

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第4898366号
(P4898366)

(45) 発行日 平成24年3月14日 (2012. 3. 14)

(24) 登録日 平成24年1月6日 (2012. 1. 6)

(51) Int. Cl.

F I

C 2 2 C 38/00 (2006. 01)
B 2 2 F 9/08 (2006. 01)
H 0 1 F 1/053 (2006. 01)
H 0 1 F 7/02 (2006. 01)
B 2 2 F 3/00 (2006. 01)

C 2 2 C 38/00 3 O 3 D
B 2 2 F 9/08 M
H 0 1 F 1/04 H
H 0 1 F 7/02 A
B 2 2 F 3/00 C

請求項の数 11 (全 30 頁)

(21) 出願番号 特願2006-251928 (P2006-251928)
 (22) 出願日 平成18年9月15日 (2006. 9. 15)
 (65) 公開番号 特開2008-69444 (P2008-69444A)
 (43) 公開日 平成20年3月27日 (2008. 3. 27)
 審査請求日 平成21年5月18日 (2009. 5. 18)

特許法第30条第1項適用 社団法人日本応用磁気学会
 第30回日本応用磁気学会学術講演概要集 (平成18
 年9月11日発行)

(73) 特許権者 000003997
 日産自動車株式会社
 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地
 (73) 特許権者 000003713
 大同特殊鋼株式会社
 愛知県名古屋市東区東桜一丁目1番10号
 (74) 代理人 100079164
 弁理士 高橋 勇
 (72) 発明者 山元 洋
 神奈川県川崎市多摩区東三田1-1-1
 学校法人明治大学生田校舎内
 (72) 発明者 田湯 哲朗
 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産
 自動車株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 希土類磁石合金薄帯及び製造方法、希土類磁石合金

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

組成として、プラセオジウム (Pr)、鉄 (Fe)、コバルト (Co)、チタン (Ti)、
 ホウ素 (B)、ケイ素 (Si) に加えて、イットリウム (Y) を必須元素として含有し
 、

かつ、前記組成が一般式 $Pr_x Fe_{100-x-y-z-o-p-q} Co_y Ti_z B_o$
 $Y_p Si_q$ (但し、 $x = 10 \sim 13$ 、 $y = 7.5 \sim 10.5$ 、 $z = 0.1 \sim 2.0$ 、 $o =$
 $9.0 \sim 14.0$ 、 $p = 0.1 \sim 1.2$ 、 $q = 0 \sim 1.5$ である) で表されることを特徴
 とする希土類磁石合金。

【請求項2】

少なくとも $Pr_2 Fe_{14} B$ 型ハード相を含む、請求項1に記載の希土類磁石合金。

【請求項3】

前記 $Pr_2 Fe_{14} B$ 型ハード相に加えて、少なくとも $\alpha-Fe$ 型ソフト相を含むナノ
 コンポジット構造を有する、請求項2に記載の希土類磁石合金。

【請求項4】

前記組成からなる合金溶湯の急冷と熱処理とにより得られる、請求項1に記載の希土類
 磁石合金。

【請求項5】

前記組成からなる合金溶湯を回転する冷却ロールで急冷することで得られる、請求項1
 に記載の希土類磁石合金薄帯。

【請求項 6】

請求項 5 に記載の希土類磁石合金薄帯を粉砕した希土類磁石合金粉末をボンド材で成形したことを特徴とするボンド磁石。

【請求項 7】

プラセオジウム (Pr)、鉄 (Fe)、コバルト (Co)、チタン (Ti)、ホウ素 (B)、イットリウム (Y)、およびケイ素 (Si) を含む合金溶湯を回転するロールに供給して、急冷薄帯を得る薄帯製造ステップと、

前記急冷薄帯を熱処理して、前記急冷薄帯を結晶化させる結晶化ステップと、
を含み、

前記組成を、一般式 $\text{Pr}_x\text{Fe}_{100-x-y-z-o-p-q}\text{Co}_y\text{Ti}_z\text{B}_o\text{Y}_p\text{Si}_q$ (但し、 $x=10\sim13$ 、 $y=7.5\sim10.5$ 、 $z=0.1\sim2.0$ 、 $o=9.0\sim14.0$ 、 $p=0.1\sim1.2$ 、 $q=0\sim1.5$ である) としたことを特徴とする希土類磁石合金薄帯の製造方法。

10

【請求項 8】

前記ロールの周速度を $8.5\sim20.0\text{ m/sec}$ の範囲に設定する、請求項 7 に記載の希土類磁石合金薄帯の製造方法。

【請求項 9】

前記熱処理での加熱温度を $550\sim635^\circ\text{C}$ の範囲に設定する、請求項 7 に記載の希土類磁石合金薄帯の製造方法。

【請求項 10】

20

前記熱処理での昇温時間を $1\sim7\text{ min}$ の範囲に設定する、請求項 7 に記載の希土類磁石合金薄帯の製造方法。

【請求項 11】

前記熱処理での保持時間を $1\sim7\text{ min}$ の範囲に設定する、請求項 7 に記載の希土類磁石合金薄帯の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、磁気特性、特に熱安定性を向上させた希土類磁石に関する。

【背景技術】

30

【0002】

ボンド磁石は、磁石粉末を樹脂やゴムで固めて作製されるものであるため、その形状の制御が自在であり、寸法精度を容易に高めることが可能である。このため、前記ボンド磁石は、電気製品や自動車部品等の各種用途に広く使用されている。

【0003】

近年、電気製品や自動車部品については、その小型化・軽量化が求められており、これらに使用されるボンド磁石に対しては、磁気特性を低下させずに小型化を実現することが強く要求されている。この要求に応えるためには、磁石の高性能化が必要である。具体的には、残留磁束密度および保磁力を向上させ、最大エネルギー積を高めることが求められる。

40

【0004】

磁気特性を高めるための方策として、磁石粉末の磁石組成や磁石構造の改良が提案されている。磁石組成に関しては、マグネットプランバイト型フェライトを用いたフェライトボンド磁石が汎用されていた。しかし、フェライトボンド磁石の磁気特性は、残留磁化 J_r 、固有保磁力 H_{cJ} 、および最大エネルギー積 $(BH)_{\max}$ が比較的低い。このため、最大エネルギー積がフェライトボンド磁石の倍以上になる $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 系ボンド磁石が普及した。 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 系ボンド磁石は、原料合金の溶湯を回転ロールに供給して得られる急冷薄帯を用いて製造される。

【0005】

磁石構造の改良に関しては、交換スプリング磁石が、新たな磁石材料として注目を集め

50

ている。前記交換スプリング磁石は、永久磁石相（ハード相）と軟磁性相（ソフト相）とがナノサイズで混在する構造のものである。前記交換スプリング磁石は、高い磁束密度を有するソフト相を含有するため、磁石全体としての磁束密度が向上し、磁気特性の向上が図れる。

【0006】

上述のような改良により磁気特性の向上が進行しているが、上述した希土類ボンド磁石に対しては、熱安定性に劣るという課題が指摘されている。前記希土類ボンド磁石が自動車の駆動系などの高温環境下に曝される部位に適用される場合には、前記希土類ボンド磁石に対しては、熱安定性に優れ、不可逆減磁率が小さいことが特に求められる。

【0007】

希土類ボンド磁石の熱安定性を向上させる手段としては、磁石組成、急冷薄帯の製造条件、急冷薄帯の熱処理条件を制御することによって熱安定性を向上させる方法が、本発明者らなどによって開発されている（特許文献1、特許文献2、非特許文献1および非特許文献2参照）。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

特許文献1は、 $\text{Pr}-\text{Fe}-\text{Co}-\text{B}$ に、 Ti および Si を加えた交換スプリング磁石を対象とするものであり、特許文献1では、ハード磁性相の飽和磁化を高め、また磁石として良好な保磁力を実現するために希土類元素として Pr を用い、 Ti を加えて組織微細化を図った交換スプリング磁石について、磁石組成、急冷薄帯製造時のロール周速度、急冷薄帯の熱処理温度、および急冷薄帯の熱処理時間を変化させて、各条件が磁気特性に与える影響を調査し、熱安定性を向上させる技術が開示されている。このなかで、組成 $\text{Pr}_{11}\text{Fe}_{68.85}\text{Co}_{7.65}\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Si}_{0.5}$ の合金薄帯において、固有保磁力 $H_{cJ}=1572\text{ kA/m}$ が達成されることが示されている。

【0009】

特許文献2は、 $\text{Pr}-\text{Fe}-\text{Co}-\text{B}$ に、 Ti および Si を加えた交換スプリング磁石を対象とするものであり、特許文献2では、磁石主相結晶粒界に B を偏析させた構造を有する交換スプリング磁石の磁石組成、急冷薄帯製造時のロール周速度、急冷薄帯の熱処理温度、および急冷薄帯の熱処理時間および熱処理の際の昇温速度を変化させて、各条件が磁気特性に与える影響を調査し、熱安定性を向上させる技術が開示されている。このなかで、組成 $\text{Pr}_{11}\text{Fe}_{64.5}\text{Co}_{12}\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Si}_{0.5}$ の合金薄帯において固有保磁力 $H_{cJ}=1592\text{ kA/m}$ が達成され、前記薄帯を用いて製造された直径 $10\text{ mm}\times$ 長さ 7.8 mm 、密度 6.31 Mg/m^3 の等方性ボンド磁石において、固有保磁力 $H_{cJ}=1610\text{ kA/m}$ 、 150°C における不可逆減磁率をおよそ 4.2% にまで低減できることが示されている。

【0010】

非特許文献1は、 $\text{Pr}-\text{Nd}-\text{Fe}-\text{Co}-\text{Nb}-\text{B}$ に、 Y を加えた交換スプリング磁石を対象とするものであり、非特許文献1では、交換スプリング磁石の磁石組成、急冷薄帯製造時のロール周速度、急冷薄帯の熱処理温度、および急冷薄帯の熱処理時間を変化させて、各条件が磁気特性に与える影響を調査し、熱安定性を向上させる技術が開示されている。また、 $\text{Pr}-\text{Nd}-\text{Fe}$ 源として安価なジウム（ Di ）が使用できることを示している。 Y を添加する効果は、不明としているものの、このなかで、組成 $\text{Di}_{12.5}\text{Fe}_{69.8}\text{Co}_{10}\text{Nb}_1\text{Y}_{0.7}\text{B}_6$ の合金薄帯において、固有保磁力 $H_{cJ}=1409.0\text{ kA/m}$ が達成され、前記薄帯を用いて製造された直径 $10\text{ mm}\times$ 長さ 8 mm 、密度 6.1 Mg/m^3 の等方性ボンド磁石において、固有保磁力 $H_{cJ}=1384.9\text{ kA/m}$ 、 150°C における不可逆減磁率をおよそ 3.58% にまで低減できることが示されている。

【0011】

しかしながら、自動車の駆動系などの高温環境下における使用を考えた場合、耐熱性に

10

20

30

40

50

対する要請は年々強まり、特許文献1、特許文献2、非特許文献3などに開示された交換スプリング磁石においては、より一層の熱安定性の向上が求められる。

【0012】

非特許文献2においては、 $\text{Pr}-\text{Nd}-\text{Fe}-\text{Co}-\text{Nb}-\text{V}-\text{B}$ に Tb を加えた交換スプリング磁石について、磁石組成、急冷薄帯製造時のロール周速度、急冷薄帯の熱処理温度、および急冷薄帯の熱処理時間を変化させて、各条件が磁気特性に与える影響を調査し、熱安定性を向上させる技術が開示されている。また $\text{Pr}-\text{Nd}-\text{Fe}$ 源として安価なジウムが使用できることを示している。このなかで、組成 $\text{D}_{12.5}\text{Fe}_{68}\text{Co}_{10}\text{Nb}_1\text{Y}_{0.5}\text{B}_7$ の合金薄帯において、固有保磁力 $H_{cJ}=1628.0\text{ kA/m}$ が達成され、前記薄帯を用いて製造された直径 $10\text{ mm}\times$ 長さ 7.8 mm 、密度 6.32 Mg/m^3 の等方性ボンド磁石において、固有保磁力 $H_{cJ}=1592.8\text{ kA/m}$ 、 150°C における不可逆減磁率をおよそ 2.50% にまで低減できることが示されている。

10

【0013】

しかしながら、非特許文献2に開示された交換スプリング磁石においては、熱安定性を付与するために添加している Tb は埋蔵量が非常に少ない高価な希少元素であるため、磁石の大幅なコストアップをもたらす。そこで、 Tb を使用せずに熱安定性を十分向上させることが望ましい。

【0014】

【特許文献1】特開2004-235508号

【特許文献2】特開2006-55903号

20

【非特許文献1】第29回日本応用磁気学会学術講演概要集(2005), 21p P5-13

【非特許文献2】K. Furusawa, H. Yamamoto, IEEE TRANSACTIONS ON MAGNETICS, VOL. 41, NO. 10, OCTOBER 2005

【0015】

本発明の目的は、高価な希少金属である Tb 、 Dy や Ho を用いることなく、かつ磁気特性および熱安定性を向上できる希土類磁石を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0016】

30

前記目的を達成するため、本発明に係る希土類磁石合金は、組成として、プラセオジム(Pr)、鉄(Fe)、コバルト(Co)、チタン(Ti)、ホウ素(B)、ケイ素(Si)に加えて、イットリウム(Y)を必須元素として含有し、

