

(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
2013 年 1 月 3 日(03.01.2013)



(10) 国際公開番号
WO 2013/002170 A1

- (51) 国際特許分類:
C22C 38/00 (2006.01) *C22C 33/02* (2006.01)
B22F 3/00 (2006.01) *H01F 41/02* (2006.01)
B22F 3/24 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/066132
- (22) 国際出願日: 2012 年 6 月 25 日(25.06.2012)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2011-142077 2011 年 6 月 27 日(27.06.2011) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日立金属株式会社 (Hitachi Metals, Ltd.) [JP/JP]; 〒1058614 東京都港区芝浦一丁目 2 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): 國吉 太 (KUNIYOSHI Futoshi) [JP/JP]; 〒6180013 大阪府三島郡島本町江川 2-15-17 日立金属株式会社磁性材料研究所内 Osaka (JP).

- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, 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, QA, RO, RS, RU, RW, 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, 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, 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: RH DIFFUSION SOURCE, AND METHOD FOR PRODUCING R-T-B-BASED SINTERED MAGNET USING SAME

(54) 発明の名称: RH 拡散源およびそれを用いた R-T-B 系統結磁石の製造方法

【図1】

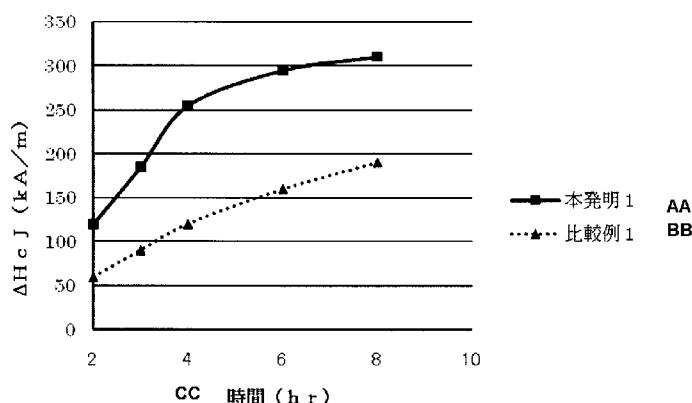


FIG. 1:
AA Invention 1
BB Comparative example 1
CC Time (hr)

(57) Abstract: Provided is a method for producing an R-T-B-based sintered magnet by diffusing a heavy rare earth element RH from the surface of an R-T-B-based sintered magnet body into the inside of the sintered magnet body with high efficiency. This method for producing an R-T-B-based sintered magnet comprises: a step of preparing an R-T-B-based sintered magnet body (wherein R represents a rare earth element; and T represents a transition metal element mainly comprising Fe); a step of preparing an RH diffusion source that is an alloy comprising 0.2 to 18 mass % inclusive of a light rare earth element RL (which comprises Nd and/or Pr), 40 to 70 mass% inclusive of Fe and a remainder made up by a heavy rare earth element RH (which comprises Dy and/or Tb) wherein the ratio of the heavy rare earth element RH to Fe (i.e., RH:Fe) is 3:2 to 3:7 by mass; and an RH diffusion step of introducing the R-T-B-based sintered magnet body and the RH diffusion source into a treatment chamber in a relatively movable and approachable or contactable manner to each other and heating the R-T-B-based sintered magnet body and the RH diffusion source at a temperature of 700 to 1000°C inclusive while moving the R-T-B-based sintered magnet body and the RH diffusion source in the treatment chamber continuously or intermittently.

net body and the RH diffusion source in the treatment chamber continuously or intermittently.

(57) 要約:

[続葉有]

WO 2013/002170 A1



重希土類元素RHをR-T-B系焼結磁石体の表面から内部に効率よく拡散するR-T-B系焼結磁石の製造方法を提供する。本発明のR-T-B系焼結磁石の製造方法は、R-T-B系焼結磁石体（Rは希土類元素、TはFeを主とする遷移金属元素）を準備する工程と、0.2質量%以上18質量%以下の軽希土類元素RL（NdおよびPrの少なくとも一種からなる）、40質量%以上70質量%以下のFe、残部が重希土類元素RH（DyおよびTbの少なくとも一種からなる）からなる合金であり、かつ重希土類元素RHとFeの質量比がRH：Fe＝3：2から3：7であるRH拡散源を準備する工程と、前記R-T-B系焼結磁石体と前記RH拡散源とを相対的に移動可能かつ近接または接触可能に処理室内に装入し、処理室内にて連続的または断続的に移動させながら、700℃以上1000℃以下に加熱するRH拡散工程と、を包含する。

明 細 書

発明の名称：

R H拡散源およびそれを用いたR－T－B系焼結磁石の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、 $R_2T_{14}B$ 型化合物を主相として有するR－T－B系焼結磁石（Rは希土類元素、TはFeを主とする遷移金属元素）の製造方法に関する。

背景技術

[0002] $R_2T_{14}B$ 型化合物を主相とするR－T－B系焼結磁石は、永久磁石の中で最も高性能な磁石として知られており、ハイブリッド車搭載用モータ等の各種モータや家電製品等に使用されている。

R－T－B系焼結磁石は、高温で保磁力が低下するため、不可逆熱減磁が起こる。不可逆熱減磁を回避するため、モータ用等に使用する場合、高温下でも高い保磁力を維持することが要求されている。

[0003] R－T－B系焼結磁石は、 $R_2T_{14}B$ 型化合物相中のRの一部を重希土類金属RHで置換すると、保磁力が向上することが知られている。高温で高い保磁力を得るためには、R－T－B系焼結磁石に重希土類金属RHを多く含有させることが有効である。

しかし、R－T－B系焼結磁石において、Rとして軽希土類元素RLを重希土類元素RHで置換すると、保磁力（以下 H_{cJ} ）が向上する一方、残留磁束密度（以下 B_r ）が低下してしまうという問題がある。また、重希土類元素RHは希少資源であるため、その使用量を削減することが求められている。

[0004] そこで、近年、 B_r を低下させることなく、かつより少ない重希土類元素RHによってR－T－B系焼結磁石の H_{cJ} を向上させることが検討されている。

[0005] 特許文献1には、R－T－B系焼結磁石体と重希土類元素RHの金属または合金からなるRH拡散源とを相対的に移動可能かつ近接または接触可能に処理室内に装入する工程と、R－T－B系焼結磁石体とRH拡散源とを処理

室内で連続的または断続的に移動させながら、 500°C 以上 850°C 以下の熱処理を10分以上行うRH拡散工程とにより、 B_r を低下させることなくDyやTbの重希土類元素RHを磁石素材の表面から内部に拡散させ、 H_{cJ} を向上させるR-T-B系焼結磁石の製造方法が開示されている。

[0006] 特許文献2には、希土類磁石の焼結体に、Dyの鉄化合物又はTbの鉄化合物を含む重希土類化合物を付着させる第1工程と、前記重希土類化合物が付着した希土類磁石の焼結体を熱処理する第2工程により、 H_{cJ} を向上させる希土類磁石の製造方法が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：国際公開WO2011/7758号

特許文献2：特開2009-289994号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] 特許文献1の方法によれば、 500°C 以上 850°C 以下という温度にも関わらず、RH拡散源がR-T-B系焼結磁石体と近接または接触するため、RH拡散源から重希土類元素RHが供給され、粒界を通じてその内部に拡散することができる。

