

(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
2011 年 10 月 6 日(06.10.2011)



PCT



(10) 国際公開番号
WO 2011/121647 A1

- (51) 国際特許分類:
B22F 3/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2010/002317
- (22) 国際出願日: 2010 年 3 月 30 日(30.03.2010)
- (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 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社 東芝 (KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA) [JP/JP]; 〒1058001 東京都港区芝浦一丁目 1 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 堀内陽介 (HORIUCHI, Yosuke) [JP/JP]; 〒1058001 東京都港区芝浦一丁目 1 番 1 号 株式会社 東芝 知的財産部内 Tokyo (JP). 桜田新哉 (SAKURADA, Shinya) [JP/JP]; 〒1058001 東京都港区芝浦一丁目 1 番 1 号 株式会社 東芝 知的財産部内 Tokyo (JP). 岡本圭子 (OKAMOTO, Keiko) [JP/JP]; 〒1058001 東京都港区芝浦一丁目 1 番 1 号 株式会社 東芝 知的財産部内 Tokyo (JP). 萩原将也 (HAGIWARA, Masaya) [JP/JP]; 〒1058001 東京都港区芝浦一丁目 1 番 1 号 株式会社 東芝 知的財産部内 Tokyo (JP).

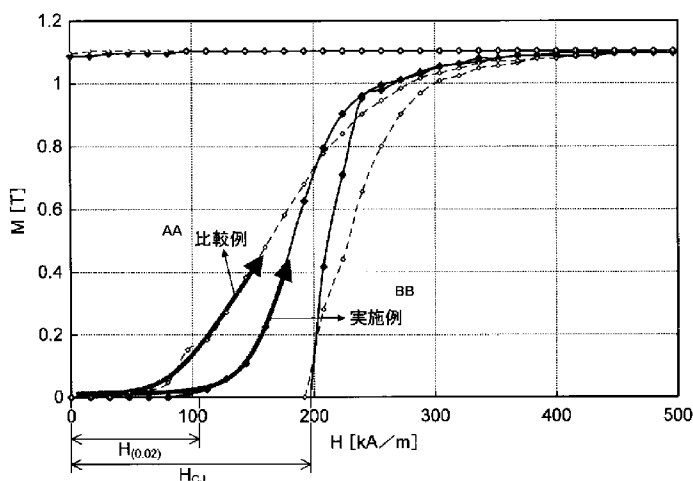
- (74) 代理人: 特許業務法人サクラ国際特許事務所 (SAKURA PATENT OFFICE, p.c.); 〒1010046 東京都千代田区神田多町二丁目 1 番地 神田東山ビル Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, 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, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (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, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[続葉有]

(54) Title: PERMANENT MAGNET, METHOD FOR PRODUCING SAME, AND MOTOR AND POWER GENERATOR EACH USING SAME

(54) 発明の名称: 永久磁石とその製造方法、およびそれを用いたモータおよび発電機

[図1]



AA COMPARATIVE EXAMPLE
BB EXAMPLE

(57) Abstract: Disclosed is a permanent magnet which has a composition represented by the composition formula: $R(Fe_pM_qCu_r(Co_{1-s}As)_s)_{1-p-q-r}z$ (wherein R represents at least one element selected from rare earth elements; M represents at least one element selected from among Ti, Zr and Hf; A represents at least one element selected from among Ni, V, Cr, Mn, Al, Si, Ga, Nb, Ta and W; p satisfies $0.05 \leq p \leq 0.6$; q satisfies $0.005 \leq q \leq 0.1$; r satisfies $0.01 \leq r \leq 0.15$; s satisfies $0 \leq s \leq 0.2$; and z satisfies $4 \leq z \leq 9$). The permanent magnet has a two-phase structure that is composed of a Th_2Zn_{17} crystalline phase and a copper-rich phase. In a cross section of the permanent magnet comprising the crystal c-axis of the Th_2Zn_{17} crystalline phase, the average distance between copper-rich phases is 120 nm or less.

(57) 要約: 永久磁石は、組成式: $R(Fe_pM_qCu_r(Co_{1-s}As)_s)_{1-p-q-r}z$ 、ここで R は希土類元素から選ばれる少なくとも 1 種の元素、M は Ti、Zr および Hf から選ばれる少なくとも 1 種の元素、A は Ni、V、Cr、Mn、Al、Si、Ga、Nb、Ta および W から選ばれる少なくとも 1 種の元素、p は $0.05 \leq p \leq 0.6$ 、q は $0.005 \leq q \leq 0.1$ 、r は $0.01 \leq r \leq 0.15$ 、s は $0 \leq s \leq 0.2$ 、z は $4 \leq z \leq 9$ である、で表される組成を有し、 Th_2Zn_{17} 型結晶相と銅リッチ相との二相組織を備える。永久磁石の Th_2Zn_{17} 型結晶相の結晶 c 軸を含む断面において、銅リッチ相間の平均距離は 120 nm 以下とされている。

15、s は $0 \leq s \leq 0.2$ 、z は $4 \leq z \leq 9$ である、で表される組成を有し、 Th_2Zn_{17} 型結晶相と銅リッチ相との二相組織を備える。永久磁石の Th_2Zn_{17} 型結晶相の結晶 c 軸を含む断面において、銅リッチ相間の平均距離は 120 nm 以下とされている。

WO 2011/121647 A1



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：

永久磁石とその製造方法、およびそれを用いたモータおよび発電機

技術分野

[0001] 本発明は永久磁石とその製造方法、およびそれを用いた可変磁束モータと可変磁束発電機に関する。

背景技術

[0002] 可変磁束モータや可変磁束発電機においては、可変磁石と固定磁石の2種類の磁石が使用されている。従来、可変磁石にはAl-Ni-Co系磁石やFe-Cr-Co系磁石が用いられている（特許文献1参照）。可変磁束モータや可変磁束発電機の高性能化や高効率化のために、可変磁石には保磁力や磁束密度の向上が求められている。高性能な永久磁石としては、Sm-Co系磁石が知られている（特許文献2，3参照）。Sm-Co系磁石のうち、 $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 型磁石は2-17型結晶相と1-5型結晶相との二相分離組織を有し、磁壁ピンニング型の保磁力発現機構により磁石特性を得ている。

[0003] $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 型磁石は、保磁力や最大磁気エネルギー積に優れている反面、コバルトを多量に含むために高コストであり、また鉄を主とする磁石に比べて磁束密度が小さいという難点を有している。 $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 型磁石の磁束密度の向上には鉄濃度を増加させることが有効であり、また鉄濃度を増加させることで $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 型磁石を低コスト化することができる。しかしながら、高鉄濃度の $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 型磁石は、初磁化曲線の立ち上がりが急峻になる傾向がある。可変磁石には可変幅を大きくとるために、初磁化曲線の立ち上がりの勾配が小さい磁石が求められる。このため、高鉄濃度組成を有する $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 型磁石において、初磁化曲線の立ち上がりを抑制することが求められている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2008-043172公報

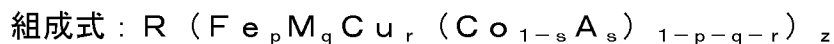
特許文献2：特開平09-111383号公報

特許文献3：特開2005-243884公報

発明の概要

[0005] 本発明の目的は、 $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 型磁石の鉄濃度を高めて磁束密度の向上や低コスト化を図った上で、初磁化曲線の立ち上がりを抑制することを可能にした永久磁石とその製造方法、およびそれを用いた可変磁束モータと可変磁束発電機を提供することにある。

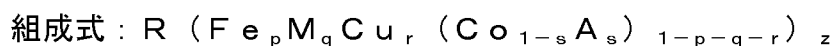
[0006] 本発明の態様に係る永久磁石は、



(式中、Rは希土類元素から選ばれる少なくとも1種の元素、MはTi、ZrおよびHfから選ばれる少なくとも1種の元素、AはNi、V、Cr、Mn、Al、Si、Ga、Nb、TaおよびWから選ばれる少なくとも1種の元素を示し、p、q、r、sおよびzはそれぞれ原子比で $0.05 \leq p \leq 0.6$ 、 $0.005 \leq q \leq 0.1$ 、 $0.01 \leq r \leq 0.15$ 、 $0 \leq s \leq 0.2$ 、 $4 \leq z \leq 9$ を満足する数である)

で表される組成を有する永久磁石であって、 $\text{Th}_2\text{Zn}_{17}$ 型結晶相と、前記 $\text{Th}_2\text{Zn}_{17}$ 型結晶相中の銅濃度の1.2倍以上5倍以下の範囲の銅濃度を有する銅リッチ相とを含む組織を備え、かつ前記 $\text{Th}_2\text{Zn}_{17}$ 型結晶相の結晶c軸を含む断面における前記銅リッチ相間の平均距離が120nm以下であることを特徴としている。

[0007] 本発明の態様に係る永久磁石の製造方法は、



(式中、Rは希土類元素から選ばれる少なくとも1種の元素、MはTi、ZrおよびHfから選ばれる少なくとも1種の元素、AはNi、V、Cr、Mn、Al、Si、Ga、Nb、TaおよびWから選ばれる少なくとも1種の元素を示し、p、q、r、sおよびzはそれぞれ原子比で $0.05 \leq p \leq 0.6$ 、 $0.005 \leq q \leq 0.1$ 、 $0.01 \leq r \leq 0.15$ 、 $0 \leq s \leq 0.2$

、 $4 \leq z \leq 9$ を満足する数である)

で表される組成を有する合金粉末を作製する工程と、前記合金粉末を磁場中で加圧成形して圧粉体を作製する工程と、前記圧粉体を焼結して焼結体を作製する工程と、前記焼結体に溶体化処理を施す工程と、前記溶体化処理後の焼結体に、 $T_B - 50 < T < T_B + 50$ (ここで、 T_B は式： $3500p - 5000q - (45p)^2$ で表される温度である) を満足する温度 T にて時効処理を施す工程とを具備している。