かつ、前記組成が一般式 $\text{Pr}_x\text{Fe}_{100-x-y-z-o-p-q}\text{Co}_y\text{Ti}_z\text{B}_o\text{Y}_p\text{Si}_q$ (但し、 $x=10.0\sim13.0$ 、 $y=7.5\sim10.5$ 、 $z=0.1\sim2.0$ 、 $o=9.0\sim14.0$ 、 $p=0.1\sim1.2$ 、 $q=0\sim1.5$ である)で表されることを特徴とするものである。

【0017】

本発明に係る希土類磁石合金は、前記組成からなる合金溶湯の急冷と熱処理とにより得られる。本発明に係る希土類磁石合金薄帯は、前記組成からなる合金溶湯を回転する冷却ロールに供給して前記急冷することで得られる。

40

【発明の効果】

【0018】

本発明によれば、 $\text{Pr}-\text{Fe}-\text{Co}-\text{Ti}-\text{B}-\text{Si}$ 系の組成に、イットリウム(Y)を必須元素として含有することで、残留磁化 J_r の低下を抑制して固有保磁力 H_{cJ} を向上させることができ、しかも、 $\text{Pr}-\text{Fe}-\text{Co}-\text{Ti}-\text{B}-\text{Si}$ 系の組成のもつ熱安定性を発揮させることができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0019】

以下、本発明の実施形態について詳細に説明する。

50

(実施形態)

【0020】

実施形態に係る希土類磁石合金は基本的構成として、組成として、プラセオジウム (Pr)、鉄 (Fe)、コバルト (Co)、チタン (Ti)、ホウ素 (B)、ケイ素 (Si) に加えて、イットリウム (Y) を必須元素として含有し、かつ、前記組成が一般式 $Pr_x Fe_{100-x-y-z-o-p-q} Co_y Ti_z B_o Y_p Si_q$ (但し、 $x=10.0 \sim 13.0$ 、 $y=7.5 \sim 10.5$ 、 $z=0.1 \sim 2.0$ 、 $o=9.0 \sim 14.0$ 、 $p=0.1 \sim 1.2$ 、 $q=0 \sim 1.5$ である) で表されることを特徴とするものである。

【0021】

本発明者らは、Pr-Fe-Co-Ti-B-Si系の組成に、イットリウム (Y) を必須元素として添加し、これらを溶解させた合金浴湯を急冷した後、熱処理を施すことで、残留磁化 J_r の低下を抑制して固有保磁力 H_{cJ} に優れ、しかも、Pr-Fe-Co-Ti-B-Si系の組成のもつ熱安定性を発揮できる希土類磁石合金を得ることを見いだした。

【0022】

希土類磁石合金の組成は、用いられる合金材料の配合比から推定する、或いは、例えば誘導結合プラズマ発光分光分析法などを用いて分析することで得られる。実施形態に係る希土類磁石合金の組成は、プラセオジウム (Pr)、鉄 (Fe)、コバルト (Co)、チタン (Ti)、ホウ素 (B)、ケイ素 (Si) に加えて、イットリウム (Y) を必須元素として含有し、かつ、前記組成が一般式 $Pr_x Fe_{100-x-y-z-o-p-q} Co_y Ti_z B_o Y_p Si_q$ (但し、 $x=10.0 \sim 13.0$ 、 $y=7.5 \sim 10.5$ 、 $z=0.1 \sim 2.0$ 、 $o=9.0 \sim 14.0$ 、 $p=0.1 \sim 1.2$ 、 $q=0 \sim 1.5$ である) で表されることを得た。

【0023】

実施形態の希土類磁石合金では、合金の組成を前記一般式に設定することで、残留磁束密度 (B_r)、保磁力 (H_{cJ} ; H_{cB})、及び最大エネルギー積 ($(BH)_{max}$) 等の磁気特性に優れることに加えて、熱安定性に優れた希土類磁石合金を得ることができる。さらに、実施形態の希土類磁石合金は、高価な希少金属であるTb、Dy、Hoを用いる必要がない。

【0024】

さらに、実施形態に係る希土類磁石合金は、組成が一般式 $Pr_x Fe_{100-x-y-z-o-p-q} Co_y Ti_z B_o Y_p Si_q$ (但し、 $x=10.0 \sim 13.0$ 、 $y=7.5 \sim 10.5$ 、 $z=0.1 \sim 2.0$ 、 $o=9.0 \sim 14.0$ 、 $p=0.1 \sim 1.2$ 、 $q=0 \sim 1.5$ である) で表され、少なくとも $Pr_2 Fe_{14} B$ 型ハード相を含むナノコンポジット構造を有している。また、実施形態に係る希土類磁石合金は、前記 $Pr_2 Fe_{14} B$ 型ハード相に加えて、 α -Fe型ソフト相を含むナノコンポジット構造を有するものであってもよい。

【0025】

実施形態に係る希土類磁石合金は、 $Pr_2 Fe_{14} B$ 型ハード相を含んでいる。 $Pr_2 Fe_{14} B$ 型ハード相は、 $R_2 Fe_{14} B$ 型ハード相の希土類元素RがPrであるものを意味する。Rの一部がPr以外の希土類元素に置き換えられている形態も含む概念である。 Pr の一部をNdで置き換える場合、合金中の置換されるPrの量は、Prに対する30at%以下であることが好ましい。30at%を越えると、保磁力の低下が大きくなる等の問題が発生する。 Pr の一部をTbで置き換える場合、合金中の置換されるPrの量は、Prに対する10at%以下であることが好ましい。10at%を越えると、磁化の低下が大きくなる等の問題が発生する。また、磁石の原材料費が高くなる。 Pr の一部をDyで置き換える場合、合金中の置換されるPrの量は、Prに対する10at%以下であることが好ましい。10at%を越えると、磁化の低下が大きくなる等の問題が発生する。また、磁石の原材料費が高くなる。 Pr の一部をHoで置き換える場合、合金中の置換されるPrの量は、Prに対する10at%以下であることが好ましい。10at%を越えると、磁化の低下が大きくなる等の問題が発生する。また、磁石の原材料費が高くな

10

20

30

40

50

る。Prの一部を上記以外Nd, Tb, Dy, Ho以外の希土類元素で置き換える場合、合金中の置換されるPrの量は、Prに対する5at%以下であることが好ましい。5at%を越えると、磁化の低下が大きくなること、保磁力の低下が大きくなる等の問題が発生する。

【0026】

実施形態に係る希土類磁石合金は、 $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型ハード相を含んでいる。 $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型ハード相は、Feの一部をCoで置換したものである。Pr₂Fe₁₄B型ハード相のキュリー温度を上昇させ、希土類磁石合金の耐熱温度が向上し、使用温度範囲を拡大させることができる。

【0027】

実施形態に係る希土類磁石合金は、 $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型ハード相に加えて、少なくとも $\alpha\text{-Fe}$ 型ソフト相を含んでいる。 $\alpha\text{-Fe}$ 型ソフト相とは、Feの一部が他の元素で置換されている形態も含む概念である。Feの一部がCo等の遷移金属元素で置換されてもよい。特に、Feの一部をCoで置換した場合には、 $\alpha\text{-Fe}$ 型ソフト相のキュリー温度を上昇させ、希土類磁石合金の耐熱温度が向上し、使用温度範囲を拡大できる。

【0028】

実施形態に係る希土類磁石合金は、少なくとも $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型ハード相を含む、或いは $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型ハード相に加えて、少なくとも $\alpha\text{-Fe}$ 型ソフト相を含んでいる複合組織構造を有することで、合金に添加されたCoの分布の割合は明らかではないが、合金中の置換されるFeの量は、Feに対する0.1at%以上、30at%以下であることが好ましい。0.1at%未満であると、置換による効果が不十分となる恐れがある。30at%を越えると、磁化の低下が大きくなること、保磁力の低下が大きくなる等の問題が発生する。

【0029】

実施形態の希土類磁石合金は、合金溶湯を冷却した後、熱処理して得られる。すなわち、プラセオジウム(Pr)、鉄(Fe)、コバルト(Co)、チタン(Ti)、ホウ素(B)、ケイ素(Si)と、必須元素のイットリウム(Y)を、上記組成一般式 $\text{Pr}_x\text{Fe}_{100-x-y-z-o-p-q}\text{Co}_y\text{Ti}_z\text{B}_o\text{Y}_p\text{Si}_q$ (但し、 $x=10.0\sim13.0$ 、 $y=7.5\sim10.5$ 、 $z=0.1\sim2.0$ 、 $o=9.0\sim14.0$ 、 $p=0.1\sim1.2$ 、 $q=0\sim1.5$ である)を満たすように配合し、これらを溶解させ、その合金溶湯を、回転するロールに供給することで急冷合金を得る。この場合、ロールの周速度は $8.5\sim20\text{m/sec}$ の範囲に設定することが望ましい。ロールの周速度を前記範囲に設定することで、残留磁化(J_r)、保磁力(H_{CJ} ; H_{CB})、及び最大エネルギー積($(BH)_{max}$)等の磁気特性に優れた合金が得られる。ロールの周速度が 8.5m/sec 未満であると、急冷合金の内部組織が粗大なものとなり、均質性も失われ、磁石特性が低下してしまう。ロール周速度が 20.0m/sec を越えると、次工程で行われる熱処理の条件設定が難しくなる。

【0030】

実施形態の希土類磁石薄帯は、プラセオジウム(Pr)、鉄(Fe)、コバルト(Co)、チタン(Ti)、ホウ素(B)、ケイ素(Si)と、必須元素のイットリウム(Y)を、上記組成一般式 $\text{Pr}_x\text{Fe}_{100-x-y-z-o-p-q}\text{Co}_y\text{Ti}_z\text{B}_o\text{Y}_p\text{Si}_q$ (但し、 $x=10\sim13$ 、 $y=7.5\sim10.5$ 、 $z=0.1\sim2.0$ 、 $o=9.0\sim14.0$ 、 $p=0.1\sim1.2$ 、 $q=0\sim1.5$ である)を満たすように配合し、これらを溶解させ、その合金溶湯を、回転する冷却ロールに供給して急冷することで得る。すなわち、実施形態の希土類磁石薄帯は、プラセオジウム(Pr)、鉄(Fe)、コバルト(Co)、チタン(Ti)、ホウ素(B)、ケイ素(Si)と、必須元素のイットリウム(Y)を、上記組成一般式 $\text{Pr}_x\text{Fe}_{100-x-y-z-o-p-q}\text{Co}_y\text{Ti}_z\text{B}_o\text{Y}_p\text{Si}_q$ (但し、 $x=10\sim13$ 、 $y=7.5\sim10.5$ 、 $z=0.1\sim2.0$ 、 $o=10.5\sim14.0$ 、 $p=0.1\sim1.2$ 、 $q=0\sim1.5$ である)を満たすように配合し、これらを溶解させ、その合金溶湯を、回転するロールに供給して、急冷薄帯を得て、その

10

20

30

40

50

急冷薄帯を熱処理して、急冷薄帯を結晶化させる。この場合、ロールの周速度を $8.5 \sim 13.5 \text{ m/sec}$ に設定する。前記熱処理での加熱温度は $550 \sim 635^\circ\text{C}$ 、昇温時間は $1 \sim 7 \text{ min}$ 、保持時間は $1 \sim 7 \text{ min}$ に設定することが望ましい。

【0031】

実施形態の希土類磁石合金粉末は、上述した希土類磁石合金薄帯を粉砕して得られる。この希土類磁石合金粉末をボンド材で成形することで、実施形態のボンド磁石が得られる。実施形態のボンド磁石を得るには、次の過程を経て作成する。すなわち、上述した希土類磁石合金薄帯を $150 \mu\text{m}$ 以下に粉砕して希土類磁石合金粉末を得て、その希土類磁石合金粉末に耐熱性樹脂 $2.5 \text{ wt}\%$ を混合攪拌し、 980 MPa の圧力で圧縮成型した後、 $200^\circ\text{C} \times 1 \text{ h}$ のキュア処理を行うことにより作成する。なお、上述したボンド磁石を

10

【0032】

実施形態によれば、 Pr-Fe-Co-Ti-B-Si 系の組成に、イットリウム (Y) を必須元素として含有することで、残留磁化 J_r の低下を抑制して固有保磁力 H_{cJ} を向上させることができ、しかも、 Pr-Fe-Co-Ti-B-Si 系の組成のもつ熱安定性を発揮させることができる。

【0033】

次に、実施形態を裏付けるために各種の実験を行った。その実験を実施例として説明する。

20

(実施例1)

【0034】

(実施例1)

以下に述べる方法により、希土類磁石合金の組成が Pr を $10 \text{ at}\%$ 含む、 $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{69.5-p}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_p\text{Si}_{0.5}$ の希土類磁石合金を得た。実施例1では、表1に示すように、必須元素である Y の含有量 p を種々変化させた複数種の希土類磁石合金を得た。以下、具体的に説明する。

【0035】

まず、Pr、Fe、Co、Ti、B、Y、Si の各原料を秤量して、真空溶解により母合金インゴットを得た。次に、前記母合金インゴットを溶融させた溶融合金を、周速度 10 m/sec で回転するロールの上に噴射して、前記溶湯合金を前記ロール上で急冷し、リボン状の合金薄帯を得た。

