイミダゾール、2-ヘプタデシルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、及び1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾールから選ばれる少なくとも一種を含んでよい。イミダゾール系硬化促進剤の市販品としては、例えば、2MZ-H、C11Z、C17Z、1,2DMZ、2E4MZ、2PZ-PW、2P4MZ、1B2MZ、1B2PZ、2MZ-CN、C11Z-CN、2E4MZ-CN、2PZ-CN、C11Z-CNS、2P4MHZ、TPZ、及びSFZ（以上、四国化成工業株式会社製の商品名）等が挙げられる。

[0081] 硬化促進剤の配合量は、硬化促進効果が得られる量であればよく、特に限定されない。ただし、エポキシ樹脂の吸湿時の硬化性及び流動性を改善する観点からは、硬化促進剤の配合量は、100質量部のエポキシ樹脂に対して、好ましくは0.1~30質量部、より好ましくは1~15質量部であってよい。硬化促進剤の含有量は、エポキシ樹脂及び硬化剤（例えばフェノール

樹脂)の質量の合計に対して0.001質量部以上5質量部以下であることが好ましい。硬化促進剤の配合量が0.1質量部未満である場合、十分な硬化促進効果が得られ難い。硬化促進剤の配合量が30質量部以下である場合、コンパウンドの保存安定性が向上し易い。ただし、硬化促進剤の配合量及び含有量が上記範囲外である場合であっても、本開示に係る効果は得られる。

[0082] 樹脂組成物において、硬化促進剤は、エポキシ樹脂及びフェノール樹脂に配合した際の構造、並びに、エポキシ樹脂及び／又はフェノール樹脂と反応した構造のいずれか、又は混合物として存在しており、その構造は、核磁気共鳴装置(NMR)等の方法で分析することが可能である。

[0083] (ケイ素化合物)

ケイ素化合物は、樹脂組成物と被覆粒子との密着性を向上させ、コンパウンドから形成される希土類ボンド磁石の機械強度を向上させることができる。樹脂組成物においてケイ素化合物は、例えば、エポキシ樹脂及びフェノール樹脂中に分散された状態で存在している。

[0084] ケイ素化合物としては、特に限定されないが、シランカップリング剤を含んでいてもよい。シランカップリング剤は、例えば、エポキシシラン、メルカプトシラン、アミノシラン、アルキルシラン、ウレイドシラン、酸無水物系シラン及びビニルシランからなる群より選ばれる少なくとも一種であってよい。これらの中でも、希土類ボンド磁石の機械強度をより向上させる観点から、アミノ基を有するシランカップリング剤が好ましく、アミノフェニル系のシランカップリング剤がより好ましい。樹脂組成物は、上記のうち一種のカップリング剤を含んでいてもよく、上記のうち複数種のカップリング剤を含んでいてもよい。

[0085] シランカップリング剤として具体的には、例えば、N-(2-アミノエチル)-3-アミノプロピルジメチルメトキシシラン、N-(2-アミノエチル)-3-アミノプロピルトリメトキシシラン、3-アミノプロピルトリメトキシシラン、3-アミノプロピルトリエトキシシラン、3-トリエトキシ

シリル-N-(1,3-ジメチルブチリデン)プロピルアミン、N-フェニル-3-アミノプロピルトリメトキシシラン等が挙げられる。これらは1種を単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0086] コンパウンドにおけるケイ素化合物の含有量は、コンパウンドの固形分全量を基準として0.1質量%以上、0.8質量%以上、1.0質量%以上、又は、1.4質量%以上であってよく、3.0質量%以下、2.5質量%以下、2.2質量%以下、又は、2.0質量%以下であってよい。ケイ素化合物の含有量が上記下限値以上であると、コンパウンドから形成される希土類ボンド磁石の機械強度をより向上させることができる傾向がある。ケイ素化合物の含有量が上記上限値以下であると、コンパウンドの成形時の流動性の低下を抑制することができる傾向がある。