[0008] 本発明の態様に係る可変磁束モータは、本発明の態様に係る永久磁石を具備することを特徴としている。本発明の態様に係る可変磁束発電機は、本発明の態様に係る永久磁石を具備することを特徴としている。

発明の効果

[0009] 本発明の態様に係る永久磁石によれば、 Sm_2Co_{17} 型磁石の鉄濃度を高めて磁束密度の向上や低コスト化を図った上で、初磁化曲線の立ち上がりを抑制することができる。従って、可変磁石に好適な永久磁石を提供することが可能となる。

図面の簡単な説明

[0010] [図1]実施形態に係る永久磁石の磁化曲線の一例を示す図である。

[図2]永久磁石の銅リッチ相の平均間隔とピンニング率との関係を示す図である。

[図3]実施形態に係る永久磁石の金属組織を拡大して示すTEM像である。

[図4]図3に示すTEM像から銅リッチ相の平均間隔を測定するための銅濃度の線分析の様子を示す図である。

[図5]図3に示すTEM像から銅リッチ相の平均厚さを測定する様子を示す図である。

[図6]図4に示す銅濃度の線分析の結果の一例を示す図である。

[図7]図6に示す銅濃度の線分析結果の濃度差を強調した図である。

[図8]図7の一部を拡大して示す図である。

[図9]実施形態に係る可変磁束モータを示す図である。

[図10]実施形態に係る可変磁束発電機を示す図である。

発明を実施するための形態

[0011] 以下、本発明を実施するための形態について説明する。この実施形態の永久磁石は、



(式中、Rは希土類元素から選ばれる少なくとも1種の元素、MはTi、ZrおよびHfから選ばれる少なくとも1種の元素、AはNi、V、Cr、Mn、Al、Si、Ga、Nb、TaおよびWから選ばれる少なくとも1種の元素を示し、p、q、r、sおよびzはそれぞれ原子比で $0.05 \leq p \leq 0.6$ 、 $0.005 \leq q \leq 0.1$ 、 $0.01 \leq r \leq 0.15$ 、 $0 \leq s \leq 0.2$ 、 $4 \leq z \leq 9$ を満足する数である)

で表される組成を有し、かつ Th_2Zn_{17} 型結晶相(2-17型結晶相)と Th_2Zn_{17} 型結晶相の銅濃度の1.2倍以上5倍以下の範囲の銅濃度を有する銅リッチ相($CaCu_5$ 型結晶相(1-5型結晶相)等)とを含む二相組織を備えている。

[0012] 上記した組成式(1)において、元素Rとしてはイットリウム(Y)を含む希土類元素から選ばれる少なくとも1種の元素が使用される。元素Rはいずれも磁石材料に大きな磁気異方性をもたらし、高い保磁力を付与するものである。元素Rとしてはサマリウム(Sm)、セリウム(Ce)、ネオジム(Nd)およびプラセオジム(Pr)から選ばれる少なくとも1種を用いることがより好ましく、特にSmを使用することが望ましい。元素Rの50原子%以上をSmとすることで、永久磁石の性能、とりわけ保磁力を再現性よく高めることができる。さらに、元素Rの70原子%以上がSmであることが望ましい。

[0013] 元素Rは、元素Rとそれ以外の元素(Fe、M、Cu、Co、A)との原子比が1:4~1:9の範囲(z値として4~9の範囲/元素Rの含有量として10~20原子%の範囲)となるように配合される。元素Rの含有量が10原子%未満であると、多量の α -Fe相が析出して十分な保磁力が得ら

れない。一方、元素Rの含有量が20原子%を超えると、飽和磁化の低下が著しくなる。元素Rの含有量は10～15原子%の範囲とすることがより好ましく、さらに好ましくは10.5～12.5原子%の範囲である。

[0014] 元素Mとしてはチタン（Ti）、ジルコニウム（Zr）およびハフニウム（Hf）から選ばれる少なくとも1種の元素が用いられる。元素Mを配合することによって、高い鉄濃度の組成で大きな保磁力を発現させることができる。元素Mの含有量は元素R以外の元素（Fe、Co、Cu、M）の総量の0.5～10原子%（ $0.005 \leq q \leq 0.1$ ）の範囲とする。q値が0.1を超えると磁化の低下が著しく、またq値が0.005未満であると鉄濃度を高める効果が小さい。元素Mの含有量は $0.01 \leq q \leq 0.06$ であることがより好ましく、さらに好ましくは $0.015 \leq q \leq 0.04$ である。

[0015] 元素MはTi、Zr、Hfのいずれであってもよいが、少なくともZrを含むことが好ましい。特に、元素Mの50原子%以上をZrとすることによって、永久磁石の保磁力を高める効果をさらに向上させることができる。一方、元素Mの中でHfはとりわけ高価であるため、Hfを使用する場合においても、その使用量は少なくすることが好ましい。Hfの含有量は元素Mの20原子%未満とすることが好ましい。

[0016] 銅（Cu）は永久磁石に高い保磁力を発現させるために必須の元素である。Cuの配合量は元素R以外の元素（Fe、Co、Cu、M）の総量の1～15原子%（ $0.01 \leq r \leq 0.15$ ）の範囲とする。r値が0.15を超えると磁化の低下が著しく、またr値が0.01未満であると高い保磁力を得ることが困難となる。Cuの配合量は $0.02 \leq r \leq 0.1$ とすることがより好ましく、さらに好ましくは $0.03 \leq r \leq 0.08$ である。

[0017] 鉄（Fe）は主として永久磁石の磁化を担うものである。Feを多量に配合することによって、永久磁石の飽和磁化を高めることができる。ただし、Feの含有量が過剰になりすぎると、 α -Fe相が析出したり、また2-17型結晶相と銅リッチ相（1-5型結晶相等）との二相組織が得られにくくなる。これらによって、永久磁石の保磁力が低下する。Feの配合量は元素

R以外の元素（Fe、Co、Cu、M）の総量の5～60原子%（ $0.05 \leq p \leq 0.6$ ）の範囲とする。Feの配合量は $0.26 \leq p \leq 0.5$ であることがより好ましく、さらに好ましくは $0.28 \leq p \leq 0.48$ である。

[0018] コバルト（Co）は永久磁石の磁化を担うと共に、高い保磁力を発現させるために重要な元素である。さらに、Coを多く含有するとキュリー温度が高くなり、永久磁石の熱安定性も向上する。Coの配合量が少ないとこれらの効果が小さくなる。しかし、永久磁石に過剰にCoを含有させると相対的にFeの含有量が減るため、磁化の低下を招くおそれがある。Coの含有量はp、q、rで規定される範囲（ $1 - p - q - r$ ）とする。

[0019] Coの一部はニッケル（Ni）、バナジウム（V）、クロム（Cr）、マンガン（Mn）、アルミニウム（Al）、ケイ素（Si）、ガリウム（Ga）、ニオブ（Nb）、タンタル（Ta）、およびタングステン（W）から選ばれる少なくとも1種の元素Aで置換してもよい。これらの置換元素は磁石特性、例えば保磁力の向上に寄与する。ただし、元素AによるCoの過剰な置換は磁化の低下を招くおそれがあるため、元素Aによる置換量はCoの20原子%以下（ $0 \leq s \leq 0.2$ ）の範囲とする。

[0020] ところで、 Sm_2Co_{17} 型磁石は高温相である $TbCu_7$ 型結晶相（1-7型結晶相）を前駆体とし、これに時効処理を施して Th_2Zn_{17} 型結晶相（2-17型結晶相）と $CaCu_5$ 型結晶相（1-5型結晶相）とに相分離させ、磁壁ピンニング型の保磁力発現機構に基づいて磁石特性を得ている。2-17型結晶相は主相（粒内相）となり、その粒界に1-5型結晶相（粒界相）が析出して2-17型結晶相を区切り、セル構造と呼ばれる二次構造ができる。スピノーダル分解によって、1-5型結晶相はCuリッチおよびFeプアとなり、2-17型結晶相はCuプアおよびFeリッチとなる。

[0021] Sm_2Co_{17} 型磁石における保磁力の起源は相分解により生じた微細構造にある。粒界に析出した1-5型結晶相の磁壁エネルギーは、主相である2-17型結晶相の磁壁エネルギーと比べて大きく、この磁壁エネルギーの差が磁壁移動の障壁となる。つまり、磁壁エネルギーの大きい1-5型結晶相が

ピンニングサイトとして働く。ここで、磁壁エネルギーの差は主に銅（Cu）の濃度差により生じていると考えられる。粒界に析出する相のCu濃度が粒内のCu濃度より十分に高ければ、保磁力が発現する。このため、ピンニングサイトはCuリッチ相であることが重要である。

[0022] Cuリッチ相の代表例としては、上述したCaCu₅型結晶相（1-5型結晶相）が挙げられるが、必ずしもこれに限定されるものではない。Cuリッチ相は主相である2-17型結晶相のCu濃度の1.2倍以上5倍以下のCu濃度を有していればよい。Cuリッチ相のCu濃度が2-17型結晶相のCu濃度の1.2倍以上であれば、ピンニングサイトとして機能させることができる。ただし、Cuリッチ相のCu濃度が2-17型結晶相のCu濃度の5倍を超えると、保磁力が巨大化して可変磁石に適さなくなる。1-5型結晶相以外のCuリッチ相としては、高温相である1-7型結晶相や1-7型結晶相の二相分離の初期段階に生じる1-5型結晶相の前駆体相等が挙げられる。

[0023] このように、Sm₂Co₁₇型磁石の磁気特性はCuリッチ相に影響される。例えば、Cuリッチ相の析出間隔は磁壁ピンニング挙動に大きく影響を及ぼすことが考えられる。Cuリッチ相が粗大に析出し、かつCuリッチ相の間隔が大きい場合、ある1つのピンニングサイト（Cuリッチ相）のエネルギー障壁を乗り越えた磁壁が、次のピンニングサイトにピン止めされるまでの距離が長くなるため、反転スピンの量が多くなる。その結果として、初磁化曲線の立ち上がり方が急峻になる。つまり、Cuリッチ相の析出間隔が小さくなるように金属組織を制御することができれば、Fe濃度が高いSm₂Co₁₇型磁石の初磁化曲線の立ち上がりを抑制することが可能となる。