30

【0036】

最適な急冷薄帯の熱処理条件を定める際の参考とするために、組成 $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{68.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_{1.0}\text{Si}_{0.5}$ の合金薄帯について DSC 曲線を測定した。測定結果を図1に示す。DSC 曲線の測定は、リガク社製示差熱量計を用いて行い、DSC (Differential Scanning Calorimetry) の昇温速度は 20°C/min で行った。

【0037】

希土類磁石合金における結晶相の同定は、急冷して得られた合金薄帯の試料に、低温より熱処理を施し、発熱ピーク温度に達した後、常温まで急冷し、X線回折を調べ、それぞれの発熱ピークがどの結晶相に対応しているかを確認した。DSC 曲線上には、図1に示すようにソフト相として作用する $\alpha\text{-Fe}$ 型結晶相と $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶相の発熱反応が見られた。また図1に示すように、ハード相として作用する $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶相の結晶化開始温度は約 545°C であることが分かり、経験的に、この組成系の熱処理は 500°C 以上で行うべきという指針が得られた。

40

【0038】

その後、急冷して得られた合金薄帯 (急冷薄帯) の試料に、アルゴンガス雰囲気中で、昇温時間 5 min 、 $600^\circ\text{C} \times 5 \text{ min}$ の熱処理を施した。ここで、昇温時間 5 min とは、室温から熱処理温度である 600°C までの昇温に要した時間が 5 min であったこと

50

を意味している。また、 $\times 5 \text{ min}$ と表記したのは、前記急冷薄帯を 600°C とした後、加熱を継続し、 600°C で保持した時間を、 5 min としたことを意味している。以下の表記も同様である。急冷薄帯の試料に対する磁気測定は、パルス着磁を行った後に、振動試料型磁力計 (VSM) を用いて測定した。

【0039】

表1の磁気特性からわかるように、 J_r 、 $(BH)_{\text{max}}$ は、イットリウム (Y) の含有量 p の増加とともに減少し、イットリウム (Y) の含有量が $p = 1.0$ まで減少する傾向を示した。 H_{cJ} は、イットリウム (Y) の含有量が $p = 1.0$ まで増加し、その後緩やかに減少する傾向を示した。また、 H_{cB} は、イットリウム (Y) の含有量の増加による変化がほとんどみられなかった。この結果より、合金薄帯の組成における Y の含有量 p は $1.0 \text{ at } \%$ が最適であることがわかる。

【0040】

【表1】

Yの含有量 p	J_r (T)	H_{cJ} (kA/m)	H_{cB} (kA/m)	$(BH)_{\text{max}}$ (kJ/m ³)
0	0.85	977.3	578.2	120.2
0.1	0.83	1139.4	565.7	116.3
0.3	0.82	1295.0	588.0	112.7
0.5	0.79	1350.4	504.2	103.9
0.7	0.78	1473.7	503.7	95.9
1.0	0.76	1670.0	520.0	99.7
1.2	0.78	1596.8	500.8	96.7

【0041】

ここで、Co を $8.0 \text{ at } \%$ としたのは、Co 量を $7.5 \text{ at } \%$ 、 $8 \text{ at } \%$ 、 $10 \text{ at } \%$ 、 $10.5 \text{ at } \%$ と変化させて磁気特性を評価したところ、Co 量が $8 \text{ at } \%$ の場合に磁気特性が最高値を示したためである。また、Ti 量を $1.5 \text{ at } \%$ としたのは、Ti 量を $0.1 \text{ at } \%$ 、 $0.5 \text{ at } \%$ 、 $1.0 \text{ at } \%$ 、 $1.5 \text{ at } \%$ 、 $2.0 \text{ at } \%$ と変化させて磁気特性を評価したところ、Ti 量が $1.5 \text{ at } \%$ の場合に磁気特性が最高値を示したためである。また、B 量を $10.5 \text{ at } \%$ としたのは、B 量を $9 \text{ at } \%$ 、 $10.5 \text{ at } \%$ 、 $12 \text{ at } \%$ と変化させて磁気特性を評価したところ、B 量が $10.5 \text{ at } \%$ の場合に磁気特性が最高値を示したためである。また、Si 量を $0.5 \text{ at } \%$ としたのは、Si 量を $0 \text{ at } \%$ 、 $0.5 \text{ at } \%$ 、 $1.0 \text{ at } \%$ 、 $1.5 \text{ at } \%$ と変化させて溶融合金を作製したところ、Si 無添加の場合は、湯流れが悪く、急冷薄帯を作製することが不可能であったことと、Si 添加により、 $q = 1.5$ まで、湯流れが良く、特に $q = 0.5$ の時、最良の湯流れとなり、良好な急冷薄帯を作製することができたことによる。

(実施例2)

【0042】

以下に述べる方法により、合金組成が $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{68.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_1\text{Si}_{0.5}$ の希土類磁石合金を得た。実施例2では、ロール周速度を変化させた複数種の合金薄帯を得た。以下、具体的に説明する。

【0043】

まず Pr、Fe、Co、Ti、B、Y、Si の各原料を秤量して、真空溶解により母合金インゴットを得た。次に、前記母合金インゴットを溶融させた溶融合金を、周速度を $7.5 \sim 15 \text{ m/sec}$ の範囲に設定したロールの上に噴射して、前記溶湯合金を前記ロール上で急冷し、リボン状の合金薄帯を得た。実施例2では、周速度を 7.5 m/sec 、 10 m/sec 、 12.5 m/sec 、 15 m/sec に変化させた場合での合金薄帯を得た。その後、合金薄帯に対して、アルゴンガス雰囲気中で、昇温時間 5 min 、 $600^\circ\text{C} \times 5 \text{ min}$ の熱処理を施した。合金薄帯の試料に対する磁気測定は、実施例1と同様に行った。

【0044】

表2の磁気特性からわかるように、 J_r 及び H_{cB} 、 $(BH)_{max}$ は、周速度 10 m/sec 以上にて大きな値を示し、 H_{cJ} は、周速度 10 m/sec で最大値を得た。以上の結果より、ロールの周速度は、 10 m/sec が最適であることがわかった。

【0045】

【表2】

周速度 (m/sec)	J_r (T)	H_{cJ} (kA/m)	H_{cB} (kA/m)	$(BH)_{max}$ (kJ/m^3)
7.5	0.74	1061.4	466.5	82.7
10	0.76	1670.0	520.0	99.7
12.5	0.77	1596.8	538.0	95.4
15	0.77	1333.0	527.1	93.3

10

(実施例3)

【0046】

以下に述べる方法により、希土類磁石合金の組成が $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{68.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_1\text{Si}_{0.5}$ の希土類磁石合金を得た。実施例3では、急冷後に行われる熱処理温度を変化させた複数種の希土類磁石合金薄帯を得た。以下、具体的に説明する。

20

【0047】

まず Pr 、 Fe 、 Co 、 Ti 、 B 、 Y 、 Si の各原料を秤量して、真空溶解により母合金インゴットを得た。次に、前記母合金を溶融させた溶融合金を、周速度 10 m/sec で回転するロールの上に噴射して、前記溶湯合金を前記ロール上で急冷し、リボン状の合金薄帯を得た。

【0048】

その後、前記合金薄帯の試料に対して、アルゴンガス雰囲気中で、昇温時間 5 min 、 $550\sim 625^\circ\text{C} \times 5\text{ min}$ の熱処理を施し、熱処理温度を変化させた複数種の合金薄帯を得た。合金薄帯の試料に対する磁気測定は、実施例1と同様に行った。

【0049】

表3の磁気特性からわかるように、急冷後に合金薄帯に対して施される熱処理での熱処理温度を増すと、 J_r にはほとんど変化が見られなかったが、 H_{cB} および $(BH)_{max}$ は低下する傾向にある。これに対して、 H_{cJ} は、熱処理温度 600°C で最大値をとることがわかった。以上の結果より、急冷後に合金薄帯に対して施される熱処理での熱処理温度は、 600°C が最適であることがわかる。

30

【0050】

【表3】

熱処理温度 ($^\circ\text{C}$)	J_r (T)	H_{cJ} (kA/m)	H_{cB} (kA/m)	$(BH)_{max}$ (kJ/m^3)
550	0.76	1416.3	610.7	122.0
575	0.76	1481.3	580.9	123.0
600	0.76	1670.0	520.0	99.7
625	0.74	1447.1	583.9	107.8

40

【0051】

図2に、急冷後に合金薄帯に対して施される熱処理での熱処理温度を $575^\circ\text{C} \sim 625^\circ\text{C}$ の範囲で変化させたときのX線回折図形を示す。図2から明らかなように、 As melt-spin では結晶質相と非晶質相が混在しているものと思われる。また、 575°C

50

、600℃、625℃のいずれの熱処理温度においても、ハード相としての $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶相と、ソフト相としての $\alpha\text{-Fe}$ 型結晶相が現れ、複合組織であることがわかった。

(実施例4)

【0052】

以下に述べる方法により、合金組成が $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{68.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_1\text{Si}_{0.5}$ の希土類磁石合金を得た。実施例4では、急冷後に合金薄帯に対して施される熱処理の保持時間を変化させた複数種の合金薄帯を得た。具体的に説明する。

【0053】

まずPr、Fe、Co、Ti、B、Y、Siの各原料を秤量して、真空溶解により母合金インゴットを得た。次に、前記母合金を溶融させた溶融合金を、周速度10m/secで回転するロールの上に噴射して、前記溶湯合金を前記ロール上で急冷し、リボン状の合金薄帯を得た。

【0054】

その後、急冷して得られた合金薄帯の試料に、アルゴンガス雰囲気中で、昇温時間5min、600℃×3～7minの熱処理を施し、熱処理の保持時間を変化させた複数種の合金薄帯を得た。合金薄帯の試料に対する磁気測定は、実施例1と同様に行った。

【0055】

表4の磁気特性からわかるように、熱処理時間5minにて、 J_r 、 H_{cJ} 、 H_{cB} および $(BH)_{\max}$ がともに最大値を示した。以上の結果より急冷後に合金薄帯に対して施される熱処理の保持時間は、5minが最適であることがわかる。

【0056】

【表4】

保持時間 (min)	J_r (T)	H_{cJ} (kA/m)	H_{cB} (kA/m)	$(BH)_{\max}$ (kJ/m ³)
3	0.75	1579.2	450.5	95.2
5	0.76	1670.0	520.0	99.7
7	0.75	1596.7	460.5	96.2

(実施例5)

【0057】

以下に述べる方法により、合金組成が $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{68.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_1\text{Si}_{0.5}$ の希土類磁石合金を得た。実施例5では、急冷後に合金薄帯に対して施される熱処理の加熱昇温時間を変化させた複数種の合金薄帯を得た。具体的に説明する。

【0058】

まずPr、Fe、Co、Ti、B、Y、Siの各原料を秤量して、真空溶解により母合金インゴットを得た。次に、前記母合金を溶融させた溶融合金を、周速度10m/secで回転するロールの上に噴射して、前記溶湯合金を前記ロール上で急冷し、リボン状の合金薄帯を得た。

【0059】

その後、急冷後に合金薄帯に対して、アルゴンガス雰囲気中で、加熱処理の加熱昇温時間3～7min、600℃×5minの範囲で熱処理を施し、熱処理の昇温時間を変化させた複数種の合金薄帯を得た。合金薄帯の試料に対する磁気測定は、実施例1と同様に行った。

【0060】

表5の磁気特性からわかるように、熱処理の昇温時間5minにて、 J_r 、 H_{cJ} 、 H

c_B および $(BH)_{max}$ がともに最大値を示した。以上の結果より、熱処理の昇温時間は、5 min が最適であることがわかる。

【0061】

【表5】

昇温時間 (min)	J_r (T)	H_{cJ} (kA/m)	H_{cB} (kA/m)	$(BH)_{max}$ (kJ/m ³)
3	0.75	1591.9	499.7	98.8
5	0.76	1670.0	520.0	99.7
7	0.75	1578.2	477.4	97.0

10

【0062】

実施例1～5の結果より定めた、Pr含有量10at%である希土類磁石合金薄帯の最適条件（組成 $Pr_{10}Fe_{68.5}Co_8Ti_{1.5}B_{10.5}Y_1Si_{0.5}$ 、ロール周速度10m/sec、昇温時間5min、熱処理温度600℃、保持時間5min）にて作製した希土類磁石薄帯の室温で測定した減磁曲線を図3に示す。

【0063】

図3にから明らかなように、 $J_r = 0.76$ T、 $H_{cJ} = 1670$ kA/m、 $H_{cB} = 520$ kA/m、 $(BH)_{max} = 99.7$ kJ/m³、 $H_k/H_{cJ} = 21.8\%$ と、優れた保磁力を有する希土類磁石合金薄帯であった。

20

【0064】

図4は、得られた合金薄帯の J_r と H_{cJ} の温度特性である。試料は予め、4.8MA/mにて着磁し、振動試料型磁力計（VSM）を用いて測定した。25℃から125℃の範囲で求めた J_r の可逆温度係数の平均値 $\alpha(J_r)_{ave}$ は、 $\alpha(J_r)_{ave} = -0.078$ （%/℃）であり、25℃から125℃の範囲で求めた H_{cJ} の可逆温度係数の平均値 $\alpha(H_{cJ})_{ave}$ は、 $\alpha(H_{cJ})_{ave} = -0.430$ （%/℃）と、磁気特性の熱変動が小さく抑えられた、耐熱性に優れる希土類磁石合金薄帯であった。