[0087] 樹脂組成物におけるケイ素化合物の含有量は、樹脂組成物の固形分全量を基準として20質量%以上、25質量%以上、又は、40質量%以上であってよく、50質量%以下、48質量%以下、又は、45質量%以下であってよい。ケイ素化合物の含有量が上記下限値以上であると、コンパウンドから形成される希土類ボンド磁石の機械強度をより向上させることができる傾向がある。ケイ素化合物の含有量が上記上限値以下であると、コンパウンドの成形時の流動性の低下を抑制することができる傾向がある。

[0088] (他の成分)

樹脂組成物は、必要に応じて上述したエポキシ樹脂、フェノール樹脂、硬化促進剤及びケイ素化合物以外の他の成分を含んでもよい。他の成分としては、例えば、上記以外の樹脂、シランカップリング剤以外の他のカップリング剤、エラストマー変性剤、フィラー、難燃剤等が挙げられる。

[0089] (他のカップリング剤)

シランカップリング剤以外の他のカップリング剤としては、チタン系化合物、アルミニウムキレート類、及び、アルミニウム／ジルコニウム系化合物等が挙げられる。

[0090] (エラストマー変性剤)

エラストマー変性剤は、コンパウンドの樹脂組成物と被覆粒子との密着性を高めるため、樹脂組成物の強靱化のため及び樹脂成分の内部応力を低減させるために、コンパウンドに配合してもよい。エラストマー変性剤としては、液状ゴム変性剤、ゴム粒子径変性剤、コアシェル粒子径変性剤、シリコーン系変性剤及びウレタンプレポリマー変性剤等が挙げられる。

[0091] (フィラー)

フィラーは、吸水性、寸法安定性、耐薬品性、機械強度向上及び熱膨張係数向上等のために、コンパウンドに配合してもよい。フィラーとしては、シリカ、炭酸カルシウム、カオリンクレー、酸化チタン、硫酸バリウム、酸化亜鉛、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、タルク及びマイカ等が挙げられる。

[0092] (難燃剤)

難燃剤は、環境安全性、リサイクル性、成形加工性及び低コストのために、コンパウンドに配合してもよい。難燃剤としては、臭素系難燃剤、鱗茎難燃剤、水和金属化合物系難燃剤、シリコーン系難燃剤、窒素含有化合物、ヒンダードアミン化合物、有機金属化合物及び芳香族エンブラ等が挙げられる。

[0093] [被覆粒子]

本実施形態のコンパウンドに使用される被覆粒子は、 $\text{Sm}-\text{Fe}-\text{N}$ 系合金粒子の表面の少なくとも一部がケイ素を含む無機被膜で覆われてなるものである。被覆粒子において、 $\text{Sm}-\text{Fe}-\text{N}$ 系合金粒子の表面全体が無機被膜で覆われていてもよく、表面の一部が無機被膜で覆われていてもよい。コンパウンドには、多数の被覆粒子が含有される。本明細書では、この多数の被覆粒子の集まりを希土類磁石粉ともいう。

[0094] 個々の $\text{Sm}-\text{Fe}-\text{N}$ （サマリウム－鉄－窒素）系合金粒子の形状は、特に限定されないが、球状、扁平形状、角柱状又は針状であってよく、好ましくは、球状であってよい。ここで、 $\text{Sm}-\text{Fe}-\text{N}$ 系合金粒子の形状は、顕微鏡観察画像の画像解析により測定される円形度係数により評価することが

できる。円形度係数は、下記式で定義される値であり、その数値が高いほど、粒子が丸みを帯びて球状に近いものとなる。本明細書において「Sm－Fe－N系合金粒子が球状である」とは、円形度係数が0.78以上であることを意味する。Sm－Fe－N系合金粒子の円形度係数は、0.80以上であってもよく、0.85以上であってもよく、0.90以上であってもよく、0.95以上であってもよい。Sm－Fe－N系合金粒子の円形度係数が上記範囲内であることで、コンパウンドの流動性をより一層向上させることができる。

$$C = 4 \pi F / L^2$$

(C：円形度係数、F：粒子の投影面積 (mm²)、L：粒子の投影周囲長 (mm))