[0024] Sm₂Co₁₇型磁石の金属組織は製造プロセスに強く依存する。例えば、時効処理ではおよそ750～900℃の温度で熱処理を行った後に制御冷却を実施し、ある温度まで冷却した時点から急冷する。時効処理温度が低すぎる場合には、Cuリッチ相の析出が不十分となり、粒内相とCuリッチ相との間に磁壁の移動を阻害するほどのエネルギー差が生じない。その結果として

、磁壁エネルギーの差による保磁力発現機構が機能しない。一方、時効処理温度が高すぎる場合には、C u リッチ相が粗大になると共に、C u リッチ相の析出間隔が大きくなる。その結果として、初磁化曲線の立ち上がり方が急峻になる。

[0025] この実施形態の永久磁石は、2-17型結晶相からなる粒内相（主相）とその粒界に析出したC u リッチ相（1-5型結晶相等）との二相分離組織を備え、かつF e濃度を高めて磁束密度の向上や低コスト化を図った永久磁石において、合金組成に応じた時効処理条件等を適用して金属組織を制御することによって、2-17型結晶相の結晶c軸を含む断面におけるC u リッチ相（粒界相）間の平均距離dを120nm以下としたものである。これによって、高F e濃度のS m₂C o₁₇型磁石の初磁化曲線の立ち上がりを小さくすることが可能となる。この実施形態の永久磁石は、2-17型結晶相およびC u リッチ相以外の結晶相や非晶質相を含んでいてもよい。その他の相としては、元素Mの濃度が粒内相より高いMリッチ相や元素RとF eを主成分とする化合物相等が考えられるが、その量はMリッチ相を除いて、不純物相程度の量であることが好ましい。永久磁石は実質的に2-17型結晶相とC u リッチ相とからなることが好ましい。

[0026] 図1はC u リッチ相の平均間隔dが120nm以下の磁石（実施例）の磁化曲線の一例を、C u リッチ相の平均間隔dが120nmを超える磁石（比較例）の磁化曲線と比較して示す図である。図1に示されるように、C u リッチ相の平均間隔dが120nm以下の磁石（実施例）は、C u リッチ相の平均間隔dが120nmを超える磁石（比較例）に比べて、磁化曲線の立ち上がりが抑制されている。ここで、永久磁石の磁化曲線の立ち上がり挙動は、以下に示す式（2）で定義されるピンニング率で評価される。

$$\text{ピンニング率 (\%)} = H(0.02) / H_{cj} \times 100 \quad \cdots (2)$$

[0027] 式（2）において、H(0.02)は磁化曲線が立ち上がり始める磁界であり、飽和磁化(M_s)の0.02%の磁化が発現する磁界と定義される。飽和磁化は1200kA/mの磁界を印加した際に得られる最大の磁化であ

る。 $H_c j$ は保磁力であり、 1200 kA/m の磁界を印加して得られる磁化曲線において、磁化が零のときの磁界である。すなわち、磁化がプラスからマイナス、もしくはマイナスからプラスに変わる際の磁界である。永久磁石のピンニング率が大きいということは、磁化曲線の立ち上がり方がなだらかであることを意味する。永久磁石を可変磁石として使用する場合、ピンニング率は50%以上であることが好ましい。ピンニング率が50%以上の永久磁石によれば、可変磁石の可変幅を大きくすることができる。

[0028] 図2はC u リッチ相の平均間隔 d とピンニング率との関係を示す図である。図2に示されるように、C u リッチ相の平均間隔 d を 120 nm 以下とすることによって、ピンニング率を50%以上とすることができる。これによって、可変磁石に好適な磁石特性を得ることが可能となる。C u リッチ相の平均間隔 d が 120 nm を超えると磁壁の移動が容易となり、ピンニング率が低下する。C u リッチ相の平均間隔 d は 110 nm 以下であることがより好ましい。C u リッチ相の平均間隔 d の下限値は2-17型結晶相（粒内相）の大きさにより規定される。2-17型結晶相の平均粒径は 20 nm 以上とすることが好ましい。2-17型結晶相の平均粒径が 20 nm 未満であると磁化が低下し、永久磁石として十分な特性が得られないおそれがある。

[0029] さらに、 $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 型磁石の磁気特性はC u リッチ相の厚さにも影響される。すなわち、C u リッチ相の厚さが厚いと磁壁のピンニング効果が高くなりすぎ、巨大な保磁力が発現してしまうおそれがある。永久磁石を可変磁石に適用する場合、永久磁石は適度な保磁力を有することが好ましい。具体的には、可変磁石として用いる永久磁石の保磁力は $200 \sim 500 \text{ kA/m}$ の範囲であることが好ましい。永久磁石の保磁力が 500 kA/m を超えると可変磁石として使用することが困難となり、保磁力が 200 kA/m 未満であると可変磁石の高性能化を十分に図ることができない。

[0030] このような点から、C u リッチ相の平均厚さ t は 10 nm 以下であることが好ましい。C u リッチ相の平均厚さ t を 10 nm 以下とすることで、適度な磁壁のピンニング効果が得られる。従って、可変磁石に好適な $200 \sim 5$

00 k A/mの範囲の保磁力を有する永久磁石を安定して提供することができる。永久磁石の保磁力は200～400 k A/mの範囲であることがより好ましい。Cuリッチ相の平均厚さ t は8 nm以下であることがより好ましく、さらに好ましくは5 nm以下である。ただし、Cuリッチ相の平均厚さ t が小さすぎると磁壁のピンニング効果が弱くなりすぎて、保磁力が低下しすぎるおそれがある。このため、Cuリッチ相の平均厚さ t は1 nm以上であることが好ましい。

[0031] 上述したように、Cuリッチ相は2-17型結晶相（粒内相）のCu濃度の1.2倍以上5倍以下の範囲のCu濃度を有する領域である。従って、2-17型結晶相の結晶 c 軸を含む断面をEDX等で組成分析することによって、Cuリッチ相の平均間隔 d を求めることができる。Cuリッチ相の平均間隔 d は、2-17型結晶相の結晶 c 軸を含む断面を透過電子顕微鏡（TEM）により100k～200k倍の倍率で観察し、得られた像の組成線分析を行ってCuリッチ相の位置を特定し、あるCuリッチ相から次のCuリッチ相までの距離の平均値として定義される。組成線分析は、まず一定方向に対して30～50 nmの間隔で実施し、次いで同一面内で直角方向に対しても同様な間隔で実施する。平均間隔 d は、全ての組成線分析で得られたCuリッチ相間の距離を平均した値とする。

[0032] Cuリッチ相の平均間隔 d の求め方の具体例を以下に示す。

（1）断面観察ステップ

まず、永久磁石（時効処理後の磁場配向した焼結体）の2-17型結晶相の c 軸を含む断面をTEMにより観察する。観察倍率は100k～200k倍とする。図3に実施形態の永久磁石の断面観察結果であるTEM像（100k倍）の一例を示す。図3において、コントラストが均一な部分が2-17型結晶相（粒内相）であり、その間に存在する板状の部分（黒っぽい領域）がCuリッチ相である。

[0033] （2）組成線分析ステップ

次に、永久磁石の断面観察結果であるTEM像（図3）の組成線分析を行う

。図4に図3のTEM像の組成線分析の様子を示す。まず、TEM像の第1の方向に等間隔で線分析(La1~La_n)を行う。線分析は等間隔で平行に実施する。線分析の間隔は30~50nmとする。次いで、同一のTEM像において、第1の方向に対して直交する第2の方向に等間隔で線分析(Lb1~Lb_n)を行う。この際の線分析も30~50nmの等間隔で平行に実施する。図4において、線分析(平行線)の間隔は50nmとしている。

[0034] (3) Cuリッチ相の位置特定ステップ

次いで、TEM像の各線分析結果(La1~La_nおよびLb1~Lb_n)からCu濃度を求める。図6に線分析La4によるCu濃度の測定結果を示す。さらに、Cu濃度の差を明確化するために、線分析で得られたCu濃度を2乗~16乗し、その値をグラフ化して平均値を求める。図7に図6のCu濃度を4乗したデータをプロットしたグラフを示す。図中、実線は各点のCu濃度のデータ値(4乗値)であり、点線はその平均値を2倍した値である。図7において、Cu濃度のデータ値(Cu濃度の4乗値)が平均値の2倍値より連続して多い部分の幅が2nm以上である領域をCuリッチ相と見なし、その領域におけるCu濃度のデータ値が最大の位置をCuリッチ相の中心位置と見なす。

[0035] (4) Cuリッチ相の平均間隔の測定ステップ

ステップ3で特定したCuリッチ相の中心位置間の距離(Cu濃度が最大値を示すピーク間の距離/図7のd1、d2...dn)を、それぞれCuリッチ相間の距離と見なして測定する。1回の組成線分析におけるCuリッチ相間の距離da1は、各ピーク間距離d1、d2...dnの平均値として求められる。このような相間距離の測定を全線分析結果に対して実施し、各線分析結果の相間距離(da1~da_nおよびdb1~db_n)の平均値を求める。この相間距離の平均値[(da1+da2...+da_n+db1+db2...+db_n)/2n]を、Cuリッチ相間の平均距離(Cuリッチ相の平均間隔)dと定義する。

[0036] Cuリッチ相の厚さは、2-17型結晶相の結晶c軸を含む断面のTEM

像において、コントラストが均一な結晶粒（2-17型結晶相）と隣接するコントラストが均一な結晶粒（2-17型結晶相）との間のコントラストが異なる領域の幅である。Cuリッチ相の平均厚さ t は、100k~200k倍の倍率のTEM像（図3に示すTEM像）において、コントラストが異なる領域の幅を5点測定し、その平均値を示すものとする。具体的には図5に示すように、任意の板状、棒状、もしくは筋状のコントラストが確認できる部位を選択する。このコントラストが異なる部位の観察像上の短軸方向の長さ（厚さ）を測定し、その長さをCuリッチ相の厚さ t_1 とする。この測定を5回実施し、Cuリッチ相の厚さ $t_1 \sim t_5$ の平均値をCuリッチ相の平均厚さ t とする。