【0065】

図5は、得られた希土類磁石合金薄帯の $\sigma-T$ 曲線である。試料は予め、4.8MA/mにて着磁し、振動試料型磁力計（VSM）を用いて測定した。測定磁界は160kA/mであった。図5より、試料のキュリー温度は392℃、 $Pr_2Fe_{14}B$ 型結晶相の量はおよそ79.1vol%、 $\alpha-Fe$ 型結晶相の量はおよそ20.9vol%であった。

30

【0066】

図6は、得られた合金薄帯TEM写真と電子線回折図形である。結晶粒径はTEM写真より、約24～42nm程度のものが観察され、平均結晶粒径は31nmであることがわかった。また、電子線回折写真より等方性であることがわかった。

（実施例6）

【0067】

Pr含有量10at%である希土類磁石合金薄帯の最適条件（組成 $Pr_{10}Fe_{68.5}Co_8Ti_{1.5}B_{10.5}Y_1Si_{0.5}$ 、ロール周速度10m/sec、昇温時間5min、熱処理温度600℃、保持時間5min）にて作製した希土類磁石合金薄帯を用いて、ボンド磁石を作製した。

40

【0068】

まず、前記希土類磁石合金薄帯を150μm以下に粉碎して、希土類磁石合金粉末を得た。前記希土類磁石合金粉末と、バインダーとして作用する耐熱性樹脂であるエポキシ樹脂2.5質量%とを混合攪拌し、980MPaの圧力で圧縮成形した。その後、180℃×1hの硬化処理を行い、直径10mm×長さ7.9mmの等方性ボンド磁石を得た。

【0069】

50

各ボンド磁石の磁気特性は、 4.8 MA/m のパルス着磁を行った後に、高感度自記磁束計（東英工業社製）を用いて測定した。ボンド磁石の減磁曲線を図7に示す。このボンド磁石の密度は 6.27 Mg/m^3 であった。また、磁気特性の値はそれぞれ $J_r = 0.61 \text{ T}$ 、 $H_{cJ} = 1.47 \text{ MA/m}$ 、 $H_{cB} = 0.42 \text{ MA/m}$ 、 $(BH)_{max} = 63.3 \text{ kJ/m}^3$ 、 $H_k/H_{cJ} = 21.8\%$ と保磁力に優れるボンド磁石であった。

【0070】

ボンド磁石の不可逆減磁率は、以下の様に求めた。まず、デジタルフラックスメータ（東英工業社製）を使用し、 4.8 MA/m のパルス着磁した後のボンド磁石の磁束（F1）を測定した。次に、恒温槽にて所定の温度で1時間保持し、空气中で1時間放冷した後のボンド磁石の磁束（F2）を測定した。これらの測定結果に基づき、 125°C 、 150°C および 175°C における不可逆減磁率（%）を、 $(F1 - F2) \times 100 / F1$ により算出した。

【0071】

作製したボンド磁石の不可逆減磁率の温度依存性を図8に示す。図8からわかるように、本発明のボンド磁石における減磁率は、 125°C において、 -0.85% 、 150°C において、 -1.40% 、 175°C において、 -2.11% と、優れた耐熱性をもつボンド磁石となっている。

（実施例7）

【0072】

以下に述べる方法により、希土類磁石合金の組成が、Prを11at%含む、 $\text{Pr}_{11}\text{Fe}_{68.5-p}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_p\text{Si}_{0.5}$ の希土類磁石合金を得た。実施例7では、表6に示すように、必須元素であるYの含有量pを種々変化させた複数主の希土類磁石合金を得た。具体的に説明する。

【0073】

まずPr、Fe、Co、Ti、B、Y、Siの各原料を秤量して、真空溶解により母合金インゴットを得た。次に、前記母合金を溶融させた溶融合金を、周速度 10 m/sec で回転するロールの上に噴射して、前記溶湯合金を前記ロール上で急冷し、リボン状の合金薄帯を得た。

【0074】

最適な急冷薄帯の熱処理条件を定める際の参考とするために、組成 $\text{Pr}_{11}\text{Fe}_{67.8}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_{0.7}\text{Si}_{0.5}$ の合金薄帯について実施例1と同様にしてDSC曲線を測定した。測定結果を図9に示す。

【0075】

希土類磁石合金における結晶相の同定は、急冷薄帯試料に低温より熱処理を施し、発熱ピーク温度に達した後、常温まで急冷し、X線回折を調べ、それぞれの発熱ピークがどの結晶相に対応しているかを確認した。図9のDSC曲線上には、ソフト相として作用する $\alpha\text{-Fe}$ 型結晶相と Fe_3B 型結晶相および $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶相の発熱反応が見られた。また、ハード相として作用する $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶相の結晶化開始温度は明瞭には把握されなかったが、約 600°C にDSC信号の屈曲が認められることから、この組成系の熱処理はおよそ 600°C 以上で検討を行った。

【0076】

その後、急冷して得られた合金薄帯の試料に、アルゴンガス雰囲気中で、昇温時間 5 min 、 $625^\circ\text{C} \times 5 \text{ min}$ の熱処理を施した。合金薄帯の試料に対する磁気測定は、実施例1と同様に行った。

【0077】

表6の磁気特性からわかるように、 J_r 、 $(BH)_{max}$ 及び H_{cJ} は、イットリウム（Y）の含有量pの増加とともにほぼ減少する傾向を示したが、イットリウム（Y）の含有量が $p = 0.7$ で極大値をそれぞれ示した。 H_{cJ} は、イットリウム（Y）の含有量が $p = 0.7$ まで増加し、その後緩やかに減少する傾向を示した。したがって、イットリウム（Y）の含有量pは、 $0.7 \text{ at\%}$ が最適であることがわかる。

【0078】

【表6】

Yの含有量 p	J_r (T)	H_{cJ} (k A/m)	H_{cB} (k A/m)	$(BH)_{max}$ (k J/m ³)
0	0.80	1568.2	497.0	110.1
0.1	0.78	1594.1	483.6	102.3
0.3	0.77	1621.1	457.1	99.3
0.5	0.74	1736.9	457.1	90.7
0.7	0.77	1820.0	540.0	103.5
1	0.73	1692.1	467.2	92.4

10

(実施例8)

【0079】

以下に述べる方法により、合金組成が $Pr_{1.1}Fe_{6.7.8}Co_8Ti_{1.5}B_{10.5}Y_{0.7}Si_{0.5}$ の希土類磁石合金を得た。実施例8では、ロールの周速度を変化させた複数種の合金薄帯を得た。以下、具体的に説明する。

【0080】

まずPr、Fe、Co、Ti、B、Si各原料を秤量して、真空溶解により母合金インゴットを得た。次に、前記母合金を溶融させた溶融合金を、周速度7.5から15m/secで回転するロールの上に噴射して、前記溶湯合金を前記ロール上で急冷し、リボン状の合金薄帯を得た。実施例8では、ロールの周速度を7.5m/sec、10m/sec、12.5m/sec、15m/secに変化させた場合での合金薄帯を得た。その後、合金薄帯に対して、アルゴンガス雰囲気中で、昇温時間5min、625℃×5minの熱処理を施した。合金薄帯の試料に対しての磁気測定は、実施例1と同様に行った。

20

【0081】

表7の磁気特性からわかるように、周速度を大きくすると、 J_r 、 H_{cJ} 、 H_{cB} 及び $(BH)_{max}$ はいずれも周速度10m/s及び20m/sにおいて良好な値を示した。特に、 J_r および $(BH)_{max}$ は、周速度10m/secで最大値を示した。以上の結果により、ロールの周速度が10～12.5m/secの範囲のうち、ロールの周速度は、10m/secが最適であることがわかった。

30

【0082】

【表7】

周速度 (m/s)	J_r (T)	H_{cJ} (k A/m)	H_{cB} (k A/m)	$(BH)_{max}$ (k J/m ³)
7.5	0.75	1497.6	512.6	97.9
10	0.77	1820.0	540.0	103.5
12.5	0.77	1779.3	545.3	104.8
15	0.76	1379.6	507.7	94.3

40

(実施例9)

【0083】

以下に述べる方法により、合金組成が $Pr_{1.1}Fe_{6.7.8}Co_8Ti_{1.5}B_{10.5}Y_{0.7}Si_{0.5}$ の希土類磁石合金を得た。実施例9では、急冷後に行われる加熱処理の加熱処理温度を変化させた複数種の希土類磁石合金薄帯を得た。具体的に説明する。

【0084】

まずPr、Fe、Co、Ti、B、Y、Siの各原料を秤量して、真空溶解により母合金インゴットを得た。次に、前記母合金を溶融させた溶融合金を、周速度10m/secで回転するロールの上に噴射して、前記溶湯合金を前記ロール上で急冷し、リボン状の合

50

金薄帯を得た。

【0085】

その後、急冷して得られた合金薄帯に対して、アルゴンガス雰囲気中で、昇温時間 5 min、575～650℃×5 min の熱処理を施し、熱処理温度を変化させた複数種の合金薄帯を得た。合金薄帯の試料に対する磁気測定は、実施例 1 と同様に行った。

【0086】

表 8 の磁気特性からわかるように、熱処理温度が増すと、 J_r と $(BH)_{max}$ は増大する傾向にあり、 H_{cJ} と H_{cB} は熱処理温度 625℃で最大値をとることがわかった。以上の結果より、熱処理温度は 625℃が最適であることがわかる。

【0087】

【表 8】

熱処理温度 (℃)	J_r (T)	H_{cJ} (kA/m)	H_{cB} (kA/m)	$(BH)_{max}$ (kJ/m ³)
575	0.76	1687.5	476.4	100.2
600	0.76	1757.4	476.4	99.6
625	0.77	1820.0	540.0	103.5
650	0.78	1371.9	492.6	106.6

10

【0088】

図 10 に、熱処理温度を 575℃～650℃の範囲で変化させたときの X 線回折図形を示す。図 10 より、As melt-spun では結晶質相と非晶質相が混在しているものと思われる。また、いずれの熱処理温度においても、 $Pr_2Fe_{14}B$ 型結晶相と α -Fe 型結晶相が現れ、複合組織であることがわかった。

(実施例 10)

【0089】

以下に述べる方法により、合金組成が $Pr_{11}Fe_{67.8}Co_8Ti_{1.5}B_{10.5}Y_{0.7}Si_{0.5}$ の希土類磁石合金を得た。実施例 10 では、急冷後に合金薄帯に対して施される熱処理の保持時間を変化させた複数種の合金薄帯を得た。具体的に説明する。

20

【0090】

まず Pr、Fe、Co、Ti、B、Si 各原料を秤量して、真空溶解により母合金インゴットを得た。次に、前記母合金を溶融させた溶融合金を、周速度 10 m/sec で回転するロールの上に噴射して、前記溶湯合金を前記ロール上で急冷し、リボン状の合金薄帯を得た。

【0091】

その後、アルゴンガス雰囲気中で、昇温時間 5 min、625℃×1～7 min (保持時間) の熱処理を施し、熱処理の保持時間を変化させた複数種の合金薄帯を得た。合金薄帯の試料に対する磁気測定は、実施例 1 と同様に行った。

30

【0092】

表 9 の磁気特性からわかるように、 J_r は、熱処理時間を増すと、増大する傾向を示した。 J_r 、 H_{cJ} 、 H_{cB} や $(BH)_{max}$ は、保持時間 5 min にてともに最大値を示した。以上の結果より、熱処理の保持時間は、5 min が最適であることがわかる。

40

【0093】

【表 9】

保持時間 (min)	J_r (T)	H_{cJ} (kA/m)	H_{cB} (kA/m)	$(BH)_{max}$ (kJ/m ³)
1	0.76	1645.7	478.5	100.2
5	0.77	1820.0	540.0	103.5
7	0.79	1741.5	485.0	102.4

10

(実施例 11)

【0094】

以下に述べる方法により、合金組成が $Pr_{11}Fe_{67.8}Co_8Ti_{1.5}B_{10.5}Y_{0.7}Si_{0.5}$ の希土類磁石合金を得た。実施例 11 では、熱処理の昇温時間を変化させた複数種の合金薄帯を得た。具体的に説明する。

【0095】

まず Pr、Fe、Co、Ti、B、Si 各原料を秤量して、真空溶解により母合金インゴットを得た。次に母合金を溶融させた溶融合金を周速度 10 m/sec で回転するロールの上に噴射して、前記溶湯合金を前記ロール上で急冷し、リボン状の合金薄帯を得た。

【0096】

その後、急冷して得られた合金薄帯に対して、アルゴンガス雰囲気中で、昇温時間 1 ~ 7 min、625℃×5 min の熱処理を施し、熱処理の昇温時間を変化させた複数種の合金薄帯を得た。合金薄帯の試料に対する磁気測定は、実施例 1 と同様に行った。

20

【0097】

表 10 の磁気特性からわかるように、昇温時間が増すと、 J_r と $(BH)_{max}$ は緩やかに増大する傾向にあるが、 H_{cJ} は昇温時間 5 min でともに最大値を示した。また、 H_{cB} にはほとんど変化が見られなかった。以上の結果より、昇温時間は、 H_{cJ} が最大値を示した 5 min が最適であると判断した。

【0098】

【表 10】

30

昇温時間 (min)	J_r (T)	H_{cJ} (kA/m)	H_{cB} (kA/m)	$(BH)_{max}$ (kJ/m ³)
1	0.76	1639.9	513.6	101.6
5	0.77	1820.0	540.0	103.5
7	0.77	1726.7	527.7	104.4