[0095] また、本実施形態のコンパウンドは、上記被覆粒子を用いていることにより、磁場中成形時に粒子が回転し易く、被覆粒子の配向性に優れるという利点がある。また、Sm－Fe－N系合金粒子の形状が球状であると、磁場中成形時に粒子がより回転し易くなり、配向性がより向上する。そのため、本実施形態のコンパウンドを用いて磁場中成形を行うことにより、希土類磁石粉の配向性に優れた高性能な異方性希土類ボンド磁石を効率的に製造することが可能となる。

[0096] Sm－Fe－N系合金粒子の平均粒子径は、特に限定されないが、1 μm以上、2 μm以上、又は、3 μm以上であってよく、50 μm以下、30 μm以下、10 μm以下、又は、5 μm以下であってよい。平均粒子径が1 μm以上であると、成形体の磁束密度が向上する傾向がある。平均粒子径が50 μm以下であると、成形体の機械強度が向上する傾向がある。平均粒子径は、例えば粒度分布計によって測定することができる。コンパウンドは、平均粒子径又は形状が異なる複数種のSm－Fe－N系合金粒子を用いた被覆粒子を含んでいてもよい。

[0097] 被覆粒子は、Sm－Fe－N系合金粒子以外の他の合金粒子を含んでいてもよい。他の合金粒子を構成する合金としては、Nd－Fe－B系合金（希

土類磁石)、S m - C o 系合金(希土類磁石)等が挙げられる。

[0098] S m - F e - N 系合金粒子を被覆する無機被膜は、少なくともS i (ケイ素)を含有する。S i を含有する無機被膜は、例えば、O (酸素)、B (ホウ素)、N a (ナトリウム)及びA l (アルミニウム)からなる群より選ばれる少なくとも一種の元素を更に含有してよい。無機被膜は、例えば、S i O₂ (ケイ酸ガラス)又はホウケイ酸ガラスを含んでよい。S i を含有するガラスからなる多数の粒子が、S m - F e - N 系合金粒子の表面を覆っていてよい。S m - F e - N 系合金粒子の表面を上記の無機被膜で覆う手段は、例えば、スプレードライヤーであってよい。つまり、S i を含有する表面処理液がS m - F e - N 系合金粒子へ噴霧されてよい。S i を含有する表面処理液は、上述したガラス等の無機被膜を構成する材料自体を含む液、又は、ガラス等の無機被膜を構成する材料の原料を含む液体であってよい。S m - F e - N 系合金粒子の表面を無機被膜で覆う手段は、含浸法であってもよい。例えば、S m - F e - N 系合金粒子が、S i を含有する表面処理液中に浸漬されてもよい。表面処理液が付着したS m - F e - N 系合金粒子は必要に応じて加熱されてもよい。

[0099] 被覆粒子の表面は、カップリング剤で覆われていてもよい。また、S m - F e - N 系合金粒子の表面が、カップリング剤で覆われていてもよい。ただし、上記カップリング剤は、S i を含有する無機被膜に相当しない。また、上記カップリング剤は、樹脂組成物に配合されるケイ素化合物とは別に用いられる。被覆粒子は、無機被膜で覆われた表面だけでなく、カップリング剤で覆われた表面を更に有してよい。カップリング剤としては、シランカップリング剤が挙げられる。コンパウンドは、被覆粒子とは別の金属粉末として、カップリング剤で覆われた表面を有する金属粉末を更に含んでよい。コンパウンドは、リン酸(例えば有機リン酸)によって処理された表面を有する金属粉末を更に含んでもよい。例えば、コンパウンドは、リン酸塩で覆われた表面を有する金属粉末を更に含んでもよい。被覆粒子は、無機被膜で覆われた表面だけでなく、リン酸によって処理された表面を更に有してよい。