[0037] 明瞭なCuリッチ相を観察像上で確認できない場合には、上記したCuリッチ相の平均間隔 d の求め方のステップ3に記載したように、図7におけるCu濃度のデータ値（Cu濃度の4乗値）が平均値の2倍値より連続して多い部分の幅が2nm以上である領域をCuリッチ相と見なし、この領域の幅を測定してCuリッチ相の平均厚さ t を求めてもよい。図8は図7の一部を拡大して示す図である。図8に示すように、Cu濃度のデータ値（Cu濃度の4乗値）上で5箇所のCuリッチ相の厚さ $t_1 \sim t_5$ を求め、これらの平均値をCuリッチ相の平均厚さ t としてもよい。

[0038] この実施形態の永久磁石によれば、Fe濃度を高めて磁束密度の向上や低コスト化を図った $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 型磁石（2-17型結晶相とCuリッチ相との二相組織を備える永久磁石）において、Cuリッチ相の平均間隔 d を狭めて磁壁の移動を制御しているため、初磁化曲線の急激な立ち上がりを抑制することができる。さらに、Cuリッチ相の平均厚さ t を制御することによって、適度な保磁力を得ることができる。従って、可変磁石に好適な永久磁石、すなわち適度な保磁力と良好なピンニング率（立ち上がり方がなだらかな初磁化曲線に基づく特性）とを有する永久磁石を提供することが可能となる。

[0039] この実施形態の永久磁石は、例えば以下のようにして作製される。まず、所定量の元素を含む合金粉末を作製する。合金粉末は、例えばストリップキ

ヤスト法でフレーク状の合金薄帯を作製した後に粉碎して調製される。ストリップキャスト法では、合金溶湯を周速0.1~20m/秒で回転する冷却ロールに傾注し、連続的に厚さ1mm以下に凝固させた薄帯を得ることが好ましい。冷却ロールの周速が0.1m/秒未満であると薄帯中に組成のばらつきが生じやすく、周速が20m/秒を超えると結晶粒が単磁区サイズ以下に微細化し、良好な磁気特性が得られない。冷却ロールの周速は0.3~15m/秒の範囲であることがより好ましく、さらに好ましくは0.5~12m/秒の範囲である。

[0040] 合金粉末はアーク溶解法や高周波溶解法による溶湯を鑄造して得られた合金インゴットを粉碎して調製してもよい。合金粉末の他の調製方法としては、メカニカルアロイング法やメカニカルグラインディング法、ガスアトマイズ法、還元拡散法等が挙げられ、これらの方法で調製した合金粉末を用いてもよい。このようにして得られた合金粉末または粉碎前の合金に対し、必要に応じて熱処理を施して均質化してもよい。フレークやインゴットの粉碎はジェットミルやボールミル等を用いて実施される。粉碎は合金粉末の酸化を防止するために、不活性ガス雰囲気中や有機溶媒中で行うことが好ましい。

[0041] 次に、電磁石等の中に設置した金型内に合金粉末を充填し、磁場を印加しながら加圧成形することによって、結晶軸を配向させた圧粉体を作製する。この圧粉体を1100~1300℃の温度で0.5~15時間焼結して緻密な焼結体を得る。焼結温度が1100℃未満であると焼結体の密度が不十分となり、1300℃を超えるとSm等の希土類元素が蒸発して良好な磁気特性が得られない。焼結温度は1150~1250℃の範囲とすることがより好ましく、さらに好ましくは1180~1230℃の範囲である。

[0042] また、焼結時間が0.5時間未満の場合には、焼結体の密度が不均一になるおそれがある。一方、焼結時間が15時間を超えると、Sm等の希土類元素が蒸発して良好な磁気特性が得られない。焼結時間は1~10時間の範囲とすることがより好ましく、さらに好ましくは1~4時間の範囲である。圧粉体の焼結は酸化を防止するために、真空中やアルゴンガス等の不活性雰囲気

気中で行うことが好ましい。

[0043] 得られた焼結体に対して、溶体化処理および時効処理を施して結晶組織を制御する。溶体化処理は相分離組織の前駆体である 1-7 型結晶相を得るために、 $1130 \sim 1230^{\circ}\text{C}$ の範囲の温度で $0.5 \sim 8$ 時間熱処理することが好ましい。 1130°C 未満の温度および 1230°C を超える温度では、溶体化処理後の試料中の 1-7 型結晶相の割合が小さく、良好な磁気特性が得られない。溶体化処理温度は $1150 \sim 1210^{\circ}\text{C}$ の範囲であることがより好ましく、さらに好ましくは $1160^{\circ}\text{C} \sim 1190^{\circ}\text{C}$ の範囲である。

[0044] 溶体化処理時間が 0.5 時間未満の場合には、構成相が不均一になりやすい。また、 8 時間を超えて溶体化処理を行うと、焼結体中の Sm 等の希土類元素が蒸発する等して、良好な磁気特性が得られないおそれがある。溶体化処理時間は $1 \sim 8$ 時間の範囲とすることがより好ましく、さらに好ましくは $1 \sim 4$ 時間の範囲である。溶体化処理は酸化防止のために、真空中やアルゴンガス等の不活性雰囲気中で行うことが好ましい。

[0045] 次に、溶体化処理後の焼結体に時効処理を施す。時効処理条件は Cu リッチ相の平均間隔 d や平均厚さ t を制御する上で重要である。さらに、最適な時効処理条件は合金組成によっても変化する。すなわち、 Cu リッチ相の析出挙動は永久磁石を構成する元素の組成比によって変化する。このため、焼結体の時効処理温度は、組織内に微細な Cu リッチ相を緻密に分散させることが可能な温度を合金組成に応じて選択する必要がある。この実施形態では、以下の式 (3) および式 (4) を満足する温度 T で時効処理を実施する。

$$T_B - 50 < T < T_B + 50 \quad \cdots (3)$$

$$T_B = 3500p - 5000q - (45p)^2 \quad \cdots (4)$$

式 (4) において、 p は式 (1) の組成式における Fe の濃度を示す値であり、 q は式 (1) の組成式における元素 M の濃度を示す値である。

[0046] 式 (3) および式 (4) を満足する温度 T で時効処理を行うことによって、 Cu リッチ相の平均間隔 d を 120 nm 以下に制御することができる。 Cu リッチ相の平均厚さ t に関しても、焼結体を温度 T で時効処理することで

10 nm以下とすることができる。時効処理温度が $[T_B + 50 (^{\circ}\text{C})]$ を超えると、粗大なCuリッチ相が生成しやすくなり、Cuリッチ相の平均間隔が大きくなる。一方、時効処理温度が $[T_B - 50 (^{\circ}\text{C})]$ 未満であると、Cuリッチ相の核生成を十分に生じさせることができない。

[0047] 時効処理時間は0.25～8時間の範囲とすることが好ましい。時効処理時間が0.25時間未満の場合には、Cuリッチ相の核生成を十分に生じさせることができないおそれがある。時効処理時間が超えるとCuリッチ相が粗大化することで、Cuリッチ相の緻密な生成が阻害されてしまう。時効処理時間は0.5～6時間の範囲とすることがより好ましく、さらに好ましくは1～4時間の範囲である。

[0048] このように、溶体化処理後の焼結体を合金組成に基づいて設定した温度Tで時効処理することによって、組織内に微細なCuリッチ相を緻密に分散させることができる。焼結体の時効処理は温度Tによる熱処理のみであってもよいが、さらに保磁力の向上等を図る上で、温度Tによる熱処理を第1の時効工程とし、その後に温度Tより高い温度で第2の時効工程を実施することが好ましい。時効処理工程は、温度Tを満足する温度T1で焼結体を熱処理する第1の時効工程と、温度T1より高い温度T2で焼結体を熱処理する第2の時効工程とを具備することが好ましい。

[0049] 温度T1(=T)による第1の時効工程でCuリッチ相を緻密に分散させて析出させた後、温度Tより高い温度T2で第2の時効工程を実施することで、緻密なCuリッチ相の析出状態を維持しつつ、磁気特性を高めることができる。第2の時効温度T2は680～900℃の範囲とすることが好ましい。第2の時効温度T2が680℃未満の場合、均質な2-17型結晶相とCuリッチ相との混合相が得られにくく、磁気特性を高めることができない。第2の時効温度T2が900℃を超えるとCuリッチ相が粗大化して保磁力が巨大化したり、磁化の低下を招くおそれがある。第2の時効温度T2は700～890℃の範囲であることがより好ましく、さらに好ましくは700～880℃の範囲である。

- [0050] 第2の時効処理時間は0.5～24時間の範囲とすることが好ましい。第2の時効処理時間が0.5時間未満であるとCuリッチ相の生成量が不足するおそれがある。第2の時効処理時間が24時間を超えると、Cuリッチ相の厚さが厚くなることで保磁力が巨大化してしまい、可変磁石に適した磁石特性を得ることができないおそれがある。第2の時効処理時間は1～12時間の範囲とすることがより好ましく、さらに好ましくは2～4時間の範囲である。第2の時効工程は、第1の時効工程後に焼結体を室温まで冷却した後実施してもよいし、あるいは第1の時効工程後に引き続いて実施してもよい。
- [0051] 時効処理後の冷却速度が0.2℃/min未満の場合、Cuリッチ相の厚さが大きくなることで保磁力が巨大化したり、また結晶粒が粗大化して良好な磁気特性が得られない。冷却速度が0.2℃/minを超えると元素拡散が十分に進行しないため、2-17型結晶相とCuリッチ相との間のCu濃度差が不十分になるおそれがある。時効処理後の冷却速度は0.4～1.5℃/分の範囲とすることより好ましく、さらに好ましくは0.5～1.3℃/分の範囲である。時効処理は酸化防止のために、真空中やアルゴンガス等の不活性雰囲気中で行うことが好ましい。
- [0052] この実施形態の永久磁石は可変磁石として好適である。この実施形態の永久磁石を可変磁石として用いることによって、可変磁束モータや可変磁束発電機が構成される。可変磁束モータの構成やドライブシステムには、特開2008-29148公報や特開2008-43172公報に開示されている技術を適用することができる。この実施形態の永久磁石を可変磁束ドライブシステムにおける可変磁石として用いることによって、システムの高効率化、小型化、低コスト化等を図ることができる。
- [0053] 図9に示すように、可変磁束モータ1は鉄心2中に固定磁石3と可変磁石4とを配置したロータ5と、従来のモータと同様な構成を有するステータ6とを具備している。図10に示すように、可変磁束発電機11は固定磁石と可変磁石とを有するロータ12とステータ13とブラシ14とを具備する。