【0099】

40

実施例 7 ~ 11 の結果より定めた、Pr 含有量 11 at % である希土類磁石合金薄帯の最適条件（組成 $Pr_{11}Fe_{67.8}Co_8Ti_{1.5}B_{10.5}Y_{0.7}Si_{0.5}$ 、ロール周速度 10 m/sec、昇温時間 5 min、熱処理温度 625℃、保持時間 5 min）にて作製した希土類磁石薄帯の室温で測定した減磁曲線を図 11 に示す。 $J_r = 0.77$ T、 $H_{cJ} = 1820$ kA/m、 $H_{cB} = 540$ kA/m、 $(BH)_{max} = 103.5$ kJ/m³、 $H_k/H_{cJ} = 24.0\%$ と、優れた保磁力を有する磁石合金薄帯であった。

【0100】

図 12 は得られた合金薄帯の J_r と H_{cJ} の温度特性である。試料は予め、4.8 MA/m にて着磁し、振動試料型磁力計 (VSM) を用いて測定した。25℃ から 125℃ の

50

範囲で求めた J_r の可逆温度係数の平均値 $\alpha(J_r)_{ave}$ は、 $\alpha(J_r)_{ave} = -0.078$ ($\%/^{\circ}\text{C}$) であり、 25°C から 125°C の範囲で求めた H_{cJ} の可逆温度係数の平均値 $\alpha(H_{cJ})_{ave}$ は、 $\alpha(H_{cJ})_{ave} = -0.420$ ($\%/^{\circ}\text{C}$) と、磁気特性の熱変動が小さく抑えられた、耐熱性に優れる磁石合金薄帯であった。

【0101】

図13は得られた合金薄帯の $\sigma-T$ 曲線である。試料は予め、 4.8MA/m にて着磁し、振動試料型磁力計 (VSM) を用いて測定した。測定磁界は 160kA/m であった。図5より、試料のキュリー温度は 380°C 、 $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶相の量はおよそ $88.3\text{vol}\%$ 、 $\alpha\text{-Fe}$ 型結晶相の量はおよそ $11.7\text{vol}\%$ であった。

【0102】

図14は得られた合金薄帯 TEM 写真と電子線回折図形である。結晶粒径は TEM 写真より、約 $21 \sim 43\text{nm}$ 程度のものが観察され、平均結晶粒径は 31nm であることがわかった。また、電子線回折写真より等方性であることがわかった。

【0103】

(実施例12)

Pr 含有量 $11\text{at}\%$ である希土類磁石合金薄帯の最適条件 (組成 $\text{Pr}_{11}\text{Fe}_{67.8}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_{0.7}\text{Si}_{0.5}$ 、ロール周速度 10m/sec 、昇温時間 5min 、熱処理温度 625°C 、保持時間 5min) にて作製した合金薄帯を用いて、ボンド磁石を作製した。

【0104】

まず、合金薄帯を $150\mu\text{m}$ 以下に粉碎して、合金粉末を得た。合金粉末と、バインダーとして作用する耐熱性樹脂であるエポキシ樹脂 2.5 質量% とを混合攪拌し、 980MPa の圧力で圧縮成形した。その後、 $180^{\circ}\text{C} \times 1\text{h}$ の硬化処理を行い、直径 $10\text{mm} \times$ 長さ 7.9mm の等方性ボンド磁石を得た。各ボンド磁石の磁気特性は、 4.8MA/m のパルス着磁を行った後に、高感度自記磁束計 (東英工業社製) を用いて測定した。ボンド磁石の減磁曲線を図15に示す。このボンド磁石の密度は 6.29Mg/m^3 であった。また、磁気特性の値はそれぞれ $J_r = 0.63\text{T}$ 、 $H_{cJ} = 1600\text{kA/m}$ 、 $H_{cB} = 430\text{kA/m}$ 、 $(BH)_{max} = 67.6\text{kJ/m}^3$ と、特に優れた保磁力有するボンド磁石であった。

【0105】

実施例6と同様にして求めた、作製したボンド磁石の不可逆減磁率の温度依存性を図16示す。図16からわかるように、本発明のボンド磁石における減磁率は、 125°C において、 -1.3% 、 150°C において、 -2.1% 、 175°C において、 -3.7% 、と、優れた耐熱性をもつボンド磁石になっている。

(実施例13)

【0106】

以下に述べる方法により、合金組成が $\text{Pr}_x\text{Fe}_{68.5-x}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_{0.7}\text{Si}_{0.5}$ の希土類磁石合金を得た。実施例13では、Pr の含有量 x を種々変化させた複数種の希土類磁石合金を得た。具体的に説明する。

【0107】

まず Pr、Fe、Co、Ti、B、Si の各原料を秤量して、真空溶解により母合金インゴットを得た。次に、前記母合金を溶融させた溶融合金を、周速度 10m/sec で回転するロールの上に噴射して、前記溶湯合金を前記ロール上で急冷し、リボン状の合金薄帯を得た。

【0108】

その後、急冷して得られた合金薄帯に対して、アルゴンガス雰囲気中で、昇温時間 5min 、 $625^{\circ}\text{C} \times 5\text{min}$ の熱処理を施した。合金薄帯の試料に対しての磁気測定は、実施例1と同様に行った。

【0109】

表11の磁気特性からわかるように、Pr の含有量 x の増加に対し、 J_r および (BH)

10

20

30

40

50

) m_{ax} は、Pr の含有量 x が ' 11 ' を超えると、一度減少し、Pr の含有量 x の増加とともに緩やかに増加する傾向を示した。 H_{cJ} は、Pr の含有量 x の増加とともに、Pr の含有量 x が ' 12 ' まで増加し、その後緩やかに減少した。また、 H_{cB} は、Pr の含有量の増加と共に減少傾向を示し、Pr の含有量 x が ' 12 ' で極小値を示した後、増加に転じた。この結果より、Pr の含有量 x は 12.0 at % において、特に大きな H_{cJ} が得られることがわかった。

【0110】

【表11】

Pr の含有量 x	J_r (T)	H_{cJ} (kA/m)	H_{cB} (kA/m)	$(BH)_{max}$ (kJ/m ³)
10	0.82	1448.7	560.6	114.7
11	0.77	1820.0	540.0	103.5
12	0.74	1934.3	501.5	93.7
13	0.77	1763.9	538.9	104.72

10

(実施例14)

【0111】

以下に述べる方法により、合金組成が Pr を 13 at % 含む、 $Pr_{13}Fe_{76.3}Co_{8}Ti_{1.5}B_oY_{0.7}Si_{0.5}$ の希土類磁石合金を得た。実施例14では、B の含有量 o を種々変化させた複数種の希土類磁石合金を得た。具体的に説明する。

20

【0112】

まず Pr、Fe、Co、Ti、B、Y、Si の各原料を秤量して、真空溶解により母合金インゴットを得た。次に、B の含有量 o が ' 10.5 ' である母合金については、母合金を溶融させた溶融合金を、周速度 10 m/sec で回転するロールの上に噴射して、前記溶湯合金を前記ロール上で急冷し、リボン状の合金薄帯を得た。

【0113】

その後、急冷して得られた合金薄帯に対して、アルゴンガス雰囲気中で、昇温時間 5 min、625℃×5 min の熱処理を施した。合金薄帯の試料に対する磁気測定は、実施例1と同様に行った。

30

【0114】

B の含有量 o が ' 14 ' である母合金については、母合金を溶融させた溶融合金を、周速度 20 m/sec で回転するロールの上に噴射して、前記溶湯合金を前記ロール上で急冷し、リボン状の合金薄帯を得た。

【0115】

その後、急冷して得られた合金薄帯に対して、アルゴンガス雰囲気中で、昇温時間 5 min、575℃×5 min の熱処理を施した。合金薄帯の試料に対する磁気測定は、実施例1と同様に行った。

【0116】

表12の磁気特性からわかるように、B の含有量 o を増すと、 J_r 、 $(BH)_{max}$ および H_{cB} は減少したが、 H_{cJ} は大きく増大した。この結果より、B の含有量 o は 14.0 at % において、特に大きな H_{cJ} が得られることがわかった。

40

【0117】

【表 1 2】

Bの含有量 o	J_r (T)	H_{cJ} (k A/m)	H_{cB} (k A/m)	$(BH)_{max}$ (k J/m ³)
10.5	0.77	1763.9	538.9	104.7
14	0.67	1920.7	443.4	80.2

10

【0 1 1 8】

図 1 7 は、B の含有量 $o = 14$ の薄帯試料の TEM 像、図 1 8 は図 1 7 の一部の拡大である。図 1 7 より、約 100 ～ 400 nm の粗大な粒子 A と約 13 ～ 40 nm の微細な粒子 B が見られた。粒子 A と粒子 B は、粒径が異なるだけで同一のものかもしれないが、詳細はわからなかった。また、図 1 8 より、前記約 40 ～ 420 nm の粗大な粒子の内部には、約 6 ～ 20 nm の微細な粒子 C が含まれている。図 1 9 は、前記粗大な粒子のひとつを選び測定した、制限視野回折像である。図 1 9 より、単一結晶相由来と思われる回折パターンが強く観測されるとともに、合わせて前記単一結晶相由来と思われる回折パターンとは、別の回折パターンが弱く観測された。

以上をまとめると、前記薄帯には、

20

a) 約 6 ～ 20 nm の微細な粒子

b) 前記約 6 ～ 20 nm の微細な粒子を包含し、単一結晶相の回折パターンを与える約 40 ～ 約 420 nm の粗大な粒子

c) 前記約 40 ～ 約 420 nm の粗大な粒子の粒界部にある、約 13 ～ 40 nm の微細な粒子

の三種類に大別される粒子が含まれることがわかった。

【0 1 1 9】

希土類磁石薄帯において大きな固有保磁力を得ようとした場合、一般に微細な結晶粒からなる組織構造を形成し、個々の結晶粒に含まれる逆磁区核発生サイトを減らすことや、磁壁移動を妨げることで、容易に磁化反転が進行することを抑制し、固有保磁力を高めることができる。本発明の希土類磁石においては、たとえ粗大な結晶粒が介在するにもかかわらず、高い固有保磁力が実現されているが、粗大な結晶粒が、微細な結晶粒を内包していることが保磁力を高める効果に寄与しているものと考えられる。

30

(実施例 15)

【0 1 2 0】

また、上述した希土類磁石合金薄帯を 150 μm 以下に粉碎して希土類磁石合金粉末を得て、その希土類磁石合金粉末に耐熱性樹脂 2.5 wt % を混合攪拌し、980 MPa の圧力で圧縮成型した後、200 $^{\circ}\text{C} \times 1 \text{ h}$ のキュア処理を行うことにより作製した。ボンド磁石の磁気特性は、4.8 MA/m のパルス着磁後、高感度自記磁束計を用いて測定した。その結果、ボンド磁石の室温での固有保磁力 H_{cJ} が $1.6 \text{ MA/m} \leq H_{cJ} \leq 2.0 \text{ MA/m}$ を示した。さらに、25 $^{\circ}\text{C}$ から 125 $^{\circ}\text{C}$ まで加熱した際の不可逆減磁率が -2.2 % 未満であった。25 $^{\circ}\text{C}$ から 150 $^{\circ}\text{C}$ まで加熱した際の前記結晶構造の不可逆減磁率が -4.2 % 未満であった。25 $^{\circ}\text{C}$ から 175 $^{\circ}\text{C}$ まで加熱した際の前記結晶構造の不可逆減磁率が -6.0 % 未満であった。これらの結果から、熱安定性に優れていることが分かった。

40

(考察)

【0 1 2 1】

以上の実験結果を考察すると、プラセオジウム (Pr)、鉄 (Fe)、コバルト (Co)、チタン (Ti)、ホウ素 (B)、ケイ素 (Si) の Pr-Fe-Co-Ti-B-Si 系の組成に、必須元素として含有するイットリウム (Y) の含有量 p について考察する。Pr

50

が10at%の場合、 H_{cJ} を高めつつ、 $(BH)_{max}$ を維持する、及び H_{cJ} を高めつつ、 J_r を維持するには、Yの含有量pは0.9~1.2であった。Prが11at%の場合、 H_{cJ} を高めつつ、 J_r を維持するには、Yの含有量pは0.5~1.0であった。同様に、 H_{cJ} を高めつつ、 $(BH)_{max}$ を維持するには、Yの含有量pは、0.1~1.0であった。また、Prが12~13at%の場合、 H_{cJ} を高めつつ、 J_r を維持するには、Yの含有量pは0.7であった。同様に、 H_{cJ} を高めつつ、 $(BH)_{max}$ を維持するには、Yの含有量pは、0.7であった。

0.1at%未満では、Yを添加した効果が十分に発揮されず、また、2.0at%を超えると、合金中の総希土類量が大きくなりすぎるため、ソフト相である α -Fe型結晶相の体積分率が減じられることや、 $Pr_2Fe_{14}B$ 型結晶相のRサイトへのY元素の置換量が大きくなりすぎるために、ハード相の異方性磁場が減じられてしまい、 J_r や H_{cJ} 、 $(BH)_{max}$ などの磁気特性が悪化する。1.2at%から2at%については未検討であるが、上記弊害は小さく抑えられるものと推測される。