[0100] コンパウンドにおける被覆粒子の含有量は、コンパウンドの固形分全量を基準として、90質量%以上100質量%未満、93質量%以上99.5質量%以下、94質量%以上99.5質量%以下、又は、96質量%以上99.5質量%以下であってよい。被覆粒子の含有量の増加に伴い、コンパウンドの比透磁率が増加する傾向がある。一方、被覆粒子の含有量の増加に伴い、コンパウンドの流動性が低下する傾向がある。しかし被覆粒子の含有量が高い場合であっても、ケイ素を含む無機被膜で被覆された被覆粒子を用いることにより、高い比透磁率と高い流動性を両立させることができる。コンパウンドにおける被覆粒子の含有量は、コンパウンドにおける被覆粒子の充填率と言い換えられてよい。コンパウンドにおける被覆粒子の充填率は、コンパウンドにおける被覆粒子の占積率と言い換えられてよい。コンパウンドにおける樹脂組成物の含有量は、コンパウンド全体の質量に対して、0質量%より大きく10質量%以下、0.5質量%以上7質量%以下、0.5質量%以上6質量%以下、又は、0.5質量%以上4質量%以下であってよい。

[0101] 本実施形態のコンパウンドの100℃における溶融粘度は、800~4000 Pa・s、900~3500 Pa・s、又は、1000~3000 Pa・sであってもよい。この溶融粘度が800 Pa・s以上であると、成形後の保形性が良好となる傾向があり、4000 Pa・s以下であると、流動性が高く、優れた成形性が得られ、所望の形状の成形体を精度良く効率的に製造し易い傾向がある。

[0102] <コンパウンドの製造方法>

本実施形態の希土類ボンド磁石用コンパウンドは、例えば、以下のように製造することができる。まず、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、硬化促進剤、ケイ素化合物、及び必要に応じて他の成分を配合して樹脂組成物を作製する（第1の工程）。また、被覆粒子を含む希土類磁石粉を用意する。次に、樹脂組成物を必要に応じて有機溶剤で希釈した後、希土類磁石粉と有機溶剤で希釈した樹脂組成物とを混合する。そして、混合中に有機溶剤を揮発（乾燥）させることにより、希土類磁石粉と、希土類磁石粉を被覆する樹脂組成

物とを含む希土類ボンド磁石用コンパウンドを作製することができる（第2の工程）。

[0103] 上記第2の工程において樹脂組成物の粘度を低下させて混練時の作業性及び流動性を向上させるために、有機溶剤を樹脂組成物に配合してもよい。樹脂組成物の希釈に使用する有機溶剤は、作業性の面から常温で気体となる揮発性の有機溶剤が好ましい。好適に使用され得る有機溶剤には、例えば、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、ベンゼン、トルエン及びキシレン等が挙げられる。安全性及び取り扱い性の観点から、メチルエチルケトンが好ましい。

[0104] <希土類ボンド磁石の製造方法>

本実施形態の希土類ボンド磁石の製造方法は、上記コンパウンドを作製する工程（第1の工程及び第2の工程）、コンパウンドを圧縮成形して圧縮成形体を作製する工程（第3の工程）、及び圧縮成形体を熱処理する工程（第4の工程）を含む。

[0105] コンパウンドを圧縮成形する工程（第3の工程）では、好ましくは500～2500MPaの圧力で、より好ましくは1400～2000MPaの圧力で、コンパウンドを圧縮成形して、コンパウンドの圧縮成形体を作製する。コンパウンドを圧縮するときの圧力が500～2500MPaであると、希土類ボンド磁石を緻密にでき、実用的な磁気特性を得ることができるとともに、金型の負担を低減できる。圧縮成形体の密度は、被覆粒子の真密度に対して、好ましくは75%以上86%以下、より好ましくは80%以上86%以下である。コンパウンドの圧縮成形体の密度が75%以上86%以下であると、磁気特性が良好で、機械強度が高い希土類ボンド磁石を製造することができる。

[0106] 圧縮成形体を熱処理する工程（第4の工程）では、好ましくは150～400℃の温度で、より好ましくは175～350℃の温度で圧縮成形体を熱処理する。圧縮成形体を熱処理する温度が150～400℃の温度であると、樹脂組成物が十分に硬化した希土類ボンド磁石を製造することができる。