可変磁束発電機 11 はロータ 12 に装着されたシャフト 15 をタービン 16 で回転させることにより発電動作する。なお、この実施形態の永久磁石を永久磁石モータ等に適用することを妨げるものではない。

実施例

[0054] 次に、本発明の具体的な実施例およびその評価結果について述べる。

[0055] (実施例 1)

各原料を ($\text{Sm}_{0.85}\text{Nd}_{0.15}$) ($\text{Fe}_{0.28}\text{Zr}_{0.025}\text{Cu}_{0.05}\text{Co}_{0.47}$) $_{7.8}$ 組成となるように秤量した後、Ar ガス雰囲気中でアーク溶解して合金インゴットを作製した。合金インゴットを Ar 雰囲気中で $1170^{\circ}\text{C} \times 1$ 時間の条件で熱処理した後に粗粉碎し、さらにジェットミルで微粉碎して合金粉末を調製した。この合金粉末を磁界中でプレスして圧粉体とした後、Ar 雰囲気中にて 1190°C で 3 時間焼結し、引き続いて 1170°C で 3 時間熱処理して焼結体を作製した。この熱処理は溶体化処理のために実施したものである。

[0056] 次に、溶体化処理後の焼結体に第 1 の時効処理として $730^{\circ}\text{C} \times 1.5$ 時間の条件で熱処理を施した後、 $2^{\circ}\text{C}/\text{min}$ の冷却速度で室温まで徐冷した。続いて、第 1 の時効処理後の焼結体に第 2 の時効処理として $830^{\circ}\text{C} \times 4$ 時間の条件で熱処理を施した後、 $1.2^{\circ}\text{C}/\text{min}$ の冷却速度で 600°C まで徐冷して、目的とする焼結磁石を得た。ここで、合金組成 ($p=0.28$ 、 $q=0.025$) に基づく温度 T_B は約 696°C である。従って、第 1 の時効処理温度 T_1 (730°C) は $[T_B - 50$ (646°C) $< T < T_B + 50$ (746°C)] の範囲を満足するものである。磁石の組成は ICP 法により確認した。このようにして得た焼結磁石を後述する特性評価に供した。

[0057] (実施例 2 ~ 4)

表 1 に組成を示す合金粉末を用いる以外は、それぞれ実施例 1 と同様にして焼結磁石を作製した。第 1 および第 2 の時効処理条件は実施例 1 と同一とした。ここで、各合金組成に基づく温度 T_B ($^{\circ}\text{C}$)、 $[T_B - 50$ ($^{\circ}\text{C}$)]、 $[T_B + 50$ ($^{\circ}\text{C}$)] は表 2 に示す通りである。このようにして得た焼結磁

石を後述する特性評価に供した。

[0058] (比較例 1)

実施例 1 と同組成の合金粉末を用いて、実施例 1 と同条件で焼結体を作製した。この焼結体に第 1 の時効処理として $820^{\circ}\text{C} \times 1.5$ 時間の条件で熱処理を施した後、 $2^{\circ}\text{C}/\text{min}$ の冷却速度で室温まで徐冷した。続いて、第 1 の時効処理後の焼結体に第 2 の時効処理として $830^{\circ}\text{C} \times 4$ 時間の条件で熱処理を施した後、 $1.2^{\circ}\text{C}/\text{min}$ の冷却速度で 600°C まで徐冷した。ここで、合金組成に基づく温度 T_B は実施例 1 と同様に約 696°C であるため、第 1 の時効処理温度 T_1 (820°C) は $[T_B - 50$ (646°C) $< T < T_B + 50$ (746°C)] の範囲を外れるものである。

[0059] (実施例 5)

各原料を ($\text{Sm}_{0.9}\text{Nd}_{0.1}$) ($\text{Fe}_{0.34}\text{Zr}_{0.03}\text{Cu}_{0.05}\text{Co}_{0.58}$) 7.5 組成となるように秤量した後、Ar ガス雰囲気中でアーク溶解して合金インゴットを作製した。この合金インゴットを石英製のノズルに装填し、高周波誘導加熱して熔融した後、溶湯を周速 $0.6\text{ m}/\text{秒}$ で回転する冷却ロールに傾注し、連続的に凝固させて薄帯を作製した。この薄帯を粗粉碎した後、ジェットミルにより微粉碎して合金粉末を調製した。この合金粉末を磁界中でプレスして圧粉体とした後、Ar ガス雰囲気中にて 1200°C で 1 時間焼結し、引き続いて 1180°C で 4 時間熱処理して焼結体を作製した。

[0060] 次に、溶体化処理後の焼結体に第 1 の時効処理として $850^{\circ}\text{C} \times 1.5$ 時間の条件で熱処理を施し、引き続いて第 2 の時効処理として $875^{\circ}\text{C} \times 4$ 時間の条件で熱処理を施した後、 $1.3^{\circ}\text{C}/\text{min}$ の冷却速度で 450°C まで徐冷して、目的とする焼結磁石を得た。ここで、合金組成 ($p = 0.34$ 、 $q = 0.03$) に基づく温度 T_B は約 806°C である。従って、第 1 の時効処理温度 T_1 (850°C) は $[T_B - 50$ (756°C) $< T < T_B + 50$ (856°C)] の範囲を満足するものである。磁石の組成は ICP 法により確認した。このようにして得た焼結磁石を後述する特性評価に供した。

[0061] (実施例 6 ~ 7)

表 1 に組成を示す合金粉末を用いる以外は、それぞれ実施例 5 と同様にして焼結磁石を作製した。第 1 および第 2 の時効処理条件は実施例 5 と同一とした。ここで、各合金組成に基づく温度 T_B (°C)、 $[T_B - 50$ (°C)]、 $[T_B + 50$ (°C)] は表 2 に示す通りである。このようにして得た焼結磁石を後述する特性評価に供した。

[0062] (比較例 2)

実施例 5 と同組成の合金粉末を用いて、実施例 5 と同条件で焼結体を作製した。この焼結体に第 1 の時効処理として $870^{\circ}\text{C} \times 1.5$ 時間の条件で熱処理を施し、引き続いて第 2 の時効処理として $875^{\circ}\text{C} \times 4$ 時間の条件で熱処理を施した後、 $1.3^{\circ}\text{C}/\text{min}$ の冷却速度で 450°C まで徐冷した。ここで、合金組成に基づく温度 T_B は実施例 5 と同様に約 806°C であるため、第 1 の時効処理温度 T_1 (870°C) は $[T_B - 50$ (756°C) $< T < T_B + 50$ (856°C)] の範囲を外れるものである。

[0063] (実施例 8 ~ 10)

表 1 に組成を示す合金粉末を用いる以外は、実施例 1 と同一条件で焼結磁石を作製した。第 1 および第 2 の時効処理の温度条件は実施例 1 と同一とした。ここで、各合金組成に基づく温度 T_B (°C)、 $[T_B - 50$ (°C)]、 $[T_B + 50$ (°C)] は表 2 に示す通りである。このようにして得た焼結磁石を後述する特性評価に供した。

[0064]

[表1]

	磁石組成（原子比）
実施例 1	$(\text{Sm}_{0.85}\text{Nd}_{0.15})(\text{Fe}_{0.28}\text{Zr}_{0.025}\text{Cu}_{0.05}\text{Co}_{0.47})_{7.8}$
実施例 2	$\text{Sm}(\text{Fe}_{0.31}(\text{Ti}_{0.1}\text{Zr}_{0.9})_{0.04}\text{Cu}_{0.06}\text{Co}_{0.59})_{8.2}$
実施例 3	$(\text{Sm}_{0.95}\text{Pr}_{0.05})(\text{Fe}_{0.3}\text{Zr}_{0.03}\text{Cu}_{0.07}\text{Co}_{0.60})_{8.1}$
実施例 4	$\text{Sm}(\text{Fe}_{0.32}\text{Zr}_{0.035}\text{Cu}_{0.06}\text{Co}_{0.585})_{7.9}$
実施例 5	$(\text{Sm}_{0.9}\text{Nd}_{0.1})(\text{Fe}_{0.34}\text{Zr}_{0.03}\text{Cu}_{0.05}\text{Co}_{0.58})_{7.5}$
実施例 6	$\text{Sm}(\text{Fe}_{0.38}(\text{Ti}_{0.2}\text{Zr}_{0.8})_{0.035}\text{Cu}_{0.06}\text{Co}_{0.525})_{7.7}$
実施例 7	$\text{Sm}(\text{Fe}_{0.4}(\text{Ti}_{0.1}\text{Zr}_{0.9})_{0.037}\text{Cu}_{0.055}\text{Co}_{0.508})_{7.6}$
実施例 8	$(\text{Sm}_{0.8}\text{Nd}_{0.2})(\text{Fe}_{0.32}\text{Zr}_{0.028}\text{Cu}_{0.055}\text{Mn}_{0.02}\text{Co}_{0.577})_{8.2}$
実施例 9	$\text{Sm}(\text{Fe}_{0.30}\text{Zr}_{0.03}\text{Cu}_{0.05}\text{Co}_{0.605}\text{Ga}_{0.015})_{7.9}$
実施例 10	$(\text{Sm}_{0.75}\text{Pr}_{0.25})(\text{Fe}_{0.29}\text{Zr}_{0.028}\text{Si}_{0.02}\text{Cu}_{0.06}\text{Co}_{0.602})_{8.35}$
比較例 1	$(\text{Sm}_{0.85}\text{Nd}_{0.15})(\text{Fe}_{0.28}\text{Zr}_{0.025}\text{Cu}_{0.05}\text{Co}_{0.47})_{7.8}$
比較例 2	$(\text{Sm}_{0.9}\text{Nd}_{0.1})(\text{Fe}_{0.34}\text{Zr}_{0.03}\text{Cu}_{0.05}\text{Co}_{0.58})_{7.5}$