[0009] また、R-T-B系焼結磁石体の表面より重希土類元素RHを供給することができるが、前記温度範囲ではR-T-B系焼結磁石体内部への拡散速度が遅いため、R-T-B系焼結磁石体内部へ十分に重希土類元素RHを拡散するのに時間がかかってしまう。

[0010] 特許文献1の方法によれば、RH拡散源としてDyメタル若しくはTbメタルまたはDy量が70質量%超のDy合金若しくはTb量が70質量%超のTb合金を用いた場合、 850°C を超える処理温度で処理するとR-T-B系焼結磁石体とRH拡散源とが溶着するので、処理温度を高めることでR-T-B系焼結磁石体内部への拡散速度を速くすることができず、 850°C

を超える R H 拡散処理温度は採用できない。

[0011] 特許文献 2 の方法によれば、重希土類化合物である D y 鉄化合物又は T b 鉄化合物が希土類磁石の焼結体の主相に取り込まれ過ぎて、 B_r が低下する問題があった。

[0012] 本発明の目的は、上記事情に鑑みてなされたものであり、その目的は、R-T-B 系焼結磁石体（R H 拡散工程実施前の磁石）内部に効率的に重希土類元素 R H を拡散することができる R H 拡散源を提供することである。

[0013] 本発明の別の目的は、700℃以上1000℃以下の広い温度域の R H 拡散工程で、R-T-B 系焼結磁石体と R H 拡散源とが溶着を起こさず R-T-B 系焼結磁石体内部に重希土類元素 R H を拡散させ、 B_r を低下させることなく H_c を大きく向上することができる R H 拡散源を提供することである。

[0014] 本発明の別の目的は、上記 R H 拡散源を用いた R-T-B 系焼結磁石の製造方法を提供することである。

課題を解決するための手段

[0015] 本発明の R H 拡散源は、

0. 2 質量%以上 18 質量%以下の軽希土類元素 R L（N d および P r の少なくとも一種からなる）、

40 質量%以上 70 質量%以下の F e、

残部が重希土類元素 R H（D y および T b の少なくとも一種からなる）からなる合金であり、

かつ前記重希土類元素 R H と前記 F e の質量比が $R H : F e = 3 : 2$ から $3 : 7$ である。

[0016] 本発明の R-T-B 系焼結磁石の製造方法は、R-T-B 系焼結磁石体（R は希土類元素、T は F e を主とする遷移金属元素）を準備する工程と、

0. 2 質量%以上 18 質量%以下の軽希土類元素 R L（N d および P r の少なくとも一種からなる）、

40 質量%以上 70 質量%以下の F e、

残部が重希土類元素 R H（D y および T b の少なくとも一種からなる）か

らなる合金であり、

かつ前記重希土類元素 R H と前記 F e の質量比が $R H : F e = 3 : 2$ から $3 : 7$ である R H 拡散源を準備する工程と、

前記 R - T - B 系焼結磁石体と前記 R H 拡散源とを相対的に移動可能かつ近接または接触可能に処理室内に装入し、前記 R - T - B 系焼結磁石体と前記 R H 拡散源とを前記処理室内にて連続的または断続的に移動させながら、前記 R - T - B 系焼結磁石体および前記 R H 拡散源を 700°C 以上 1000°C 以下の処理温度に加熱する R H 拡散工程と、
を包含する。

発明の効果

[0017] 本発明の R H 拡散源によれば、R - T - B 系焼結磁石体内部に効率的に重希土類元素 R H を拡散させることができる。

[0018] また、本発明の R H 拡散源によれば、 700°C 以上 1000°C 以下の広い温度域の R H 拡散工程で R - T - B 系焼結磁石体と R H 拡散源とが溶着を起こさず R - T - B 系焼結磁石体内部に重希土類元素 R H を拡散させることができる。

[0019] また、本発明の R - T - B 系焼結磁石の製造方法によれば、R - T - B 系焼結磁石体に効率的に重希土類元素 R H を拡散し、 B_r を低下させずに H_{cJ} を大きく向上させることができる。

図面の簡単な説明

[0020] [図1]本発明および比較例の R H 拡散工程の時間に対する H_{cJ} 向上効果を示す図である。

[図2]本発明および比較例の R H 拡散工程の温度に対する H_{cJ} 向上効果を示す図である。

[図3]本発明の好ましい実施形態で使用する拡散装置の構成を模式的に示す断面図である。

発明を実施するための形態

[0021] 本発明の R H 拡散源は、

0. 2質量%以上18質量%以下の軽希土類元素 R_L (Nd および Pr の少なくとも一種からなる)、

40質量%以上70質量%以下の Fe 、

残部が重希土類元素 R_H (Dy および Tb の少なくとも一種からなる)からなる合金であり、

かつ前記重希土類元素 R_H と前記 Fe の質量比が $R_H : Fe = 3 : 2$ から $3 : 7$ である。

[0022] 本発明の $R-T-B$ 系焼結磁石の製造方法は、

$R-T-B$ 系焼結磁石体 (R は希土類元素、 T は Fe を主とする遷移金属元素)を準備する工程と、

0. 2質量%以上18質量%以下の軽希土類元素 R_L (Nd および Pr の少なくとも一種からなる)、

40質量%以上70質量%以下の Fe 、

残部に重希土類元素 R_H (Dy および Tb の少なくとも一種からなる)からなる合金であり、

かつ前記重希土類元素 R_H と前記 Fe の質量比が $R_H : Fe = 3 : 2$ から $3 : 7$ である R_H 拡散源を準備する工程と、

前記 $R-T-B$ 系焼結磁石体と前記 R_H 拡散源とを相対的に移動可能かつ近接または接触可能に処理室内に装入し、前記 $R-T-B$ 系焼結磁石体と前記 R_H 拡散源とを前記処理室内にて連続的または断続的に移動させながら、前記 $R-T-B$ 系焼結磁石体および前記 R_H 拡散源を $700^{\circ}C$ 以上 $1000^{\circ}C$ 以下の処理温度に加熱する R_H 拡散工程と、を包含する。

[0023] 本発明の製造方法は、上記 R_H 拡散工程にて R_H 拡散源自体から液相が生成され、その液相を介して重希土類元素 R_H を $R-T-B$ 系焼結磁石体内部に拡散させることができる。

[0024] また、 R_H 拡散工程における処理温度である $700^{\circ}C$ 以上 $1000^{\circ}C$ 以下という温度域は、 $R-T-B$ 系焼結磁石体内部への R_H 拡散処理が速やかに進行する温度範囲であり、重希土類元素 R_H を $R-T-B$ 系焼結磁石体内部

に拡散させやすい条件でR H拡散工程を実施することができる。

[0025] このR H拡散工程では、例えば、処理室を回転または揺動させたり、処理室に振動を加えたりすることにより、R－T－B系焼結磁石体とR H拡散源とを前記処理室内にて連続的にまたは断続的に移動して、R－T－B系焼結磁石体とR H拡散源との接触部の位置を変化させたり、R－T－B系焼結磁石体とR H拡散源とを近接・離間させながら、重希土類元素R Hの供給とR－T－B系焼結磁石体内部への拡散とを同時に実行する。

[0026] [R H拡散源]