また、熱処理の時間は、好ましくは1分～4時間であり、より好ましくは5分～3時間である。

[0107] <希土類ボンド磁石>

本実施形態の希土類ボンド磁石は、本実施形態のコンパウンドを使用して本実施形態の希土類ボンド磁石の製造方法により製造される。

[0108] 希土類ボンド磁石における、樹脂組成物が硬化して形成した硬化樹脂組成物のガラス転移温度は、好ましくは150℃以上であり、より好ましくは175℃以上であり、さらに好ましくは200℃以上である。希土類ボンド磁石における、樹脂組成物が硬化して形成した硬化樹脂組成物のガラス転移温度が150℃以上であると、耐熱性が優れた希土類ボンド磁石を得ることができる。なお、ガラス転移温度は、例えば、動的粘弾性測定において、 $\tan \delta$ がピークになる温度である。

[0109] 50℃における希土類ボンド磁石の弾性率に対する、150℃における希土類ボンド磁石の弾性率の比率は、好ましくは70%以上であり、より好ましくは80%以上であり、さらに好ましくは90%以上である。上記弾性率の比率が70%以上であると、耐熱性が優れた希土類ボンド磁石を得ることができる。なお、弾性率を測定する方法には、三点曲げ試験を50℃及び150℃の温度で測定する方法及び動的粘弾性測定による50℃及び150℃の弾性率を測定する方法等が挙げられる。

[0110] 希土類ボンド磁石の相対密度は、被覆粒子の真密度に対して、好ましくは70%以上であり、より好ましくは80%であり、さらに好ましくは90%以上である。希土類ボンド磁石の相対密度が、被覆粒子の真密度に対して、70%以上であると、優れた磁気特性を有する希土類ボンド磁石を得ることができる。また、希土類ボンド磁石の密度は、被覆粒子の真密度に対して、好ましくは95%以下である。

[0111] 希土類ボンド磁石の120℃の温度における圧壊強度は、好ましくは100MPa以上であり、より好ましくは150MPaであり、さらに好ましくは160MPa以上である。希土類ボンド磁石の120℃の温度における圧

壊強度が100MPa以上であると、高温において機械強度の高い希土類ボンド磁石を得ることができる。

実施例

[0112] 以下、本開示について実施例によってより具体的に説明するが、本開示の範囲は以下に示す実施例によって制限されるものではない。

[0113] (実施例1)

500mlナスフラスコに、エポキシ樹脂(3, 3', 5, 5'-テトラメチルピフェノールジグリシジルエーテル、商品名: YX-4000H、三菱ケミカル株式会社製、エポキシ当量: 192g/eq) 3.66g、フェノール樹脂(ノボラック型フェノール樹脂、商品名: HP-850N、日立化成株式会社製、水酸基当量: 108g/eq) 2.06g、硬化促進剤(テトラブチルホスホニウム・テトラフェニルボレート、商品名: PX-4PB、北興化学株式会社製) 0.176g、アミノ基を有するシランカップリング剤(N-フェニル-3-アミノプロピルトリメトキシシラン、商品名: KBM-573、信越化学株式会社製) 2.11gを計り取り、アセトン(和光純薬工業株式会社製、商品名) 24gに溶解し、樹脂組成物の溶液を得た。この樹脂組成物の溶液に、希土類磁石粉として、 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 系合金粒子(平均粒子径: 2 μm 、形状: 球状)の表面全体をシリカ被膜で被覆した被覆粒子(日亜化学工業株式会社製) 192gを加えて30分間攪拌混合した後、エバポレータにより常温でアセトンを留去した。得られた混合物をバット上に回収して薄く広げ、真空乾燥機を用いて常温で乾燥した。乾燥途中で塊状の混合物を解砕しながら、合計24時間乾燥し、被覆粒子の含有量(占積率)が96質量%であるコンパウンドを得た。

[0114] (実施例2~4)

樹脂組成物を構成する固形分の組成を、表1に示した成分及び配合量(単位: g)に変更したこと以外は実施例1と同様にして、コンパウンドを得た。なお、実施例3及び4で用いたエポキシ樹脂及びフェノール樹脂は以下の通りである。

HP-4700（4官能ナフタレン型エポキシ樹脂、DIC株式会社製、商品名、エポキシ当量：165 g / eq）

HP-7200（ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、DIC株式会社製、商品名、エポキシ当量：259 g / eq）