[0065] [表2]

	時効処理条件						
	TB	TB-50	TB+50	第 1 時効処理		第 2 時効処理	
	(°C)	(°C)	(°C)	温度 T1 (°C)	時間 (h)	温度 T2 (°C)	時間 (h)
実施例 1	696	646	746	730	1.5	830	4
実施例 2	690	640	740	730	1.5	830	4
実施例 3	718	668	768	730	1.5	830	4
実施例 4	738	688	788	730	1.5	830	4
実施例 5	806	756	856	850	1.5	875	4
実施例 6	863	813	913	850	1.5	875	4
実施例 7	891	841	941	850	1.5	875	4
実施例 8	773	723	823	730	0.5	830	12
実施例 9	718	668	768	730	0.5	830	12
実施例 10	705	775	655	730	0.5	830	12
比較例 1	696	646	746	820	1.5	830	4
比較例 2	806	756	856	870	1.5	875	4

[0066] 上述した実施例 1～10 および比較例 1～3 の焼結磁石について、2-17 型結晶相の結晶 c 軸を含む断面を TEM で観察した。その結果、いずれも 2-17 型結晶相（粒内相）と Cu リッチ相（粒界相）との二相組織を有していることが確認された。粒内相と粒界相の Cu 濃度を測定したところ、い

いずれも粒内相のCu濃度に対する粒界相のCu濃度の比は1.2倍以上5倍以下であることが確認された。次いで、前述した方法に基づいてTEM像の組成線分析を行い、線分析結果からCuリッチ相の平均間隔dを求めた。TEM像は200k倍とし、線分析の間隔は50nmとした。また、TEM像から前述した方法に基づいてCuリッチ相の平均厚さtを求めた。これらの結果を表3に示す。

[0067] 次に、各焼結磁石の磁気特性をBHトレサで評価し、残留磁化Mrと保磁力Hcjを測定した。さらに、BHトレサで得た磁化曲線から飽和磁化Msの0.02%の磁化が発現する磁界H(0.02)を求め、前述した式(2)に基づいてピンニング率を算出した。これらの結果を表3に示す。

[0068] [表3]

	Cuリッチ相 の平均間隔d [nm]	Cuリッチ相 の平均厚さt [nm]	磁気特性		
			保磁力 Hcj [kA/m]	残留磁化 Mr [T]	ピンニング率 [%]
実施例 1	90	10	380	1.18	60
実施例 2	110	8	370	1.19	51
実施例 3	110	8	370	1.18	55
実施例 4	115	7	340	1.20	52
実施例 5	80	6	350	1.20	60
実施例 6	110	4	215	1.21	52
実施例 7	115	2	205	1.22	50
実施例 8	115	5	300	1.19	51
実施例 9	100	9	370	1.16	57
実施例 10	105	8	350	1.17	53
比較例 1	130	22	540	1.16	35
比較例 2	180	15	510	1.19	30

[0069] 表3から明らかなように、実施例1～10の焼結磁石におけるCuリッチ相の平均間隔dはいずれも120nm以下であり、またCuリッチ相の平均厚さtは10nm以下であった。その結果、実施例の焼結磁石は保磁力が200～400kA/m、ピンニング率が50%以上であり、可変磁石に好適な磁石特性を有していることが確認された。これに対して、比較例1～2の永久磁石はCuリッチ相の平均間隔dが120nmを超え、またCuリッチ

相の平均厚さも10nmを超えていた。そのため、比較例1～2の永久磁石はピンニング率が低く、磁化曲線の立ち上がりが抑制されていない。比較例1～2の永久磁石においては、可変磁石に適した磁石特性は得られていないことが確認された。

産業上の利用可能性

[0070] 本発明の永久磁石は可変磁石として有効に利用される。可変磁石としての永久磁石は、可変磁束モータや可変磁束発電機に有効に利用される。

符号の説明

[0071] 1…可変磁束モータ、2…鉄心、3…固定磁石、4…可変磁石、5…ロータ、6…ステータ、11…可変磁束発電機、12…ロータ、13…ステータ、14…ブラシ、15…シャフト、16…タービン。

請求の範囲

[請求項1]

組成式： $R (Fe_p M_q Cu_r (Co_{1-s} A_s)_{1-p-q-r})_z$

(式中、Rは希土類元素から選ばれる少なくとも1種の元素、MはTi、ZrおよびHfから選ばれる少なくとも1種の元素、AはNi、V、Cr、Mn、Al、Si、Ga、Nb、TaおよびWから選ばれる少なくとも1種の元素を示し、p、q、r、sおよびzはそれぞれ原子比で $0.05 \leq p \leq 0.6$ 、 $0.005 \leq q \leq 0.1$ 、 $0.01 \leq r \leq 0.15$ 、 $0 \leq s \leq 0.2$ 、 $4 \leq z \leq 9$ を満足する数である)

で表される組成を有する永久磁石であって、

Th_2Zn_{17} 型結晶相と、前記 Th_2Zn_{17} 型結晶相中の銅濃度の1.2倍以上5倍以下の範囲の銅濃度を有する銅リッチ相とを含む組織を備え、かつ前記 Th_2Zn_{17} 型結晶相の結晶c軸を含む断面における前記銅リッチ相間の平均距離が120nm以下であることを特徴とする永久磁石。

[請求項2]

請求項1記載の永久磁石において、

前記銅リッチ相の平均厚さが10nm以下であることを特徴とする永久磁石。

[請求項3]

請求項2記載の永久磁石において、

前記元素Rの50原子%以上がサマリウムであることを特徴とする永久磁石。

[請求項4]

請求項3記載の永久磁石において、

前記元素Mの50原子%以上がジルコニウムであることを特徴とする永久磁石。

[請求項5]

組成式： $R (Fe_p M_q Cu_r (Co_{1-s} A_s)_{1-p-q-r})_z$

(式中、Rは希土類元素から選ばれる少なくとも1種の元素、MはTi、ZrおよびHfから選ばれる少なくとも1種の元素、AはNi、V、Cr、Mn、Al、Si、Ga、Nb、TaおよびWから選ばれる少なくとも1種の元素を示し、p、q、r、sおよびzはそれぞれ

原子比で $0.05 \leq p \leq 0.6$ 、 $0.005 \leq q \leq 0.1$ 、 $0.01 \leq r \leq 0.15$ 、 $0 \leq s \leq 0.2$ 、 $4 \leq z \leq 9$ を満足する数である)

で表される組成を有する合金粉末を作製する工程と、

前記合金粉末を磁場中で加圧成形して圧粉体を作製する工程と、

前記圧粉体を焼結して焼結体を作製する工程と、

前記焼結体に溶体化処理を施す工程と、

前記溶体化処理後の焼結体に、 $T_B - 50 < T < T_B + 50$ (ここで、 T_B は式： $3500p - 5000q - (45p)^2$ で表される温度である) を満足する温度 T にて時効処理を施す工程と

を具備することを特徴とする永久磁石の製造方法。

[請求項6]

請求項5記載の永久磁石の製造方法において、

前記時効処理工程は、前記温度 T を満足する温度 T_1 で前記焼結体を熱処理する第1の時効工程と、前記温度 T_1 より高い温度 T_2 で前記焼結体を熱処理する第2の時効工程とを具備することを特徴とする永久磁石の製造方法。

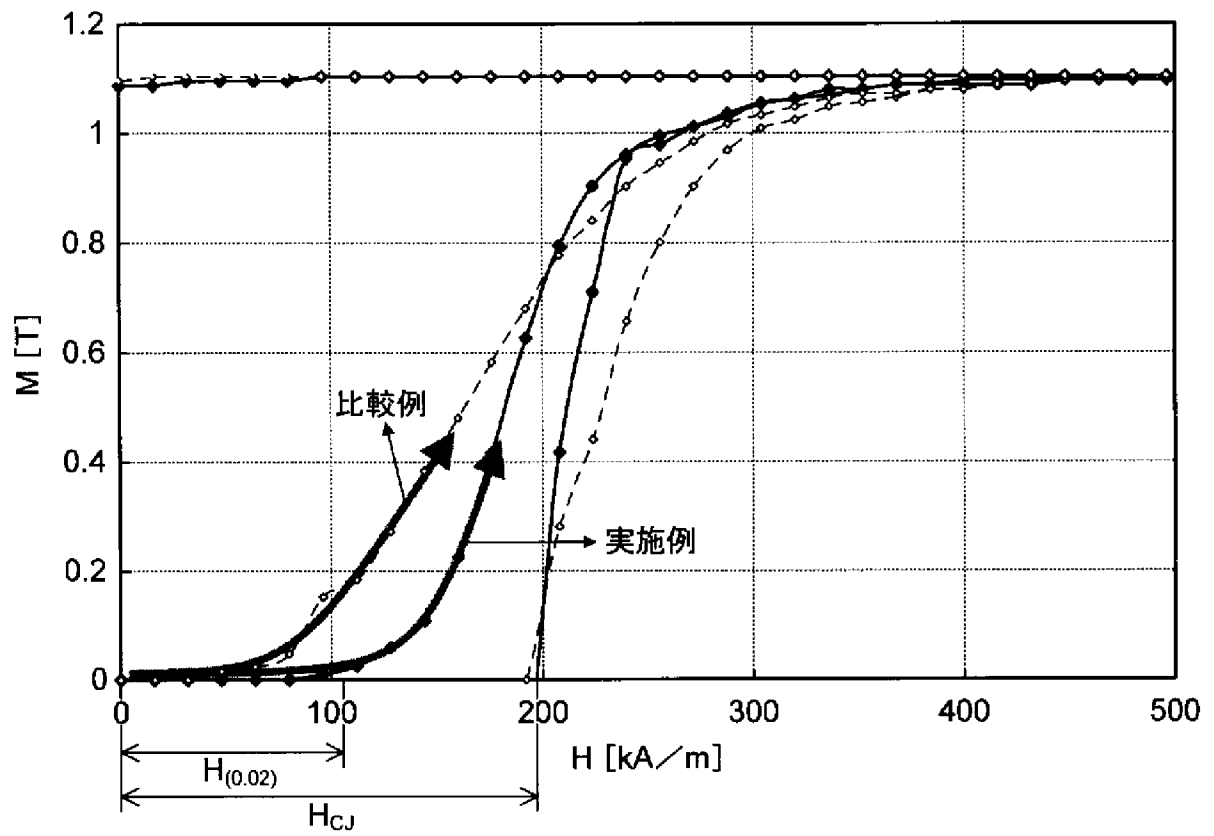
[請求項7]