R H拡散源は、

0. 2質量%以上18質量%以下の軽希土類元素R L（N dおよびP rの少なくとも一種からなる）、

40質量%以上70質量%以下のF e、

残部が重希土類元素R H（D yおよびT bの少なくとも一種からなる）からなる合金であり、

かつ前記重希土類元素R Hと前記F eの質量比がR H：F e＝3：2から3：7である。

[0027] 上記組成からなるR H拡散源を用いることで、700℃以上1000℃以下で実施されるR H拡散工程により、効率よくH_{cJ}が向上する。また、このとき溶着の発生もない。この効果は、R H拡散工程中にR H拡散源から軽希土類元素R Lを主な成分とする液相が生成し、重希土類元素R Hを速やかにR－T－B系焼結磁石体へ供給する一方、R H拡散源内のR HとF eの質量比を3：2から3：7の範囲とすることでR H拡散源内にR H F e₂、R H F e₃、R H₆ F e₂₃の化合物が存在し、処理中も固相として残存するために溶着が発生しないと推察される。また、本発明のR H拡散源は前記化合物に軽希土類元素R Lが固溶しないことから、繰り返し使用してもR H拡散源の初期の能力を維持することができる。

[0028] ここで、R H拡散源中の軽希土類元素R Lの含有量が0. 2質量%未満であると、R H拡散工程中にR H拡散源から生成される液相が少なく、R H拡

散源中の重希土類元素 R H を R - T - B 系焼結磁石体に効率的に導入することができない。一方、R H 拡散源中の軽希土類元素 R L の含有量が 18 質量%を超えると、850℃を超える高温の R H 拡散工程を行う場合に R - T - B 系焼結磁石体と R H 拡散源とが溶着することがある。また、R H 拡散源中の軽希土類元素 R L の含有量が 18 質量%を超えると、相対的に R H 拡散源中の重希土類元素 R H の供給量が減り、H_{cJ} 向上効果が小さくなる場合がある。

[0029] ここで、R H 拡散源の F e の含有量が 40 質量%未満であると、R H 拡散工程中に多くの液相が生成するので、850℃超の高い温度で R H 拡散をすると R - T - B 系焼結磁石体と R H 拡散源とが溶着することがある。一方、F e の含有率が 70 質量%を超えると、相対的に重希土類元素 R H の供給量が低下するので、R H 拡散処理をしても H_{cJ} の向上効果が小さくなる。

[0030] また、重希土類元素 R H と F e との質量比が 3 : 2 から 3 : 7 とすることで、前述のように広い温度範囲で溶着することなく、R H 拡散工程を実施することができる。F e の質量比が 2 未満であると溶着が発生し、F e の質量比が 7 を超えると R H 拡散源中の重希土類元素 R H が少ないので、重希土類元素 R H の供給量が減少し H_{cJ} 向上効果が小さくなる。

[0031] 本発明の R H 拡散源は、少なくとも一部に軽希土類元素 R L (P r および N d の少なくとも一種からなる) を主とする相を有する。このことで、R H 拡散工程において R H 拡散源から液相が生成され、重希土類元素 R H の R - T - B 系焼結磁石体内部への導入を促進すると考えられる。

[0032] R H 拡散源の形状・大きさは、特に限定されない。R H 拡散源の形態は、例えば、球状、線状、板状、粉末など任意である。球状や線状を有する場合、その直径は例えば 1 mm ~ 20 mm に設定される。粉末の場合、その粒径は、例えば、0.05 mm 以上 5 mm 以下の範囲に設定される。

[0033] R H 拡散源の作製方法は、一般的な合金溶製法その他、還元拡散法なども利用できる。

合金溶製法は、前記所定の組成になるように原料合金を溶解炉に投入し、

溶解した後、冷却して作製される。

一例として、合金溶製法的一种であるストリップキャスト法ではロール表面速度が0.1 m/秒以上10 m/秒以下の範囲で回転する銅製の水冷ロールに所定の組成の溶湯を接触させ急凝固合金を形成する。得られた急凝固合金を機械的方法や水素粉砕法など種々の方法で粉砕する。

他の例として、他の合金溶製法であるインゴット法では、所定の組成の溶湯を水冷銅鑄型に流し込み冷却し、合金インゴットを鑄造する。得られた合金インゴットは機械的方法や水素粉砕法など種々の方法で粉砕する。

RH拡散処理をするR-T-B系焼結磁石体の大きさに照らし、使いやすい大きさとするためにさらにふるいにより粒度調整をしてもよい。

[0034] [R-T-B系焼結磁石体]

本発明で準備するR-T-B系焼結磁石体は公知の組成からなる。例えば、以下の組成からなる。

希土類元素R：12原子%以上17原子%以下

B（Bの一部はCで置換されていてもよい）：5原子%以上8原子%以下

添加元素M（Al、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、In、Sn、Hf、Ta、W、Pb、およびBiからなる群から選択された少なくとも1種を含む）：0原子%以上2原子%以下

T（Feを主とする遷移金属元素）および不可避不純物：残部

ここで、希土類元素Rは、主として軽希土類元素（Nd、Prの少なくとも1種を含む）から選択される少なくとも1種の元素であるが、重希土類元素を含有していてもよい。なお、重希土類元素を含有する場合は、DyおよびTbの少なくとも一方を含むことが好ましい。

上記組成のR-T-B系焼結磁石体（RH拡散工程を実施する前の磁石）は、公知の希土類焼結磁石の製造方法によって製造される。

[0035] [攪拌補助部材]

本発明の実施形態では、R-T-B系焼結磁石体とRH拡散源に加えて、

攪拌補助部材を処理室内に装入することが好ましい。攪拌補助部材は R H 拡散源と R-T-B 系焼結磁石体との接触を促進し、また攪拌補助部材に一旦付着した重希土類元素 R H を R-T-B 系焼結磁石体へ間接的に供給する役割をする。さらに、攪拌補助部材は、処理室内において、R-T-B 系焼結磁石体同士や R-T-B 系焼結磁石体と R H 拡散源との接触による欠けを防ぐ役割もある。

[0036] 攪拌補助部材は、R H 拡散工程中に R-T-B 系焼結磁石体および R H 拡散源と接触しても、反応しにくい材料から形成されることが好ましい。攪拌補助部材としてはジルコニア、窒化ケイ素、炭化ケイ素並びに窒化硼素、または、これらの混合物のセラミックスから好適に形成され得る。また、Mo、W、Nb、Ta、Hf、Zr とを含む族の元素、または、これらの混合物からも形成される。

[0037] [R H 拡散工程]

R H 拡散工程において、R-T-B 系焼結磁石体と R H 拡散源とを処理室内に連続的または断続的に移動させる方法は、R-T-B 系焼結磁石体に欠けや割れを発生させることなく、R H 拡散源と R-T-B 系焼結磁石体との相互配置関係を変動させることが可能であれば、公知の方法が採用される。例えば、処理室を回転したり、揺動したり、外部から処理室に振動を加えたりする方法が採用できる。また、処理室を固定し処理室内に設けた攪拌手段による方法でもよい。

[0038] 図 3 を参照しながら、本発明による R H 拡散工程の好ましい例を説明する。

図 3 に示す例では、R-T-B 系焼結磁石体 1 および R H 拡散源 2 がステンレス製の筒 3 の内部に装入されている。この例では、筒 3 が「処理室」として機能する。筒 3 の材料は、ステンレスに限定されず、R H 拡散工程における処理温度に耐える耐熱性を有し、R-T-B 系焼結磁石体 1 および R H 拡散源 2 と反応しにくい材料であれば任意である。例えば、Nb、Mo、W またはそれらの少なくとも 1 種を含む合金を用いてもよい。筒 3 には開閉ま