SN-395（ナフタレン型フェノール樹脂、日鉄ケミカル&マテリアル株式会社製、商品名、水酸基当量：105 g / eq）

[0115]（比較例1）

希土類磁石粉として、 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 系合金粒子（平均粒子径：2 μm 、形状：球状）の表面全体をリン化合物で被覆した被覆粒子（日亜化学工業株式会社製）を用いたこと以外は実施例1と同様にして、コンパウンドを得た。

[0116]（比較例2）

樹脂組成物を構成する固形分の組成を、表1に示した成分及び配合量（単位：g）に変更したこと以外は実施例1と同様にして、コンパウンドを得た。なお、比較例2及び実施例1において、樹脂組成物中のエポキシ樹脂、フェノール樹脂及び硬化促進剤の配合比は同じである。

[0117] ＜コンパウンドの溶融粘度の測定＞

コンパウンドの溶融粘度は、レオメータMCR301（商品名、株式会社アントンパール・ジャパン製）を使用して測定した。12 mm ϕ のアルミプローブとアルミプレートとのギャップを0.5 mmとし、そのギャップにコンパウンドを配置した。具体的には、アルミプレート上にコンパウンドを厚さ1 mm程度に撒き、80℃に加温した状態でアルミプローブを下げ、上記ギャップ間距離になった時点で試料部分を室温に戻した。その後、歪み5%、周波数10 Hz、昇温速度10℃/分の条件で昇温させながら測定を行い、測定温度100℃における粘度の値をコンパウンドの溶融粘度とした。結果を表1に示す。

[0118] ＜希土類ボンド磁石の作製＞

実施例及び比較例で得られたコンパウンドを所定の金型に充填し、油圧プ

レス機により成形圧力2000MPaで成形し、直径11.3mm、高さ8mmの円柱状の成形体を作製した。その後、成形体に対し、乾燥機中200℃の温度で10分間の熱処理を施して、コンパウンド中の樹脂組成物を硬化させ、希土類ボンド磁石（円柱状試験片）を作製した。

[0119] <圧壊強度の測定>

万能圧縮試験機（株式会社島津製作所製、AG-10TBR）を用いて、大気中でクロスヘッド速度0.5mm/分で、円柱状試験片の高さ方向から圧縮圧力を印加し、円柱状試験片が破壊した時の圧縮圧力の最大値を圧壊強度（MPa）とした。圧壊強度の測定は、室温（25℃）状態、及び、恒温槽中で120℃で10分間加熱した状態の円柱状試験片を用いて行った。結果を表1に示す。

[0120] [表1]

	材料名	当量(g/eq)	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	比較例1	比較例2
エポキシ樹脂	YX-4000H	192	3.66	2.90	—	—	3.66	4.96
	HP-4700	165	—	—	3.54	—	—	—
	HP-7200	259	—	—	—	3.92	—	—
フェノール樹脂	HP-850N	108	2.06	1.63	—	1.63	2.06	2.79
	SN-395	105	—	—	2.25	—	—	—
硬化促進剤	PX-4PB	—	0.18	0.14	0.17	0.19	0.18	0.24
ケイ素化合物	KBM-573	—	2.11	3.34	2.04	2.26	2.11	—
樹脂組成物総量		—	8.01	8.01	8.00	8.00	8.01	7.99
希土類磁石粉	SmFeN (シリカ被覆粒子)	—	192	192	192	192	—	192
	SmFeN (リン被覆粒子)	—	—	—	—	—	192	—
圧壊強度(25℃)(MPa)		—	230	250	240	230	200	120
圧壊強度(120℃)(MPa)		—	200	230	210	200	180	60
コンパウンドの溶融粘度(Pa·s)		—	3000	2600	3500	3200	6000	7500

産業上の利用可能性

[0121] 本開示に係る希土類ボンド磁石用コンパウンドは流動性に優れ、且つ、得られる希土類ボンド磁石は圧壊強度に優れたものとなる。このような希土類ボンド磁石用コンパウンドを用いることによって、優れた機械強度を有する希土類ボンド磁石を、良好な生産性で提供することが可能となり、その工業的価値は高い。