請求項1記載の永久磁石を具備することを特徴とする可変磁束モータ。

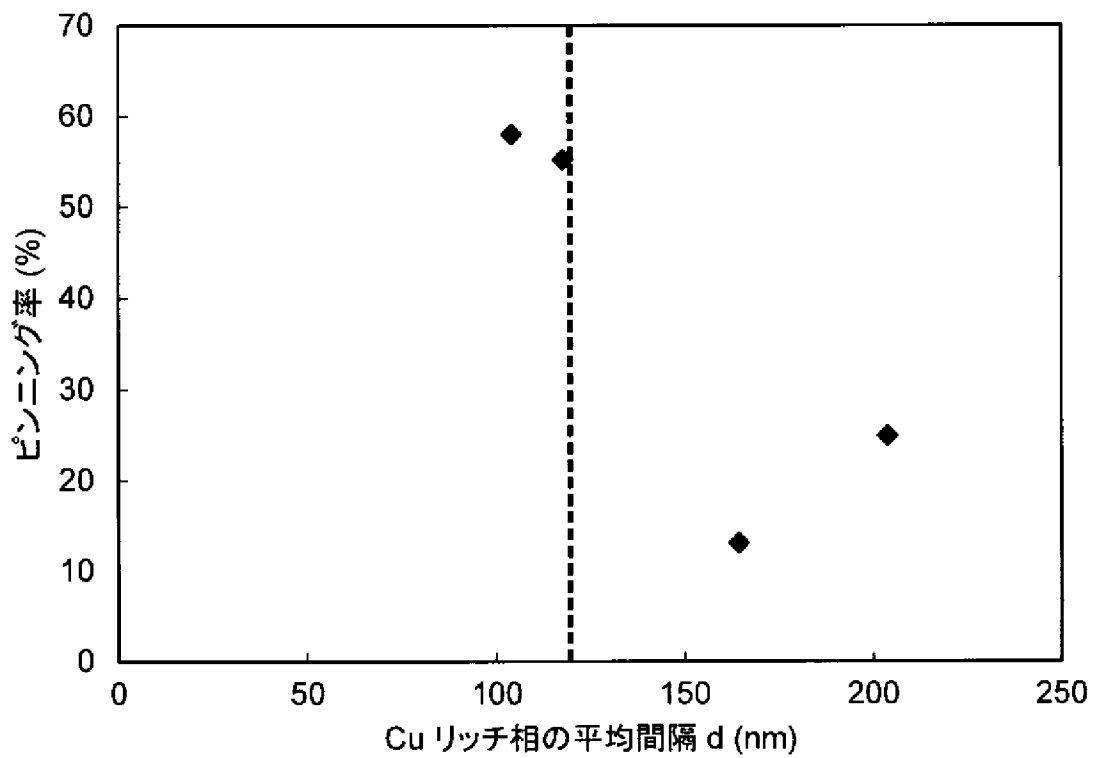
[請求項8]

請求項1記載の永久磁石を具備することを特徴とする可変磁束発電機。

[図1]



[図2]