たは取り外し可能な蓋 5 が設けられている。また筒 3 の内壁には、R H 拡散源と R-T-B 系焼結磁石体とが効率的に移動と接触を行い得るように、突起物を設置することができる。筒 3 の長軸方向に垂直な断面形状も、円に限定されず、楕円または多角形、あるいはその他の形状であってもよい。図 3 に示す状態の筒 3 は排気装置 6 と連結されている。排気装置 6 の働きにより、筒 3 の内部は減圧され得る。筒 3 の内部には、不図示のガスボンベから Ar などの不活性ガスが導入される。

[0039] 次に、図 3 の処理装置を用いて行う R H 拡散工程の操作手順を説明する。

まず、蓋 5 を筒 3 から取り外し、筒 3 の内部を開放する。複数の R-T-B 系焼結磁石体 1 および R H 拡散源 2 を筒 3 の内部に装入した後、再び、蓋 5 を筒 3 に取り付ける。筒 3 の内部を排気装置 6 により真空排気する。筒 3 の内部圧力が十分に低下した後、真空排気を止め、必要圧力まで不活性ガスを導入し、モータ 7 によって筒 3 を回転させながら、ヒータ 4 による加熱を実行する。

[0040] R H 拡散工程における筒 3 の内部は不活性雰囲気であることが好ましい。本明細書における「不活性雰囲気」とは、真空、または不活性ガス雰囲気を含むものとする。また、「不活性ガス」は、例えばアルゴン (Ar) などの希ガスであるが、R-T-B 系焼結磁石体 1 および R H 拡散源 2 との間で化学的に反応しないガスであれば、「不活性ガス」に含まれ得る。不活性ガスの圧力は、大気圧以下であることが好ましい。筒 3 の内部において R H 拡散源 2 と R-T-B 系焼結磁石体 1 とが近接または接触しているため、1 Pa 以上の高い雰囲気圧力でも効率よく R H 拡散工程ができる。また、雰囲気圧力と重希土類元素 R H の供給量との相関は比較的小さく、 H_2 の向上度にあまり影響しない。R-T-B 系焼結磁石体への重希土類元素 R H の供給量は、雰囲気圧力よりも R-T-B 系焼結磁石体の温度に敏感である。

R H 拡散工程時における雰囲気ガスの圧力（処理室内の雰囲気圧力）は、例えば 0.1 Pa から大気圧の範囲内に設定される。

[0041] 筒 3 は、その外周部に配置されたヒータ 4 によって加熱される。筒 3 の加

熱により、その内部に収納された R-T-B 系焼結磁石体 1 および R H 拡散源 2 も加熱される。筒 3 は、中心軸の回りに回転可能に支持されており、ヒータ 4 による加熱中もモータ 7 によって回転することができる。筒 3 の回転速度は、例えば筒 3 の内壁面の周速度が毎秒 0.01 m 以上に設定される。回転により筒内の R-T-B 系焼結磁石体同士が激しく接触して欠けないよう、毎秒 0.5 m 以下に設定するのが好ましい。

図 3 の R H 拡散処理装置を用いた R H 拡散工程時における処理室の内壁面の周速度は、例えば 0.01 m/s 以上に設定される。回転速度が小さくなると、R-T-B 系焼結磁石体と R H 拡散源とが接触したままになり、溶着が発生しやすくなる。このため、処理温度が高いほど、処理室の回転速度を高めることが好ましい。好ましい回転速度は、処理温度のみならず、R-T-B 系焼結磁石体の形状、大きさおよび R H 拡散源の形状、大きさによって決まる。

[0042] ヒータ 4 を用いた加熱により、R H 拡散源 2 および R-T-B 系焼結磁石体 1 の処理温度を 700℃以上 1000℃以下の範囲内に保持する。この温度範囲は、重希土類元素 R H が R-T-B 系焼結磁石体内部へ速やかに拡散するのに好ましい温度領域である。好ましくは 800℃以上 1000℃以下である。さらに好ましくは 850℃以上 1000℃以下である。処理温度が 1000℃を超えると、R H 拡散源 2 と R-T-B 系焼結磁石体 1 とが溶着してしまう問題が生じ、一方、処理温度が 700℃未満では、処理に長時間を要する。また、700℃未満で長時間 R H 拡散をすると B_r が低下する恐れもある。

[0043] R H 拡散工程の時間は、例えば 10 分から 72 時間である。好ましくは 1 時間から 12 時間である。保持時間は、R H 拡散工程をする際の R-T-B 系焼結磁石体 1 および R H 拡散源 2 の装入量の比率、R-T-B 系焼結磁石体 1 の形状、R H 拡散源の形状、および、R H 拡散処理によって R-T-B 系焼結磁石体 1 に拡散されるべき重希土類元素 R H の供給量などを考慮して決められる。

[0044] [第1熱処理]

RH拡散工程後に、拡散された重希土類元素RHをR-T-B系焼結磁石体1内により奥深くまで拡散する目的でR-T-B系焼結磁石体1に対する第1熱処理を行っても良い。第1熱処理は、R-T-B系焼結磁石体をRH拡散源から分離した後、重希土類元素RHがR-T-B系焼結磁石体内部に拡散し得る700℃以上1000℃以下の範囲で行い、より好ましくは800℃以上950℃以下の温度で実行される。この第1熱処理では、R-T-B系焼結磁石体1に対して重希土類元素RHの更なる供給は生じないが、R-T-B系焼結磁石体の表面側から奥深くに重希土類元素RHを拡散し、磁石全体としてH_{cj}を高めることが可能になる。第1熱処理の時間は、例えば10分から72時間である。好ましくは1時間から12時間である。ここで、第1熱処理を行なう処理室内の雰囲気は不活性雰囲気で、雰囲気圧力は特に限定されないが大気圧以下が好ましい。第1熱処理は、RH拡散処理で用いた装置内で行ってもよいし、別の熱処理装置で行ってもよい。

[0045] [第2熱処理]

また、必要に応じてさらに第2熱処理（400℃以上700℃以下）を行うが、第2熱処理を行う場合は、第1熱処理の後に行うことが好ましい。第2熱処理の時間は、例えば10分から72時間である。好ましくは1時間から12時間である。ここで、第2熱処理を行なう処理室内の雰囲気は不活性雰囲気で、雰囲気圧力は特に限定されないが大気圧以下が好ましい。また、第1熱処理と第2熱処理とは、同じ熱処理装置で行ってもよいし、別の熱処理装置で行ってもよい。

[0046] （実験例1）（RH拡散処理の効率）

まず、組成比Nd=28.5、Pr=1.0、Dy=0.5、B=1.0、Co=0.9、Al=0.1、Cu=0.1、残部=Fe（質量％）のR-T-B系焼結磁石体を作製した。これを機械加工することにより、7.4mm×7.4mm×7.4mmの立方体のR-T-B系焼結磁石体を得た。作製したR-T-B系焼結磁石体の磁気特性をB-Hトレーサによって測定

したところ、熱処理（ $500^{\circ}\text{C} \times 1$ 時間）後の特性で H_{cJ} は 960 kA/m 、 B_r は 1.41 T であった。この値を以下各実験例の特性評価の基準とした。