したがって、Yの含有量は、下限を0.1、上限を1.2に設定すべきである。

【0122】

次に、ロールの周速度について考察する。Prが10at%である場合、 H_{cJ} を高めつつ、 $(BH)_{max}$ を維持する、及び H_{cJ} を高めつつ、 J_r を維持するには、ロールの周速度は、9.5~12.5であった。Prが11at%の場合、 H_{cJ} を高めつつ、 J_r を維持するには、ロールの周速度は、9~13.5であった。同様に、 H_{cJ} を高めつつ、 $(BH)_{max}$ を維持するには、ロールの周速度は、8.5~13.5であった。また、Prが12at%の場合は、検討した10m/secにおいて、 H_{cJ} を高めつつ、 J_r を維持し、同様に、 H_{cJ} を高めつつ、 $(BH)_{max}$ を維持することができた。Prが13at%の場合は、検討した10m/sec及び20m/secのいずれにおいて、 H_{cJ} を高めつつ、 J_r を維持し、同様に、 H_{cJ} を高めつつ、 $(BH)_{max}$ を維持することができた。

ロールの周速度を8.5m/s未満に設定すると、急冷合金の内部組織が粗大になり、均質性が失われ、磁石特性も低下した。ロール周速度を20m/sを越えると、次工程での熱処理条件設定が困難であった。したがって、ロールの周速度は、8.5~20m/sに設定すべきである。

【0123】

次に、加熱処理での熱処理温度について考察する。Prが10at%である場合、 H_{cJ} を高めつつ、 J_r を維持するには、熱処理温度は、595~605℃であった。同様に、 H_{cJ} を高めつつ、 $(BH)_{max}$ を維持するには、熱処理温度は、550~610℃であった。Prが11at%の場合、 H_{cJ} を高めつつ、 $(BH)_{max}$ を維持する、及び H_{cJ} を高めつつ、 J_r を維持するには、熱処理温度は、575~635℃であった。Prが12at%の場合は、検討した熱処理温度625℃において、 H_{cJ} を高めつつ、 J_r を維持し、同様に、 H_{cJ} を高めつつ、 $(BH)_{max}$ を維持することができた。特に磁気特性が良好であることから、この周囲においても、熱処理温度を選択可能であると予想される。

Prが13at%の場合は、検討した熱処理温度575~625℃において、 H_{cJ} を高めつつ、 J_r を維持し、同様に、 H_{cJ} を高めつつ、 $(BH)_{max}$ を維持することができた。

熱処理温度が550℃未満であると、ハード相として作用する $Pr_2Fe_{14}B$ 型結晶相の成長が不足するため、この結果十分大きな固有保磁力 H_{cJ} を得ることができない。また、熱処理温度が635℃を超えると、ハード相として作用する $Pr_2Fe_{14}B$ 型結晶相が粗大化してしまい、固有保磁力 H_{cJ} が低下してしまう。

したがって、熱処理温度は、550~635℃の範囲に設定すべきである。

【0124】

次に、加熱処理での保持時間について考察する。Prが10at%である場合、 H_{cJ} を高めつつ、 J_r を維持するには、保持時間は、3.5~6.5minであった。同様に

、 H_{cJ} を高めつつ、 $(BH)_{max}$ を維持するには、保持時間は、3.5～7minであった。 Pr が11at%の場合、 H_{cJ} を高めつつ、 $(BH)_{max}$ を維持する、及び H_{cJ} を高めつつ、 J_r を維持するには、保持時間は、1～7minであった。すなわち、検討した保持時間1～7minの全域で、 H_{cJ} を高めつつ、 $(BH)_{max}$ を維持する、及び H_{cJ} を高めつつ、 J_r を維持することができた。

Pr が12at%の場合は、検討した5minにおいて、 H_{cJ} を高めつつ、 J_r を維持し、同様に、 H_{cJ} を高めつつ、 $(BH)_{max}$ を維持することができた。

Pr が13at%の場合は、検討した5minにおいて、 H_{cJ} を高めつつ、 J_r を維持し、同様に、 H_{cJ} を高めつつ、 $(BH)_{max}$ を維持することができた。

熱処理の保持時間が1min未満であると、 $Pr_2Fe_{14}B$ 型結晶相の成長が不足するため、この結果十分大きな固有保磁力 H_{cJ} を得ることができないリスクが高まる。また、熱処理の保持時間が7minを超えると、ハード相として作用する $Pr_2Fe_{14}B$ 型結晶相が粗大化してしまい、固有保磁力 H_{cJ} が低下してしまうリスクが高まる。

したがって、熱処理温度は、1～7minの範囲に設定すべきである。

【0125】

次に、加熱処理での昇温時間について考察する。 Pr が10at%である場合、 H_{cJ} を高めつつ、 J_r を維持し、 H_{cJ} を高めつつ、 $(BH)_{max}$ を維持するには、昇温時間は、3.5～6.5minであった。 Pr が11at%の場合、 H_{cJ} を高めつつ、 $(BH)_{max}$ を維持する、及び H_{cJ} を高めつつ、 J_r を維持するには、昇温時間は、1～7minであった。

Pr が12at%の場合は、検討した昇温時間5minにおいて、 H_{cJ} を高めつつ、 J_r を維持し、同様に、 H_{cJ} を高めつつ、 $(BH)_{max}$ を維持することができた。

Pr が13at%の場合は、検討した昇温時間5minにおいて、 H_{cJ} を高めつつ、 J_r を維持し、同様に、 H_{cJ} を高めつつ、 $(BH)_{max}$ を維持することができた。

熱処理の昇温時間が1min未満であると、 $Pr_2Fe_{14}B$ 型結晶相の成長が不足するため、この結果十分大きな固有保磁力 H_{cJ} を得ることができないリスクが高まる。また、熱処理の昇温時間が7minを超えると、ハード相として作用する $Pr_2Fe_{14}B$ 型結晶相が粗大化してしまい、固有保磁力 H_{cJ} が低下してしまうリスクが高まる。

したがって、昇温時間は、1～7minの範囲に設定すべきである。

【0126】

なお、これらの条件は、単独で設定するのではなく、所望とする、残留磁化 J_r 、および最大エネルギー積 $(BH)_{max}$ を維持しつつ、固有保磁力 H_{cJ} を向上させるには、ロールの周速度、加熱温度、昇温時間及び保持時間を、上記の範囲内で適宜組み合わせ設定する。

【0127】

次に、保磁力とボンド磁石の耐熱性の関係について考察する。 Pr 量 $x=10at\%$ である場合に、最適な組成と条件で作製された合金薄帯は、実施例1～5に示すように、 H_{cJ} を高めつつ、 J_r を維持し、同様に、 H_{cJ} を高めつつ、 $(BH)_{max}$ を維持することができた。なおかつ、 J_r の温度係数である $\alpha(J_r)_{ave}$ が小さく抑えられ、かつ、 H_{cJ} の温度係数である $\alpha(H_{cJ})_{ave}$ が小さく抑えられている。すなわち、高温に加熱されても、大きな J_r と H_{cJ} を維持することができる、耐熱性に優れた合金薄帯であった。この優れた耐熱性ゆえに、前記合金薄帯を粉碎した磁石粉末を用いて作製したボンド磁石は、高温での不可逆減磁率が、125℃で-1.3%、150℃で-2.1%、175℃で-3.7%と非常に小さく抑えられた、耐熱性に優れたボンド磁石であった。 Pr 量 $x=11at\%$ である場合に、最適な組成と条件で作製された合金薄帯は実施例7～11に示すように、 H_{cJ} を高めつつ、 J_r を維持し、同様に、 H_{cJ} を高めつつ、 $(BH)_{max}$ を維持することができた。なおかつ、 J_r の温度係数である $\alpha(J_r)_{ave}$ が小さく抑えられ、かつ、 H_{cJ} の温度係数である $\alpha(H_{cJ})_{ave}$ が小さく抑えられている。すなわち、高温に加熱されても、大きな J_r と H_{cJ} を維持することができる、耐熱性に優れた合金薄帯であった。この優れた耐熱性ゆえに、前記合金薄帯を粉碎した磁

石粉末を用いて作製したボンド磁石は、高温での不可逆減磁率が、 125°C で -1.3% 、 150°C で -2.1% 、 175°C で -3.7% と非常に小さく抑えられた、耐熱性に優れたボンド磁石であった。

Pr量 $x=12$ および $13\text{at}\%$ である場合にも同様の結果が得られた。

【産業上の利用可能性】

【0128】

本発明によれば、磁気特性および熱安定性を向上できるため、例えば自動車の駆動系などの高温環境下に曝される部位に適用することができる。

【図面の簡単な説明】

【0129】

【図1】組成 $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{68.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_{1.0}\text{Si}_{0.5}$ の合金薄帯について昇温速度 $20^{\circ}\text{C}/\text{min}$ にて測定したDSC曲線である。

【図2】組成 $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{68.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_{1.0}\text{Si}_{0.5}$ でありロール周速度 $10\text{m}/\text{sec}$ の合金薄帯について、急冷後、熱処理温度 575°C 、 600°C 、および 625°C で熱処理して得られた合金薄帯のX線回折図形である。

【図3】組成が $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{68.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_{1.0}\text{Si}_{0.5}$ であり、ロール周速度が $10.0\text{m}/\text{sec}$ 、熱処理温度が 600°C 、熱処理時間が 5min の条件で作製された合金薄帯の減磁曲線を示すグラフである。

【図4】組成が $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{68.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_{1.0}\text{Si}_{0.5}$ であり、ロール周速度が $10.0\text{m}/\text{sec}$ 、熱処理温度が 600°C 、熱処理時間が 5min の条件で作製された合金薄帯の J_r と H_{cJ} の温度特性を示すグラフである。

【図5】組成が $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{68.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_{1.0}\text{Si}_{0.5}$ であり、ロール周速度が $10.0\text{m}/\text{sec}$ 、熱処理温度が 600°C 、熱処理時間が 5min の条件で作製された合金薄帯の $\sigma-T$ 曲線である。

【図6】組成が $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{68.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_{1.0}\text{Si}_{0.5}$ であり、ロール周速度が $10.0\text{m}/\text{sec}$ 、熱処理温度が 600°C 、熱処理時間が 5min の条件で作製された合金薄帯のTEM写真である。

【図7】組成が $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{68.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_{1.0}\text{Si}_{0.5}$ であり、ロール周速度が $10.0\text{m}/\text{sec}$ 、熱処理温度が 600°C 、熱処理時間が 5min の条件で作製された合金薄帯を用いて作製したボンド磁石の減磁曲線である。

【図8】組成が $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{68.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_{1.0}\text{Si}_{0.5}$ であり、ロール周速度が $10.0\text{m}/\text{sec}$ 、熱処理温度が 600°C 、熱処理時間が 5min の条件で作製された合金薄帯を用いて作製したボンド磁石の不可逆減磁率についての温度依存性を示すグラフである。

【図9】組成 $\text{Pr}_{11}\text{Fe}_{67.8}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_{0.7}\text{Si}_{0.5}$ の合金薄帯について昇温速度 $20^{\circ}\text{C}/\text{min}$ にて測定したDSC曲線である。

【図10】組成 $\text{Pr}_{11}\text{Fe}_{67.8}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_{0.7}\text{Si}_{0.5}$ でありロール周速度 $10\text{m}/\text{sec}$ の合金薄帯について、急冷後、熱処理温度 575°C 、 600°C 、 625°C 及び 650°C で熱処理して得られた合金薄帯のX線回折図形である。

【図11】組成が $\text{Pr}_{11}\text{Fe}_{67.8}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_{0.7}\text{Si}_{0.5}$ であり、ロール周速度が $10.0\text{m}/\text{sec}$ 、熱処理温度が 625°C 、熱処理時間が 5min の条件で作製された合金薄帯の減磁曲線を示すグラフである。

【図12】組成が $\text{Pr}_{11}\text{Fe}_{67.8}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_{0.7}\text{Si}_{0.5}$ であり、ロール周速度が $10.0\text{m}/\text{sec}$ 、熱処理温度が 625°C 、熱処理時間が 5min の条件で作製された合金薄帯の J_r と H_{cJ} の温度特性を示すグラフである。

【図13】組成が $\text{Pr}_{11}\text{Fe}_{67.8}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_{0.7}\text{Si}_{0.5}$ であり、ロール周速度が $10.0\text{m}/\text{sec}$ 、熱処理温度が 625°C 、熱処理時間が 5min の条件で作製された合金薄帯の $\sigma-T$ 曲線である。

【図14】組成が $\text{Pr}_{11}\text{Fe}_{67.8}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_{0.7}\text{Si}_{0.5}$ であり、ロール周速度が $10.0\text{m}/\text{sec}$ 、熱処理温度が 625°C 、熱処理時間が 5min

10

20

30

40

50

inの条件で作製された合金薄帯のTEM写真である。

【図15】組成が $\text{Pr}_{11}\text{Fe}_{67.8}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_{0.7}\text{Si}_{0.5}$ であり、ロール周速度が 10.0m/sec 、熱処理温度が 625°C 、熱処理時間が 5min の条件で作製された合金薄帯を用いて作製したボンド磁石の減磁曲線である。

【図16】組成が $\text{Pr}_{11}\text{Fe}_{67.8}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Y}_{0.7}\text{Si}_{0.5}$ であり、ロール周速度が 10.0m/sec 、熱処理温度が 625°C 、熱処理時間が 5min の条件で作製された合金薄帯を用いて作製したボンド磁石の不可逆減磁率についての温度依存性を示すグラフである。