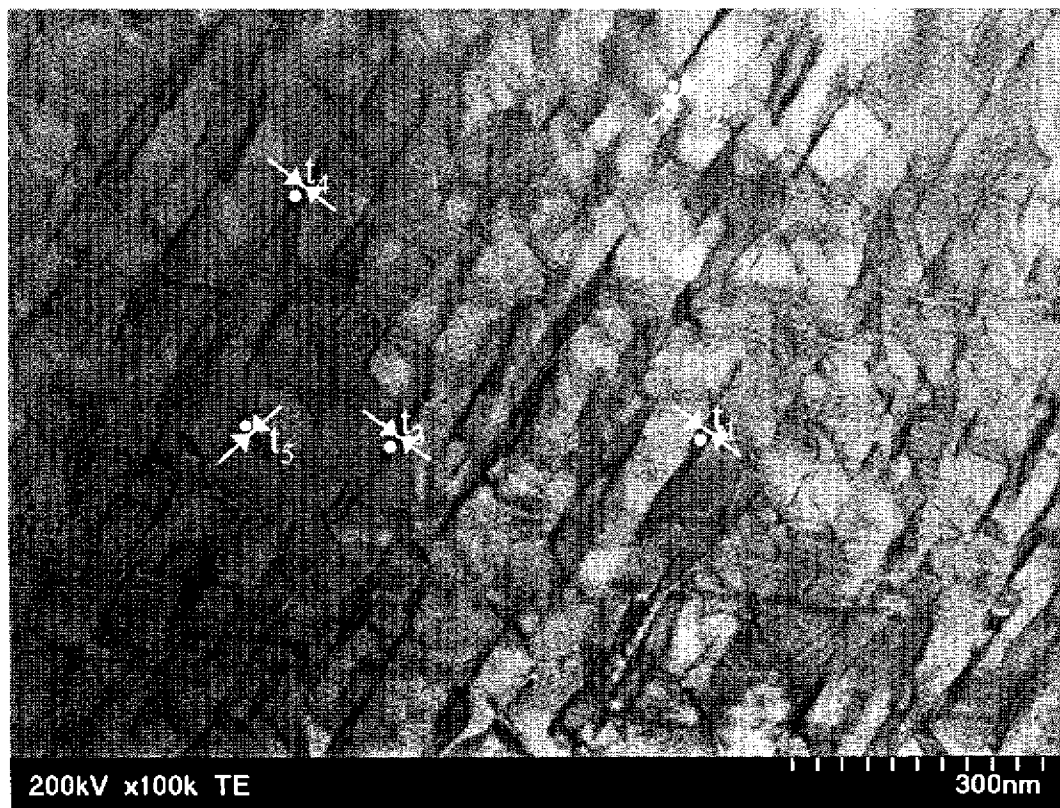




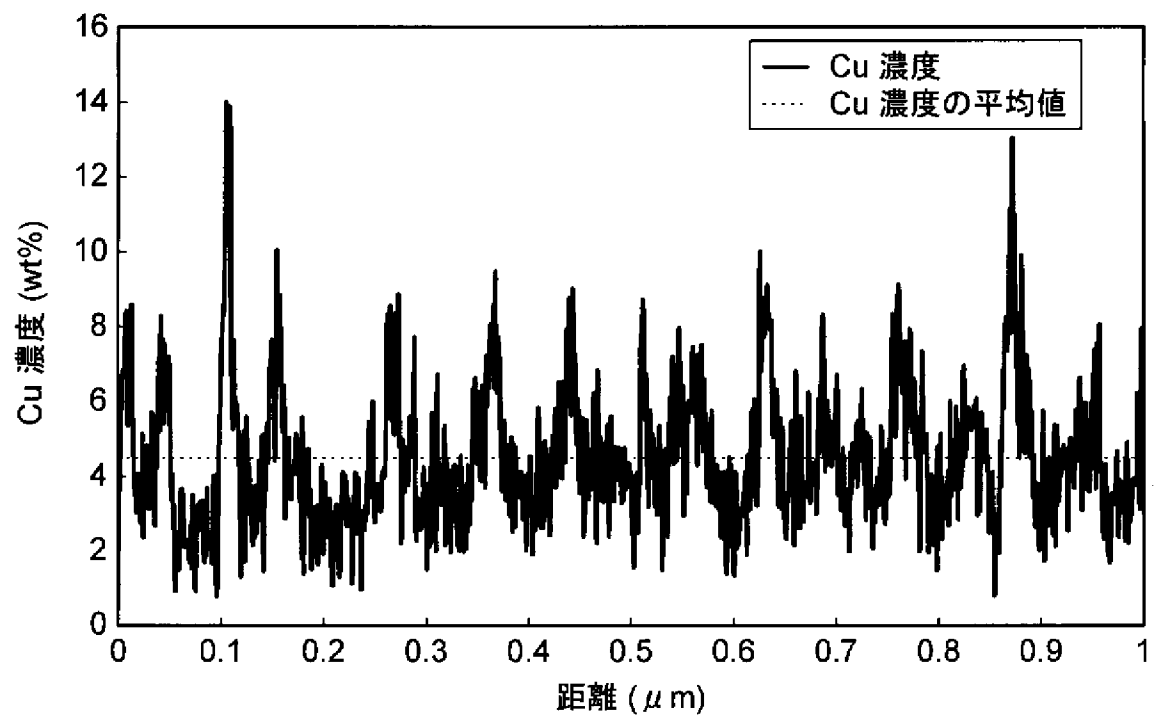
200kV x100k TE

300nm

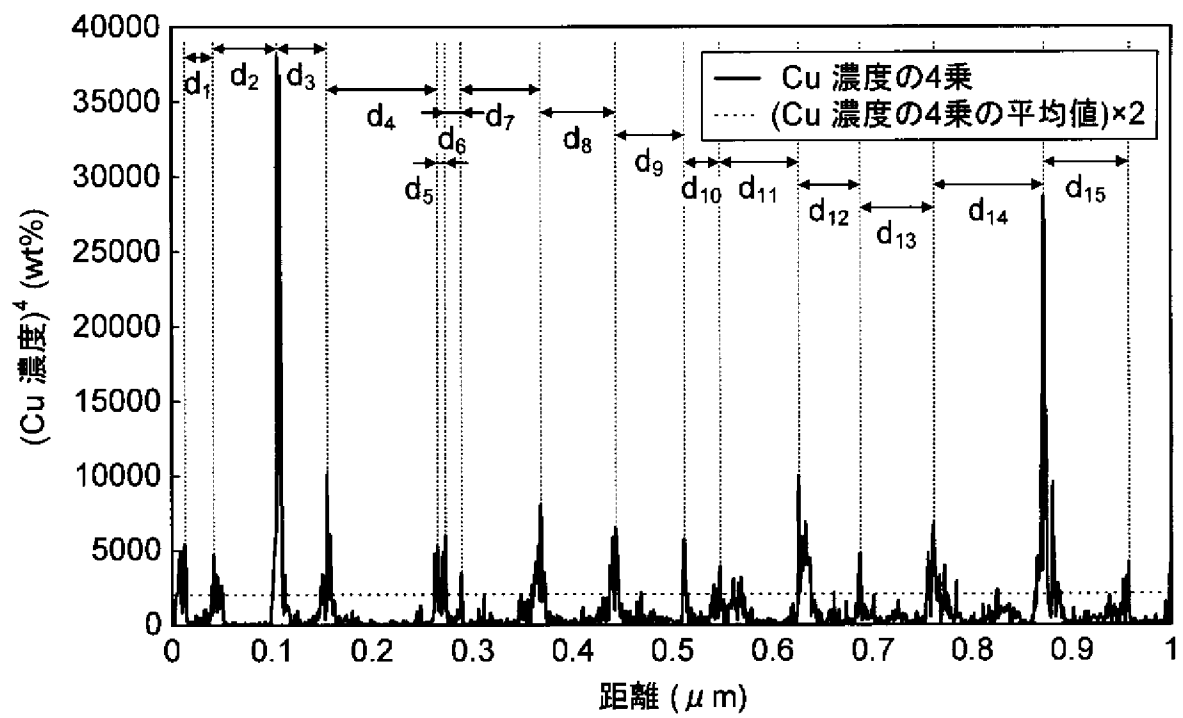
[図5]



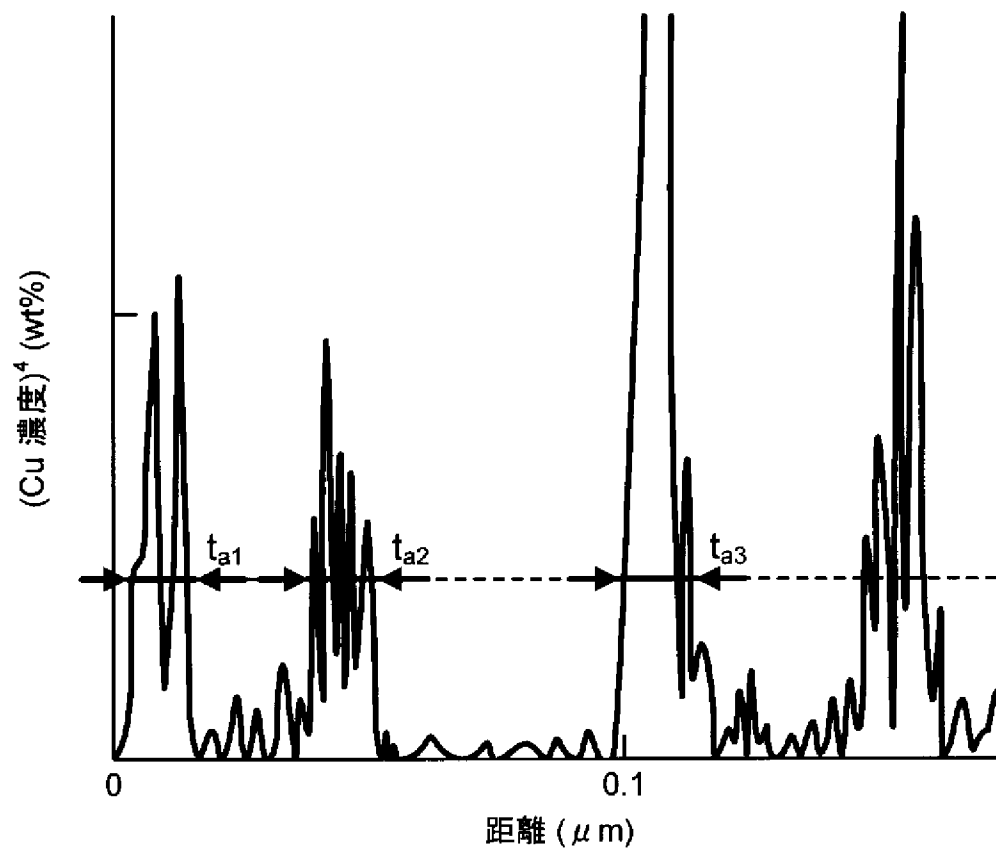
[図6]



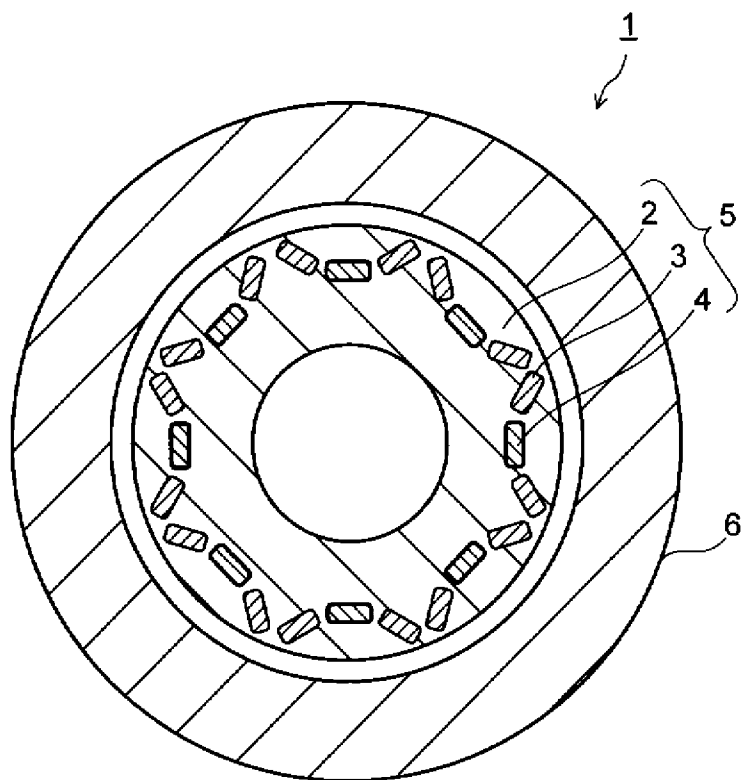
[図7]



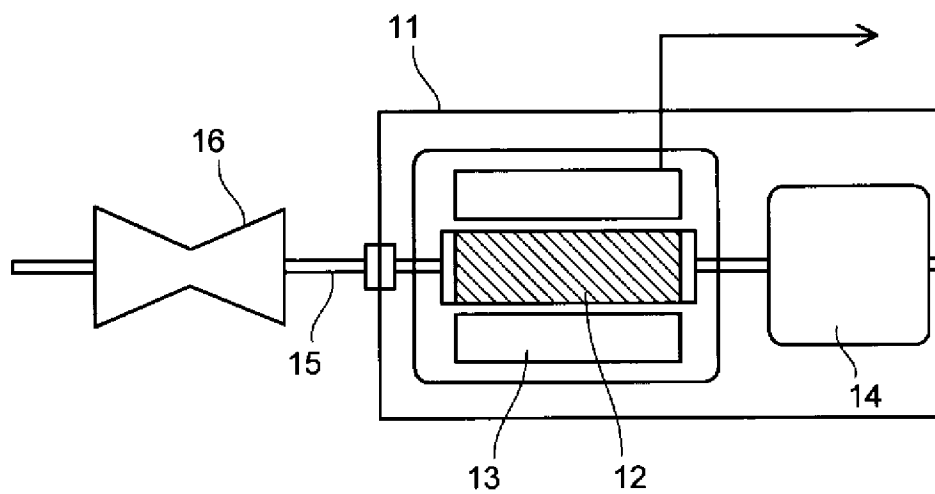
[図8]



[図9]



[図10]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/002317

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B22F3/00 (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)

B22F3/00

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	1996-2010
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2010	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2010

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2005-243883 A (Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.), 08 September 2005 (08.09.2005), claims & US 2005/189042 A1 & EP 1569247 A1	1-8
A	JP 2003-193208 A (Toshiba Corp.), 09 July 2003 (09.07.2003), claims (Family: none)	1-8
A	JP 2010-034522 A (Toshiba Corp.), 12 February 2010 (12.02.2010), claims (Family: none)	1-8



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

30 June, 2010 (30.06.10)

Date of mailing of the international search report

13 July, 2010 (13.07.10)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C）） Int.Cl. B22F3/00(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（I P C）） Int.Cl. B22F3/00			
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2010年 日本国実用新案登録公報 1996-2010年 日本国登録実用新案公報 1994-2010年			
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）			
C. 関連すると認められる文献			
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示		関連する 請求項の番号
A	JP 2005-243883 A（信越化学工業株式会社）2005.09.08，特許請求の範囲 & US 2005/189042 A1 & EP 1569247 A1		1-8
A	JP 2003-193208 A（株式会社東芝）2003.07.09，特許請求の範囲（ファミリーなし）		1-8
A	JP 2010-034522 A（株式会社東芝）2010.02.12，特許請求の範囲（ファミリーなし）		1-8
☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。 ☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。			
* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と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 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」同一パテントファミリー文献			
国際調査を完了した日 30.06.2010		国際調査報告の発送日 13.07.2010	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（I S A / 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） 米田 健志 電話番号 03-3581-1101 内線 3477	