- [0047] R H拡散源は、表1に記載の所定の組成になるようにNd、Dy、Feを秤量し、高周波溶解炉で溶解した後、ロール表面速度が 2 m/秒 で回転する銅製の水冷ロールに溶湯を接触させ急凝固合金を形成し、スタンプミル、水素粉碎などで粉碎し、ふるい目で 3 mm 以下に粒度調整をして作製した。
- [0048] 次に、図3の装置を用いてR H拡散工程を実行した。筒の容積： 128000 mm^3 、R-T-B系焼結磁石体の投入重量： 50 g 、R H拡散源の投入重量： 50 g であった。R H拡散源は直径 3 mm 以下の不定形のものを用いた。
- [0049] R H拡散工程は、処理室内を真空排気した後、アルゴンガスを導入し処理室内の圧力を 5 Pa とし、その後、処理室を回転させながら、R H拡散温度（ 820°C ）に達するまでヒーター4により昇温を行った。昇温中の圧力変動に対してはArガスの放出又は供給を適宜行い、 5 Pa を維持した。昇温レートは約 10°C/分 であった。R H拡散温度に達した後、所定の時間、その温度に保持した。その後、加熱を停止し、室温まで降温させた。その後、図3の装置からR H拡散源を取り出した後、残ったR-T-B系焼結磁石に対し雰囲気圧力 5 Pa のAr中で第1熱処理（ 900°C 、3時間）を行ない、ひきつづき拡散後の第2熱処理（ 500°C 、1時間）を行なった。
- [0050] ここで、磁気特性はR H拡散処理後におけるR-T-B系焼結磁石体の各面を 0.2 mm ずつ研削し、 $7.0\text{ mm} \times 7.0\text{ mm} \times 7.0\text{ mm}$ の立方体に加工した後、B-Hトレーサーにてその磁石特性を評価した。表1では、「R H拡散源」の欄には、使用したR H拡散源の組成が示されている。
- 「R Hに対するFeの比率」の欄には、R H拡散源に含まれる重希土類元素R Hを質量比で3としたときのFeの質量比を示している。「周速度」の欄には、図3に示す筒3の内壁面の周速度が示されている。「R H拡散温度」の欄には、R H拡散処理の温度が示されている。「R H拡散時間」の欄は、

R H拡散温度を保持した時間が示されている。「雰囲気圧力」はR H拡散工程における筒3内の雰囲気圧力を示している。

[0051] 表1に記載の通り、サンプル1、2、3、4は、本発明のR H拡散源を用いて、周速度、R H拡散処理温度、雰囲気圧力を同一としてそれぞれ2時間、4時間、6時間、8時間と異なる処理時間にてR H拡散工程を行った。そのときの B_r 、 $H_{c,j}$ の値は表2の通りである。サンプル5、6、7、8は軽希土類元素RLを含まないこととDy量を除いて、それぞれサンプル1、2、3、4と同じ条件にてR H拡散工程を行った。サンプル1から4を本発明1、サンプル5から8を比較例1として $\Delta H_{c,j}$ の値の変化を図1にて示す。図1より本発明のR H拡散源を用いた場合、短時間のR H拡散工程で $H_{c,j}$ が向上することがわかった。

なお、いずれのサンプルについても B_r の変化はなく、R H拡散工程中の溶着も発生しなかった。

[0052] [表1]

サ ン プ ル	R H拡散源			R Hに対する F eの比率	周速度 (m/s)	R H拡散 温度 (℃)	R H拡散 時間 (h r)	雰 囲 気 圧 力 (P a)
	Nd	Dy	Fe					
	(単位 質量%)							
1	6	54	40	2.2	0.02	820	2	5
2	6	54	40	2.2	0.02	820	4	5
3	6	54	40	2.2	0.02	820	6	5
4	6	54	40	2.2	0.02	820	8	5
5	—	60	40	2.0	0.02	820	2	5
6	—	60	40	2.0	0.02	820	4	5
7	—	60	40	2.0	0.02	820	6	5
8	—	60	40	2.0	0.02	820	8	5

[0053]

[表2]

サンプル	B_r (T)	H_{cJ} (kA/m)
1	1.41	1080
2	1.41	1215
3	1.41	1255
4	1.41	1270
5	1.41	1020
6	1.41	1080
7	1.41	1120
8	1.41	1150

[0054] (実験例2) (溶着の有無、RH拡散の温度)

表3に記載の条件で、記載のない条件、方法は実験例1と同様にR-T-B系焼結磁石を作製した。

RH拡散工程を異なる温度(600℃、700℃、800℃、850℃、900℃、1000℃、1020℃)で行ったときの溶着の有無は表3の結果となった。

サンプル9から17は本発明のRH拡散源を用いたものであり、サンプル18から30は比較例である。

表3において、RH拡散工程後の H_{cJ} 増加量を「 ΔH_{cJ} 」、RH拡散工程後の B_r 増加量を「 ΔB_r 」で示している。マイナスの数値はRH拡散処理なしのR-T-B系焼結磁石体の磁気特性より低下したことを示している。「溶着の有無」で、有はRH拡散工程後RH拡散源とR-T-B系焼結磁石体とが溶着したことを示している。

[0055] 表3より、サンプル10から14に示すように700℃から1000℃の範囲では溶着が発生しないことがわかった。表3のサンプル9からサンプル30までの B_r 、 H_{cJ} の値は表4の通りである。

[0056] 本発明のRH拡散源を用いても、1020℃でRH拡散工程を行った場合、サンプル9に示したように溶着が発生した。従って、1000℃以下でRH拡散工程をする必要がある。

一方、本発明のRH拡散源を用いても、600℃でRH拡散工程を行った場合、サンプル15に示したように H_c 向上効果が小さかった。従って、RH拡散工程の温度は、700℃以上1000℃以下が適正範囲であると判断できる。

[0057] 一方、Dyを拡散源として用いた場合、サンプル18から23に示すように850℃、900℃、1000℃では溶着が発生した。Dy-Fe合金を拡散源として用い、拡散工程を行った場合、サンプル25から29に示すように700℃から1000℃の範囲では溶着が発生しなかったが、サンプル10から14に比べ、いずれも ΔH_c は小さかった。

サンプル24は1020℃で拡散工程を行った場合を示し、溶着が発生した。サンプル30に示すように600℃でRH拡散工程をした場合、 H_c 向上効果が小さかった。

[0058] サンプル10から14を本発明2、サンプル18から22を比較例2、サンプル25から29を比較例3として ΔH_c の値の変化を図2にて示す。図2より本発明2は、比較例2、3と比べ700℃から1000℃の範囲の広い温度範囲で高い ΔH_c 向上効果があることがわかる。

[0059] また、サンプル14のRH拡散処理時間を15時間にしたサンプル16の磁気特性は、サンプル14と比べてやや ΔH_c が向上していた。

[0060] サンプル17は600℃のRH拡散工程において、RH拡散処理時間を15時間にしたものである。サンプル17の磁気特性を測定したところ、サンプル15と比べて ΔH_c はわずかに向上したが B_r が低下し、本発明のRH拡散源を用いても600℃でRH拡散工程を長時間行くと、重希土類元素RHが焼結磁石体表層付近の主相中心部付近まで主相に溶解込み、 B_r が低下する。

[0061] なお、Dyが100%であるDyメタルは酸化しやすく、大気中での取り扱いでは発火の問題がある等、作業性に困難が伴うので好ましくない。

[0062]

[表3]