請求の範囲

- [請求項1] エポキシ樹脂、フェノール樹脂、硬化促進剤及びケイ素化合物を含む樹脂組成物と、 $\text{Sm}-\text{Fe}-\text{N}$ 系合金粒子の表面の少なくとも一部がケイ素を含む無機被膜で覆われた被覆粒子と、を備える希土類ボンド磁石用コンパウンド。
- [請求項2] 前記ケイ素化合物が、アミノ基を有するシランカップリング剤を含む、請求項1に記載のコンパウンド。
- [請求項3] 前記ケイ素化合物の含有量が、コンパウンドの固形分全量を基準として1.0質量%以上2.0質量%以下である、請求項1又は2に記載のコンパウンド。
- [請求項4] 前記 $\text{Sm}-\text{Fe}-\text{N}$ 系合金粒子が、球状である、請求項1～3のいずれか一項に記載のコンパウンド。
- [請求項5] 前記 $\text{Sm}-\text{Fe}-\text{N}$ 系合金粒子の平均粒子径が $1\ \mu\text{m}$ 以上 $5\ \mu\text{m}$ 以下である、請求項1～4のいずれか一項に記載のコンパウンド。
- [請求項6] 前記硬化促進剤が、ボレート塩及びボラン化合物のうちの少なくとも一種を含む、請求項1～5のいずれか一項に記載のコンパウンド。
- [請求項7] 請求項1～6のいずれか一項に記載の希土類ボンド磁石用コンパウンドを含む、成形体。
- [請求項8] 請求項1～6のいずれか一項に記載の希土類ボンド磁石用コンパウンドの硬化物。
- [請求項9] 請求項1～6のいずれか一項に記載の希土類ボンド磁石用コンパウンドを製造する方法であって、
前記被覆粒子と、前記樹脂組成物とを、有機溶剤の存在下で混合し、乾燥させる工程を備える、希土類ボンド磁石用コンパウンドの製造方法。
- [請求項10] 請求項1～6のいずれか一項に記載の希土類ボンド磁石用コンパウンドを圧縮成形する工程を備える、成形体の製造方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/030347

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl. H01F1/059(2006.01)i, C08G59/68(2006.01)i, C08K9/06(2006.01)i, C08L63/00(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)

Int. Cl. H01F1/059, C08G59/68, C08K9/06, C08L63/00, 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 1971-2019

Registered utility model specifications of Japan 1996-2019

Published registered utility model applications of Japan 1994-2019

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 2019/106812 A1 (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.) 06 June 2019, paragraphs [0002]-[0062] (Family: none)	1-10
Y	JP 2016-194140 A (SUMITOMO METAL MINING CO., LTD.) 17 November 2016, paragraphs [0013]-[0109] (Family: none)	1-10
Y	JP 2018-199847 A (SUMITOMO METAL MINING CO., LTD.) 20 December 2018, paragraphs [0013]-[0080] (Family: none)	1-10
Y	JP 2017-34097 A (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.) 09 February 2017, paragraphs [0006]-[0058] (Family: none)	6-10

☐ 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
02.10.2019

Date of mailing of the international search report
15.10.2019

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. H01F1/059(2006.01)i, C08G59/68(2006.01)i, C08K9/06(2006.01)i, C08L63/00(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. H01F1/059, C08G59/68, C08K9/06, C08L63/00, 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	1971-2019年
日本国実用新案登録公報	1996-2019年
日本国登録実用新案公報	1994-2019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 2019/106812 A1 (日立化成株式会社) 2019.06.06, 段落[0002]-[0062] (ファミリーなし)	1-10
Y	JP 2016-194140 A (住友金属鉱山株式会社) 2016.11.17, 段落[0013]-[0109] (ファミリーなし)	1-10

☑ 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

02.10.2019

国際調査報告の発送日

15.10.2019

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)

鈴木 孝章

5D

6309

電話番号 03-3581-1101 内線 3551

C (続き) . 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	JP 2018-199847 A (住友金属鉱山株式会社) 2018. 12. 20, 段落[0013]-[0080] (ファミリーなし)	1-10
Y	JP 2017-34097 A (日立化成株式会社) 2017. 02. 09, 段落[0006]-[0058] (ファミリーなし)	6-10