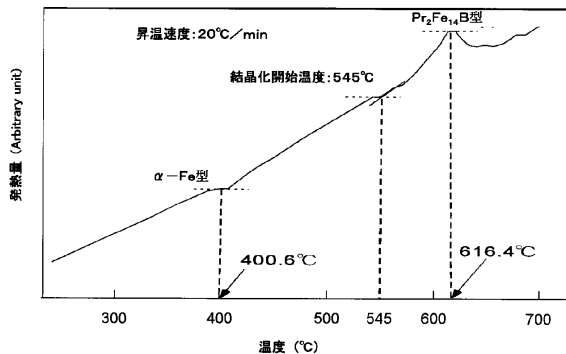
【図17】組成が $\text{Pr}_{13}\text{Fe}_{62.3}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{14}\text{Y}_{0.7}\text{Si}_{0.5}$ であり、ロール周速度が 20.0m/sec 、熱処理温度が 575°C 、熱処理時間が 5min の条件で作製された合金薄帯のTEM写真である。

【図18】組成が $\text{Pr}_{13}\text{Fe}_{62.3}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{14}\text{Y}_{0.7}\text{Si}_{0.5}$ であり、ロール周速度が 20.0m/sec 、熱処理温度が 575°C 、熱処理時間が 5min の条件で作製された合金薄帯のTEM写真である（図17の一部を拡大）。