サ ン プ ル	R H拡散源			R Hに対する F eの比率	周速度 (m/s)	R H拡散 温度 (℃)	R H拡散 時間 (h r)	雰囲気 圧力 (P a)	ΔH ₀ (kJ/m)	Δ B _r (T)	溶着の 有無
	Nd	Dy	Fe								
	(単位 質量%)										
	(単位mm)										
9	5	45	50	3.3	0.02	1020	4	5	—	—	有
10	5	45	50	3.3	0.02	1000	4	5	410	0	無
11	5	45	50	3.3	0.02	900	4	5	410	0	無
12	5	45	50	3.3	0.02	850	4	5	360	0	無
13	5	45	50	3.3	0.02	800	4	5	240	0	無
14	5	45	50	3.3	0.02	700	4	5	130	0	無
15	5	45	50	3.3	0.02	600	4	5	20	0	無
16	5	45	50	3.3	0.02	700	15	5	220	0	無
17	5	45	50	3.3	0.02	600	15	5	30	-0.01	無
18	—	100	—	—	0.02	1000	4	5	—	—	有
19	—	100	—	—	0.02	900	4	5	—	—	有
20	—	100	—	—	0.02	850	4	5	—	—	有
21	—	100	—	—	0.02	800	4	5	200	0	無
22	—	100	—	—	0.02	700	4	5	80	0	無
23	—	100	—	—	0.02	600	4	5	20	0	無
24	—	50	50	3	0.02	1020	4	5	—	—	有
25	—	50	50	3	0.02	1000	4	5	340	0	無
26	—	50	50	3	0.02	900	4	5	300	0	無
27	—	50	50	3	0.02	850	4	5	210	0	無
28	—	50	50	3	0.02	800	4	5	40	0	無
29	—	50	50	3	0.02	700	4	5	20	0	無
30	—	50	50	3	0.02	600	4	5	20	0	無

[0063]

[表4]

サンプル	B_r (T)	H_{cJ} (kA/m)
9	—	—
10	1.41	1370
11	1.41	1370
12	1.41	1320
13	1.41	1200
14	1.41	1090
15	1.41	980
16	1.41	1180
17	1.4	990
18	—	—
19	—	—
20	—	—
21	1.41	1160
22	1.41	1040
23	1.41	980
24	—	—
25	1.41	1300
26	1.41	1260
27	1.41	1170
28	1.41	1000
29	1.41	980
30	1.41	980

[0064] (実験例3) (RH拡散処理時間の影響)

表5に記載の条件以外は、実験例1と同じ条件、方法にてR-T-B系焼結磁石を作製した。

RH拡散処理時間の影響について、表5の通りRH拡散処理時間を変えてRH拡散処理を行ったところ、900℃のRH拡散工程では4時間以降は ΔH_{cJ} に大きな変化がなかった(サンプル33から36)。表5のサンプル31からサンプル36までの B_r 、 H_{cJ} の値は表6の通りである。

[0065]

[表5]

サ ン プ ル	R H 拡散源			R H に対する F e の比率	周速度 (m/s)	R H 拡散 温度 (℃)	R H 拡散 時間 (h r)	雰囲気圧力 (P a)	ΔH _ω (kA/m)	ΔB _r (T)
	Nd	Dy	Fe							
	(単位 質量%)									
31	6	54	40	2.2	0.04	900	2	10	310	0
32	6	54	40	2.2	0.04	900	3	10	380	0
33	6	54	40	2.2	0.04	900	4	10	420	0
34	6	54	40	2.2	0.04	900	6	10	420	0
35	6	54	40	2.2	0.04	900	9	10	420	0
36	6	54	40	2.2	0.04	900	12	10	420	0

[0066] [表6]

サンプル	B_r (T)	HcJ (kA/m)
31	1.41	1270
32	1.41	1340
33	1.41	1380
34	1.41	1380
35	1.41	1380
36	1.41	1380

[0067] (実験例4) (軽希土類元素 R L の適正量)

表 7 に記載の条件以外は、実験例 1 と同じ条件、方法にて R-T-B 系焼結磁石を作製した。

Nd 量を 0 質量%、0.2 質量%、1 質量%、3 質量%、6 質量%、9 質量%、12 質量%、18 質量%、24 質量%、30 質量%と変え、R H と F e の比率を変えた R H 拡散源を用いて、R H 拡散工程を行い、磁気特性を測定した。

検討した結果は表 7 の通りである。表 7 のサンプル 37 からサンプル 46 までの B_r 、 H_{cJ} の値は表 8 の通りである。

[0068]

[表7]

サ ン プ ル	R H 拡散源			R H に対する F e の比率	周速度 (m/s)	R H 拡散 温度 (℃)	R H 拡散 時間 (h r)	雰囲気圧力 (P a)	ΔH _{cJ} (kA/m)	ΔB _r (T)
	Nd	Dy	Fe							
	(単位 質量%)									
37	—	60	40	2	0.02	950	4	5	300	0
38	0.2	59.8	40	2	0.02	950	4	5	450	0
39	1	59	40	2	0.02	950	4	5	450	0
40	3	57	40	2.1	0.02	950	4	5	450	0
41	6	54	40	2.2	0.02	950	4	5	450	0
42	9	51	40	2.4	0.02	950	4	5	440	0
43	12	48	40	2.5	0.02	950	4	5	420	0
44	18	42	40	2.9	0.02	950	4	5	410	0
45	24	36	40	3.3	0.02	950	4	5	—	—
46	30	30	40	4	0.02	950	4	5	—	—

[0069] [表8]

サンプル	B_r (T)	H_{cJ} (kA/m)
37	1.41	1260
38	1.41	1410
39	1.41	1410
40	1.41	1410
41	1.41	1410
42	1.41	1400
43	1.41	1380
44	1.41	1370
45	—	—
46	—	—

[0070] Nd 量が 0.2 質量%以上 1.8 質量%以下の R H 拡散源にて R H 拡散工程を 950 °C、4 時間行ったサンプル 38 から 44 は、Nd 量が 0 質量%の R H 拡散源にて R H 拡散工程を 4 時間行ったサンプル 37 と比べ、高い ΔH_{cJ} を得ることができ、いずれも良好な磁気特性が得られた。

[0071] 0.2 質量%以上 1.8 質量%以下の Nd が含まれていることで Dy 量が少

なくとも効率よくDyをR-T-B系焼結磁石体に導入できた。

[0072] 一方、サンプル45、46では溶着が発生し、磁気特性を測定できなかった。

[0073] (実験例5) (RH拡散処理時の雰囲気圧力の影響)

表9に記載の条件以外は、実験例1と同じ条件、方法にてR-T-B系焼結磁石を作製した。

RH拡散時の雰囲気圧力の影響について、表9の通り種々の雰囲気圧力でRH拡散工程を行ったところ、雰囲気圧力が0.1Paから100000Paの間(サンプル47から56)では、圧力に関係なく H_{cJ} が向上した。表9のサンプル47からサンプル56までの B_r 、 H_{cJ} の値は表10の通りである。

[0074] [表9]

サ ン プ ル	R H 拡散源			R H に対する F e の比率	周速度 (m/s)	R H 拡散 温度 (℃)	R H 拡散 時間 (h r)	雰囲気圧 力 (P a)	ΔH _{cJ} (kA/m)	Δ B _r (T)
	Nd	Dy	Fe							
	(単位 質量%)									
47	3	57	40	2.1	0.02	950	4	1	450	0
48	3	57	40	2.1	0.02	950	4	2	450	0
49	3	57	40	2.1	0.02	950	4	5	450	0
50	3	57	40	2.1	0.02	950	4	10	440	0
51	3	57	40	2.1	0.02	950	4	100	420	0
52	3	57	40	2.1	0.02	950	4	100000	410	0
53	4	36	60	5	0.03	920	5	0.1	400	0
54	4	36	60	5	0.03	920	5	0.5	400	0
55	4	36	60	5	0.03	920	5	10	390	0
56	4	36	60	5	0.03	920	5	100	370	0

[0075]

[表10]

サンプル	B_r (T)	H_{cJ} (kA/m)
47	1.41	1410
48	1.41	1410
49	1.41	1410
50	1.41	1400
51	1.41	1380
52	1.41	1370
53	1.41	1360
54	1.41	1360
55	1.41	1350
56	1.41	1330

[0076] (実験例6) (RH と Fe の比率)

表11に記載の条件以外は、実験例1と同じ条件、方法にて $R-T-B$ 系焼結磁石を作製した。表11のサンプル57からサンプル64までの B_r 、 H_{cJ} の値は表12の通りである。

920℃で RH 拡散工程を行ったところ、 Nd 量が0.2質量%以上1.8質量%以下であり、重希土類元素 RH である Dy と Fe との比率が3:2から3:7である本発明の RH 拡散源(サンプル58から62)では、溶着がなく RH 拡散処理できることがわかる。

Dy に対する Fe の質量比が、2未満であるサンプル57では溶着が発生し、7を超えるサンプル63、64は Nd を添加したことによる H_{cJ} 向上効果が小さかった。

[0077]

[表11]

サ ン プ ル	R H 拡散源			R H に対する F e の比率	周速度 (m/s)	R H 拡散 温度 (℃)	R H 拡散 時間 (h r)	雰囲気 圧力 (P a)	ΔH _{cJ} (kA/m)	ΔB _r (T)	溶着の 有無
	Nd	Dy	Fe								
	(単位 質量%)										
57	18	52	30	1.7	0.01	920	5	2	—	—	有
58	6	54	40	2.2	0.01	920	5	2	400	0	無
59	5	45	50	3.3	0.01	920	5	2	400	0	無
60	4	36	60	5	0.01	920	5	2	400	0	無
61	3	33	64	5.8	0.01	920	5	2	320	0	無
62	3	30	67	6.7	0.01	920	5	2	290	0	無
63	3	27	70	7.8	0.01	920	5	2	190	0	無
64	2	18	80	13.3	0.01	920	5	2	140	0	無

[0078] 実験例6の結果より、本発明のRH拡散源は、RHとFeとの質量比を3 : 2から3 : 7にすることで溶着もなく、効率よくRH拡散をすることができた。

[0079] [表12]

サンプル	B_r (T)	H_{cJ} (kA/m)
57	—	—
58	1.41	1360
59	1.41	1360
60	1.41	1360
61	1.41	1280
62	1.41	1250
63	1.41	1150
64	1.41	1100

[0080] (実験例7) (NdをPrに置換、DyをTbに置換)

表13に記載の条件以外は、実験例1と同じ条件、方法にてR-T-B系焼結磁石を作製した。表13のサンプル65からサンプル68までの B_r 、 H_{cJ} の値は表14の通りである。

サンプル40のRH拡散源中のNdをPrに全部置換したところ(サンプ

ル65)、RH拡散工程による保磁力向上効果はサンプル40と同じであった。

サンプル41のRH拡散源中のNdをPrに一部置換したところ(サンプル66)、RH拡散工程による保磁力向上効果はサンプル41と同じであった。

サンプル40のRH拡散源中のDyを一部Tbに置換したところ(サンプル67)、Tbに置き換わったことによってサンプル40よりも H_{cJ} が高まった。

サンプル40のRH拡散源中のDyをTbに全部置換したところ(サンプル68)、Tbに置き換わったことによってサンプル40よりも H_{cJ} がさらに高まった。

[0081] [表13]

サンプル	RH拡散源					RHに対する Feの比率	周速度 (m/s)	RH拡散 温度 (℃)	RH拡散 時間 (hr)	雰囲気 圧力 (Pa)	ΔH _{cJ} (kJ/m)	ΔB _r (T)
	Nd	Pr	Dy	Tb	Fe							
	(単位 質量%)											
65	—	3	57	—	40	2.1	0.02	950	4	5	450	0
66	3	3	54	—	40	2.1	0.02	950	4	5	450	0
67	3	—	27	30	40	2.1	0.02	950	4	5	620	0
68	3	—	—	57	40	2.1	0.02	950	4	5	760	0

[0082] [表14]

サンプル	B_r (T)	H_{cJ} (kA/m)
65	1.41	1410
66	1.41	1410
67	1.41	1580
68	1.41	1720

[0083] (実験例8) (RH拡散処理容器の周速度の影響)

表15に記載の条件以外は、実験例1と同じ条件、方法にてR-T-B系焼結磁石を作製した。

RH拡散時のRH拡散処理容器の周速度の影響について、表15の通り周

速度を変えてRH拡散処理を行ったところ、920℃のRH拡散工程では周速度を0.01 m/sから0.50 m/sの間（サンプル69から74）で変えても、 H_{cJ} の向上効果に大きな影響がなかった。表15のサンプル69からサンプル74までの B_r 、 H_{cJ} の値は表16の通りである。

[0084] [表15]

サ ン プ ル	R H拡散源			R Hに対する F eの比率	周速度 (m/s)	R H拡散 温度 (℃)	R H拡散 時間 (h r)	雰囲気 圧力 (P a)	ΔH _ω (kA/m)	ΔB _r (T)
	Nd	Dy	Fe							
	(単位 質量%)									
69	5	55	40	2.2	0.01	920	5	1	440	0
70	5	55	40	2.2	0.05	920	5	1	440	0
71	5	55	40	2.2	0.10	920	5	1	440	0
72	5	55	40	2.2	0.20	920	5	1	440	0
73	5	55	40	2.2	0.40	920	5	1	440	0
74	5	55	40	2.2	0.50	920	5	1	440	0

[0085] [表16]

サンプル	B_r (T)	H_{cJ} (kA/m)
69	1.41	1400
70	1.41	1400
71	1.41	1400
72	1.41	1400
73	1.41	1400
74	1.41	1400

[0086] なお、本発明の拡散処理で実行可能なヒートパターンは、実験例に限定されず、他の多様なパターンを採用することができる。また、真空排気は拡散処理が完了し、焼結磁石体が十分に冷却されるまで行っても