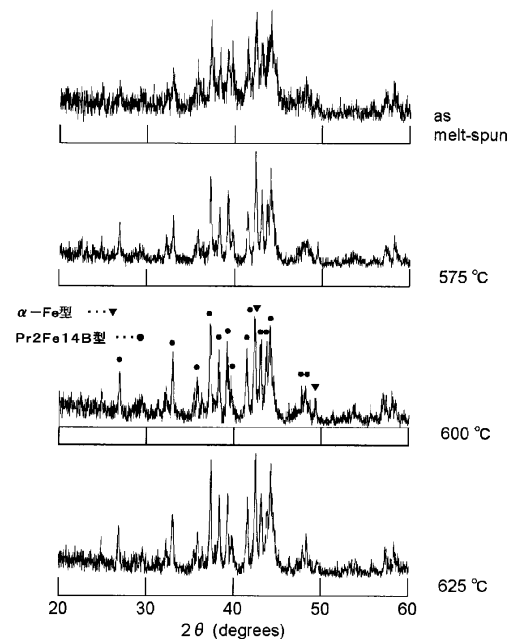
【図19】図17の粗大粒子のひとつについて測定した、制限視野回折像である。

10

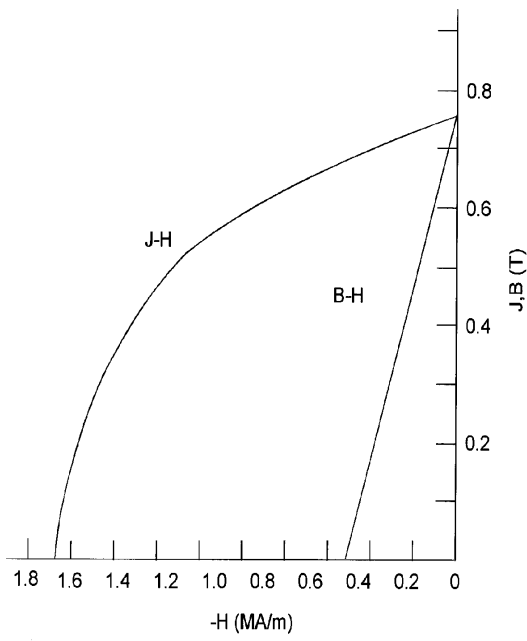
【図1】



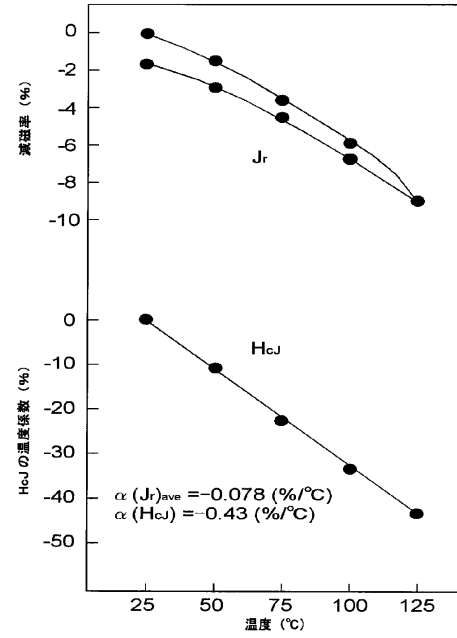
【図2】



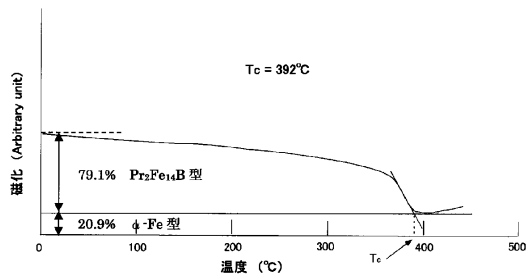
【図 3】



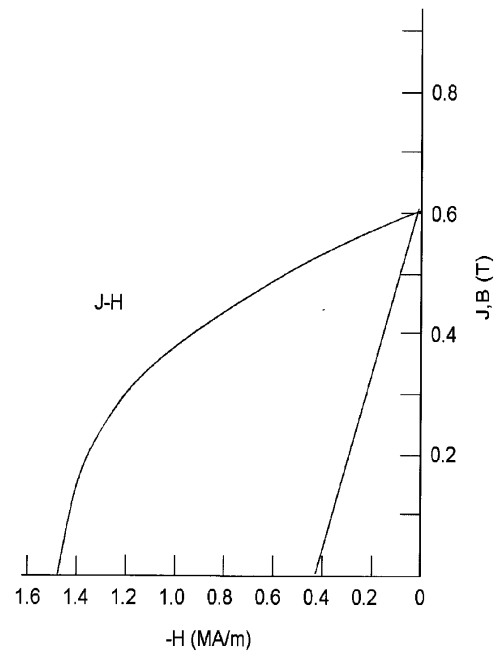
【図 4】



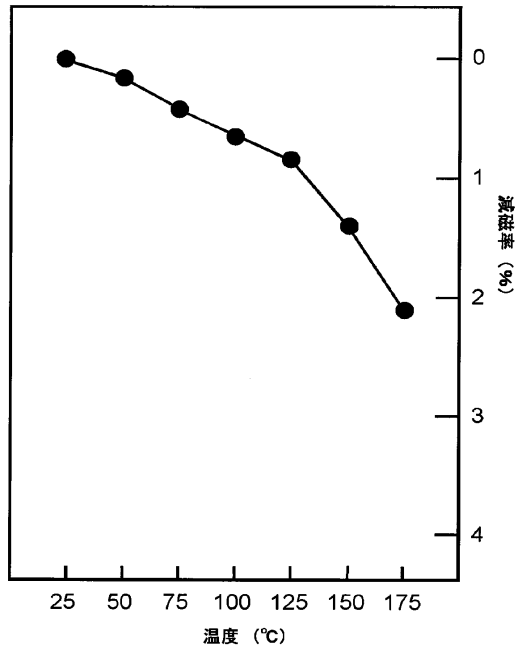
【図 5】



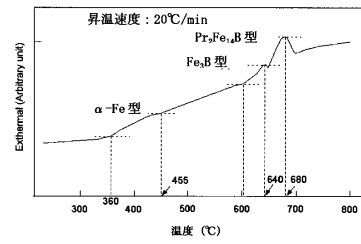
【図 7】



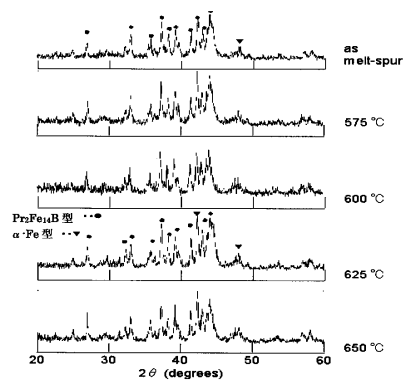
【図 8】



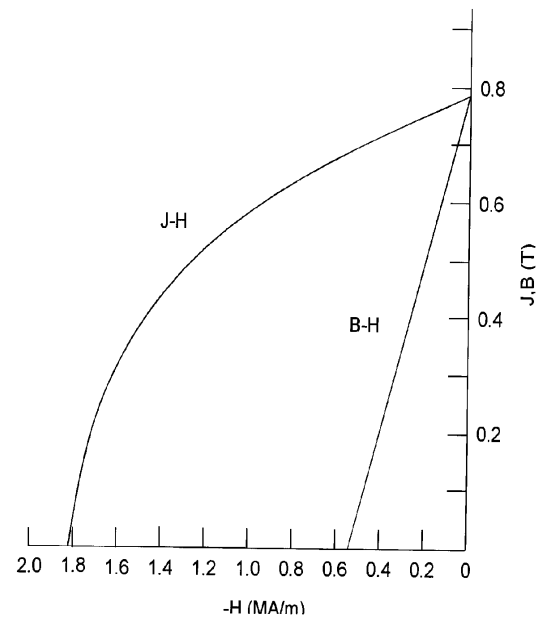
【図 9】



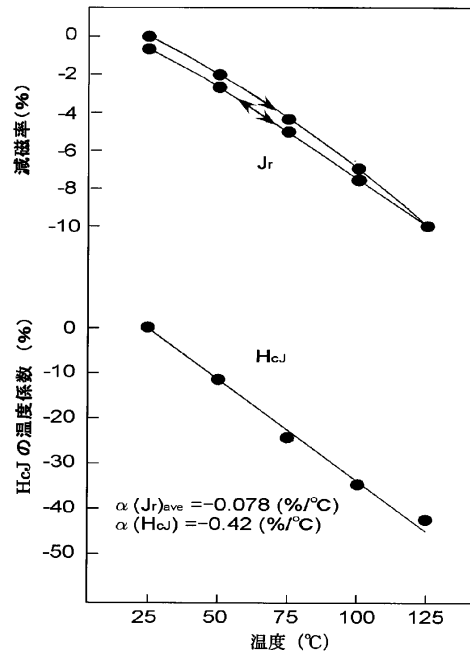
【図 10】



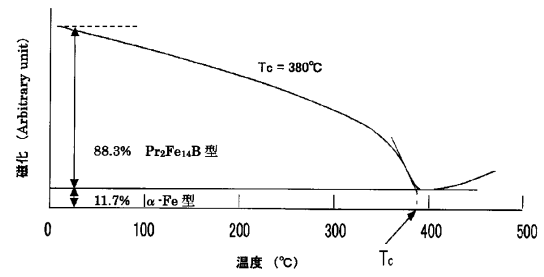
【図 11】



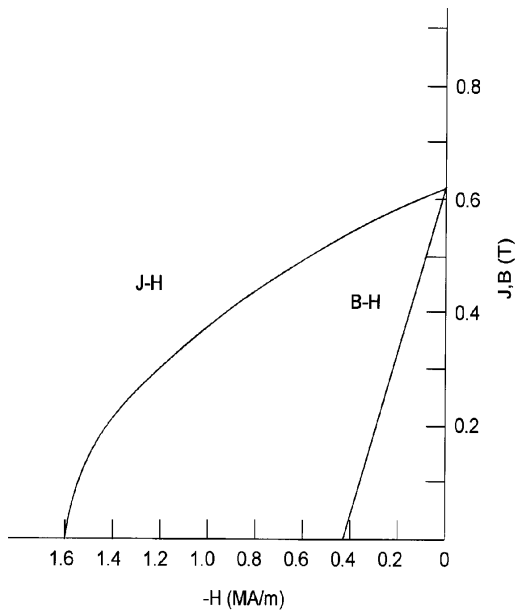
【図 1 2】



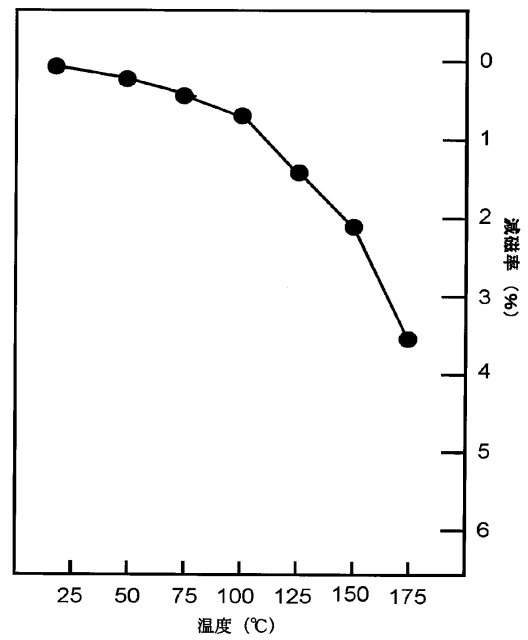
【図 1 3】



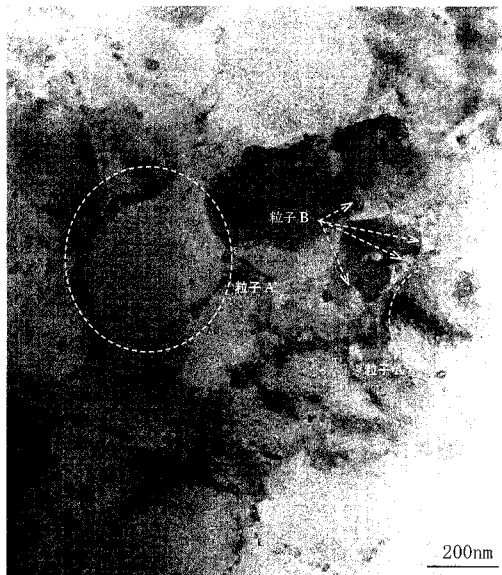
【図 1 5】



【図 1 6】



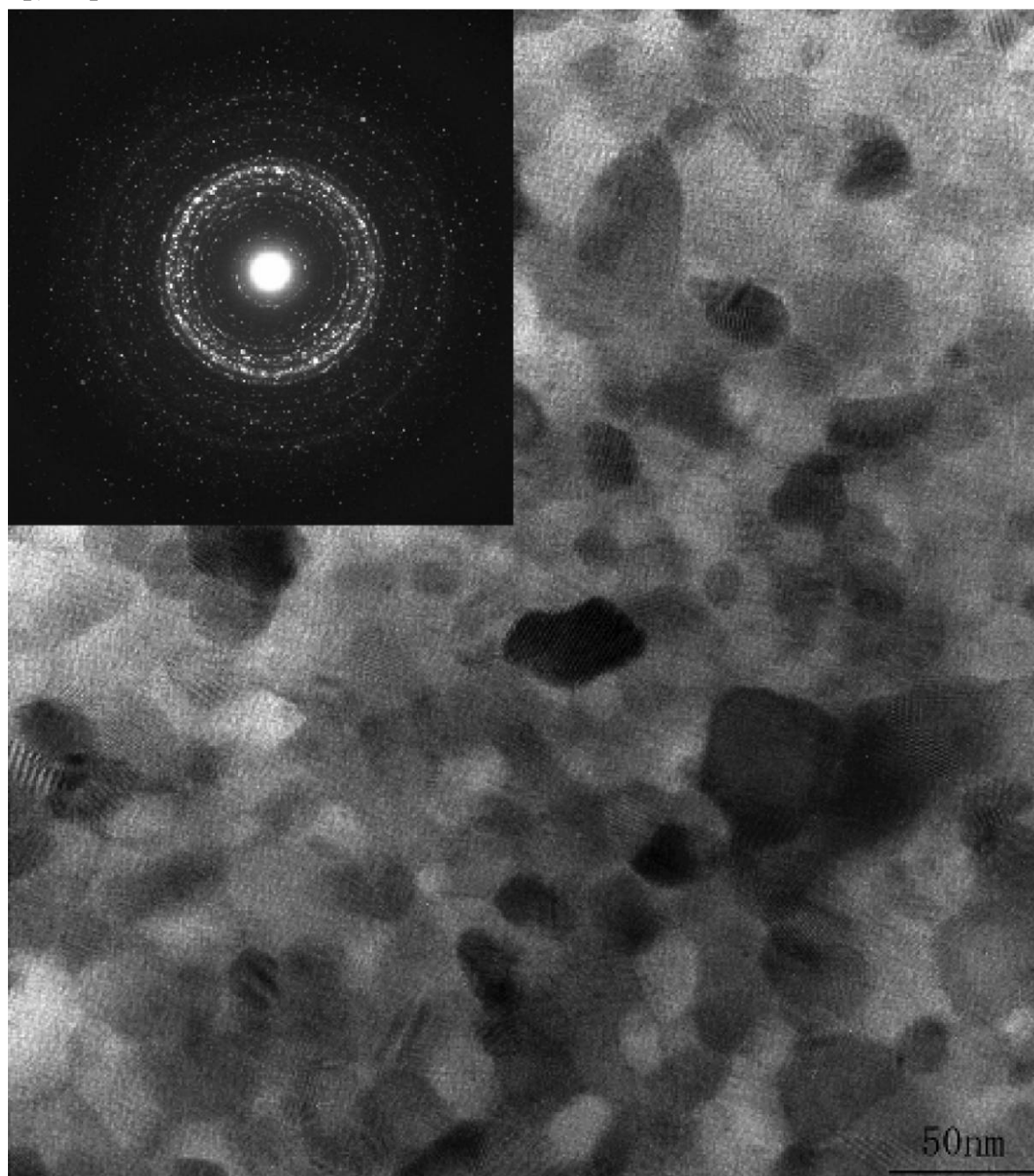
【図 17】



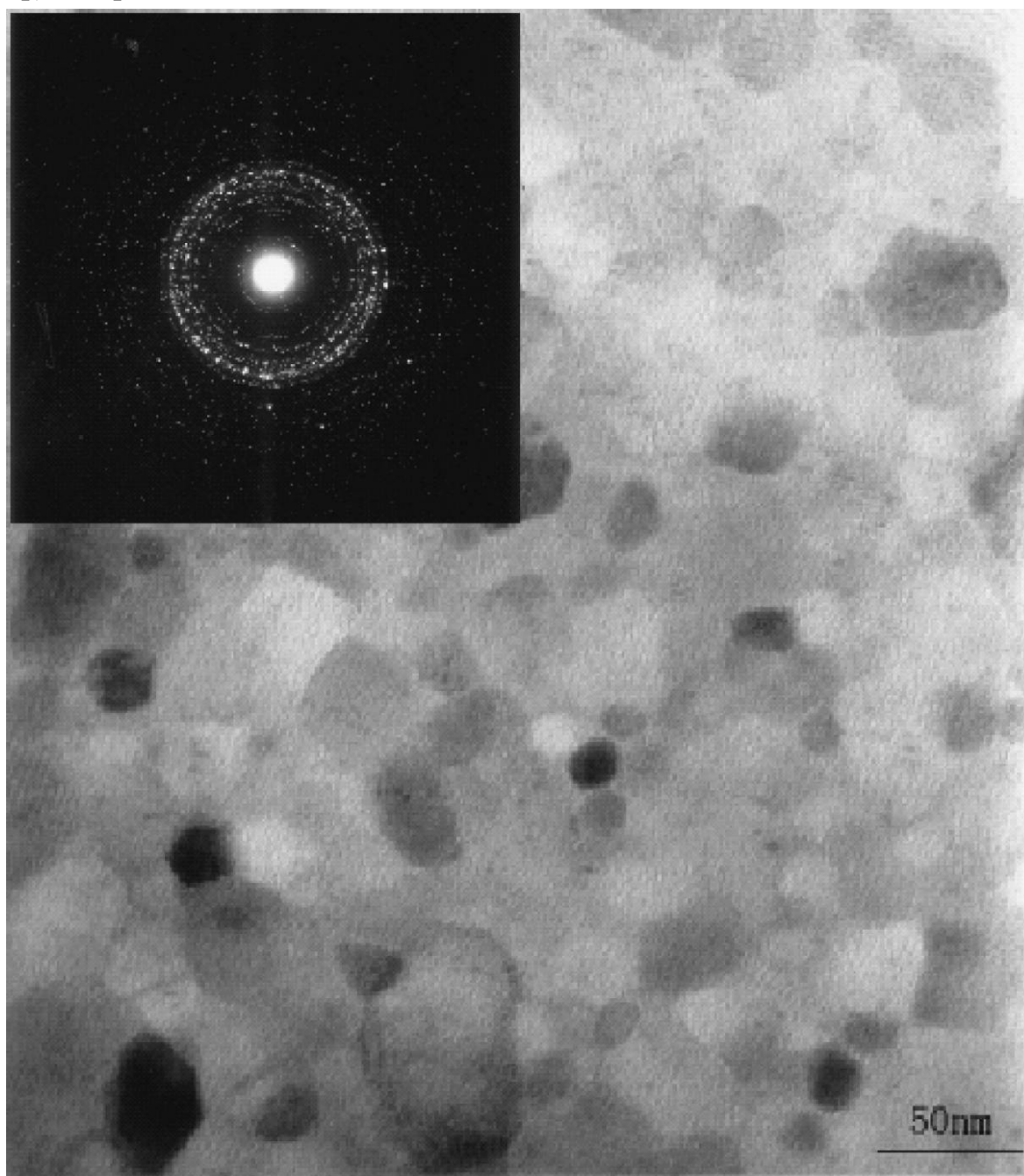
【図 18】



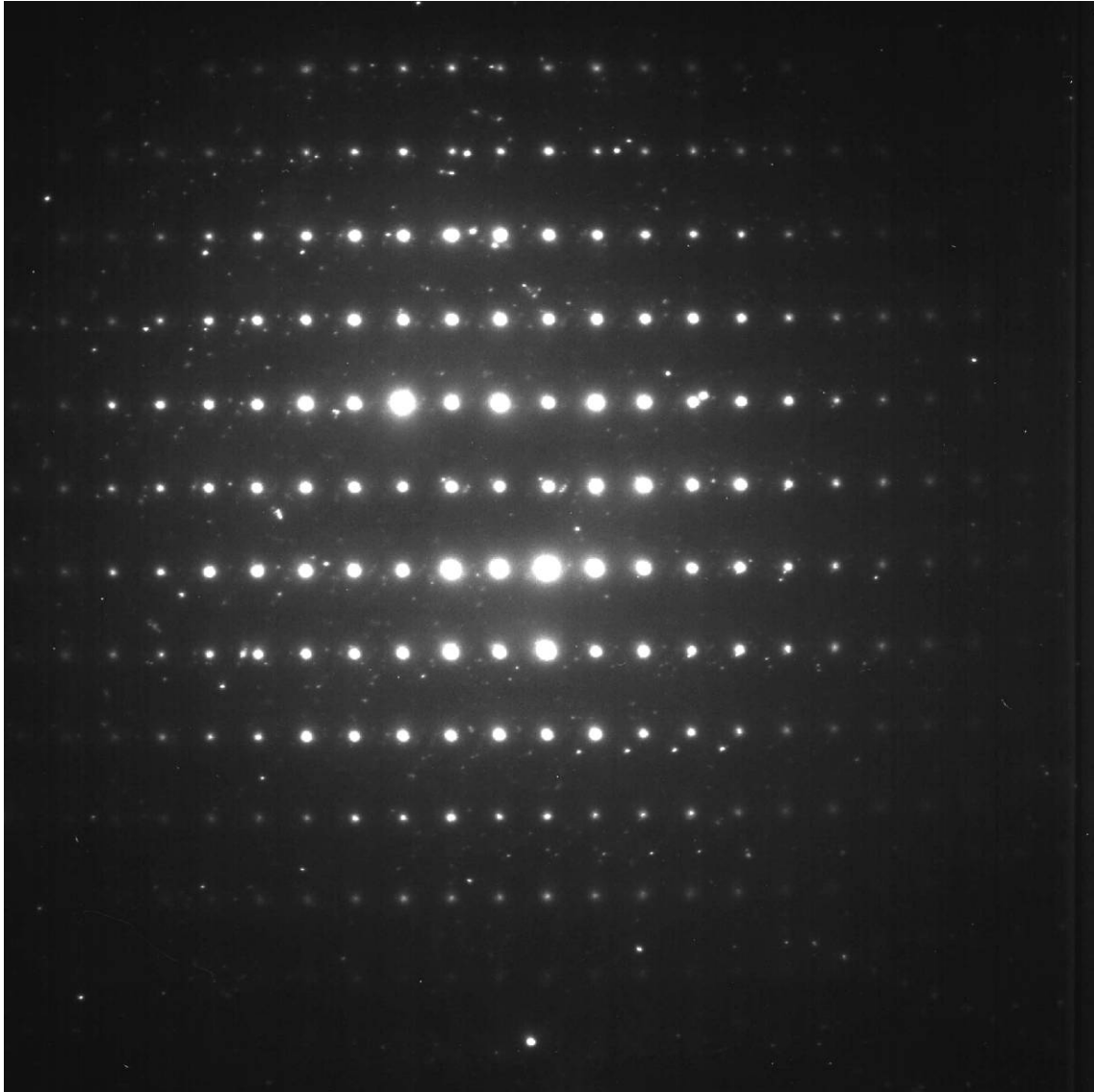
【図 6】



【図 14】



【図 19】



フロントページの続き

- (72)発明者 大村 正志
神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社内
- (72)発明者 橋野 早人
愛知県名古屋市南区大同町2丁目30番地 大同特殊鋼株式会社技術開発研究所内
- (72)発明者 森井 浩一
愛知県名古屋市南区大同町2丁目30番地 大同特殊鋼株式会社技術開発研究所内

審査官 伊藤 真明

- (56)参考文献 特開平06-124820 (JP, A)
Hiroshi Yamamoto et al., Magnetic Properties of High-Coercivity Melt-Spun Pr-Fe-Co-Ti-B-Si System Ribbons and Their Bonded Magnet, IEEE Transactions on Magnetics, 米国, 2005年10月, Vol. 41, No. 10, 3778 - 3780

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
- | | |
|---------|-----------------------|
| C 2 2 C | 3 8 / 0 0 - 3 8 / 6 0 |
| B 2 2 F | 9 / 0 8 |
| H 0 1 F | 1 / 0 5 3 |
| H 0 1 F | 7 / 0 2 |
| B 2 2 F | 3 / 0 0 |