よい。

産業上の利用可能性

[0087] 本発明によれば、高 B_r 、高 H_{cJ} のR-T-B系焼結磁石を作製することが

できる。本発明の焼結磁石は、高温下に晒されるハイブリッド車搭載用モータ等の各種モータや家電製品等に好適である。

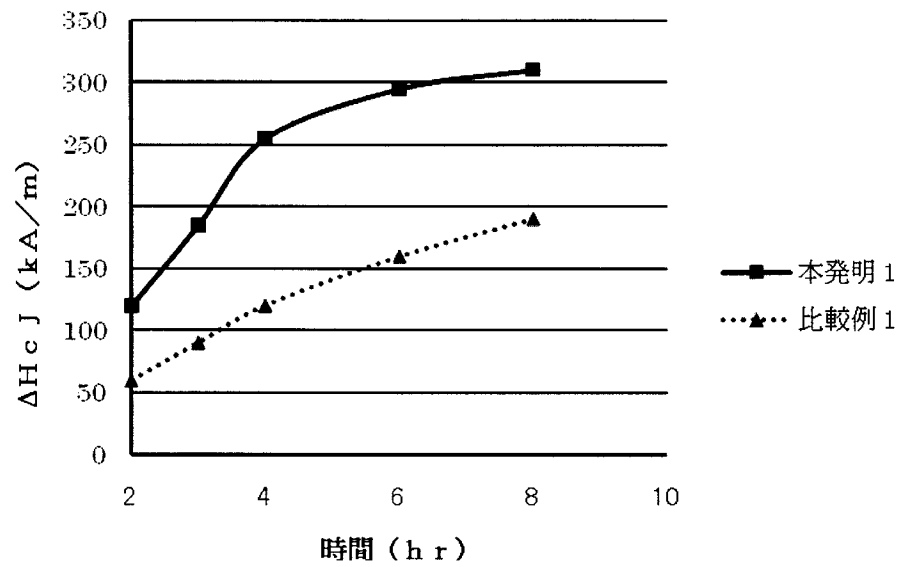
符号の説明

- [0088]
- | | |
|---|---------------|
| 1 | R－T－B系焼結磁石体 |
| 2 | R H拡散源 |
| 3 | ステンレス製の筒（処理室） |
| 4 | ヒータ |
| 5 | 蓋 |
| 6 | 排気装置 |

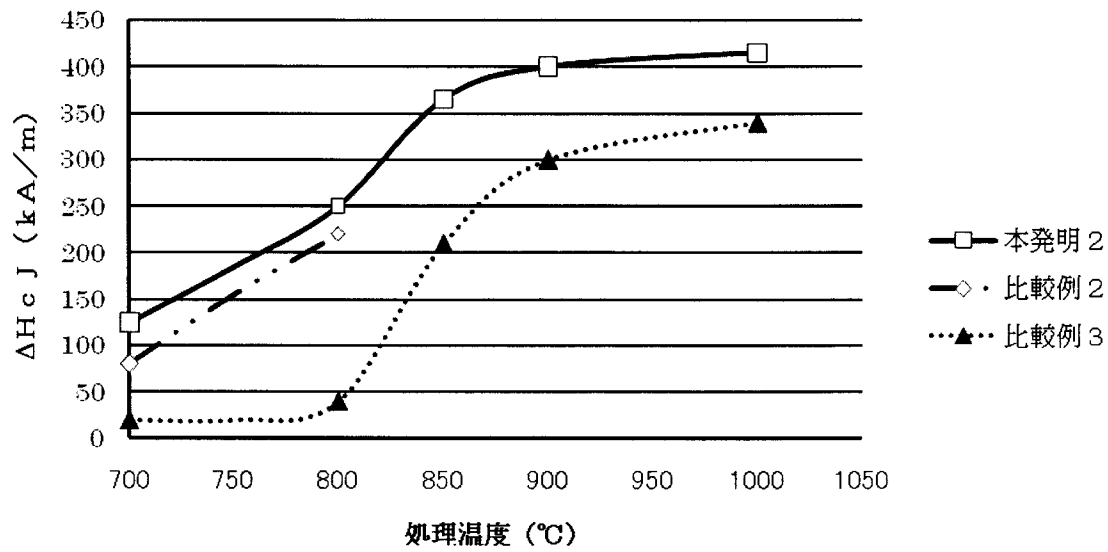
請求の範囲

- [請求項1] 0. 2質量%以上18質量%以下の軽希土類元素R_L（N_dおよびP_rの少なくとも一種からなる）、
- 40質量%以上70質量%以下のF_e、
- 残部が重希土類元素R_H（D_yおよびT_bの少なくとも一種からなる）からなる合金であり、
- かつ前記重希土類元素R_Hと前記F_eの質量比がR_H：F_e＝3：2から3：7であるR_H拡散源。
- [請求項2] R－T－B系焼結磁石体（Rは希土類元素、TはF_eを主とする遷移金属元素）を準備する工程と、
0. 2質量%以上18質量%以下の軽希土類元素R_L（N_dおよびP_rの少なくとも一種からなる）、
- 40質量%以上70質量%以下のF_e、
- 残部が重希土類元素R_H（D_yおよびT_bの少なくとも一種からなる）からなる合金であり、
- かつ前記重希土類元素R_Hと前記F_eの質量比がR_H：F_e＝3：2から3：7であるR_H拡散源を準備する工程と、
- 前記R－T－B系焼結磁石体と前記R_H拡散源とを相対的に移動可能かつ近接または接触可能に処理室内に装入し、前記R－T－B系焼結磁石体と前記R_H拡散源とを前記処理室内にて連続的または断続的に移動させながら、前記R－T－B系焼結磁石体および前記R_H拡散源を700℃以上1000℃以下の処理温度に加熱するR_H拡散工程と、
- を包含するR－T－B系焼結磁石の製造方法。

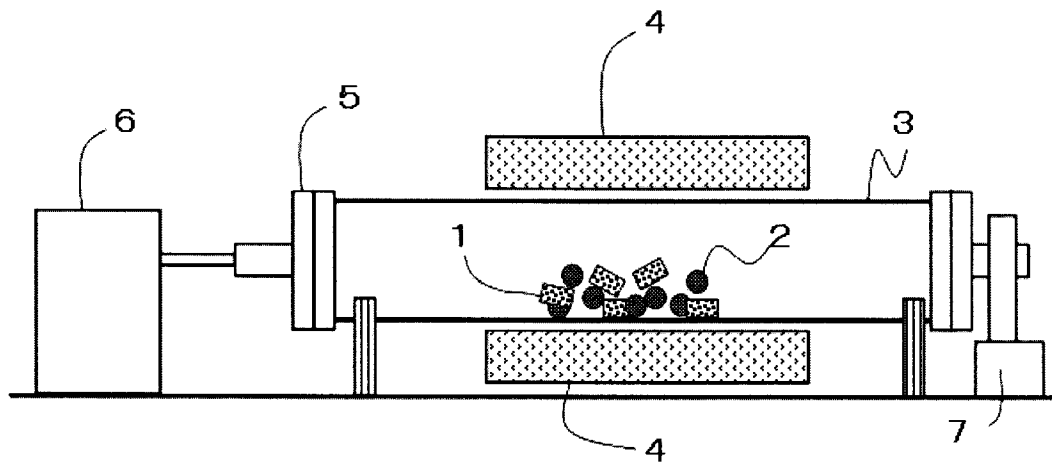
[図1]



[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/066132

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C22C38/00(2006.01)i, B22F3/00(2006.01)i, B22F3/24(2006.01)i, C22C33/02(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)

C22C38/00, B22F3/00, B22F3/24, C22C33/02, H01F41/02

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2012
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2012	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2012

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	WO 2011/007758 A1 (Hitachi Metals, Ltd.), 20 January 2011 (20.01.2011), claims; paragraph [0038]; tables 1 to 6 (Family: none)	1-2
A	WO 2007/102391 A1 (Neomax Co., Ltd.), 13 September 2007 (13.09.2007), claims; paragraph [0085]; example 8 & US 2008/0286595 A1 & EP 1993112 A1 & CN 101331566 A & KR 10-2008-0097334 A	1-2
A	JP 2010-263172 A (Daido Steel Co., Ltd.), 18 November 2010 (18.11.2010), claims; paragraphs [0069] to [0071]; tables 1 to 11 & US 2010/0003156 A1 & EP 2141710 A1 & CN 101640087 A	1-2

☒ 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
14 August, 2012 (14.08.12)

Date of mailing of the international search report
28 August, 2012 (28.08.12)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/066132

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, A	WO 2012/008426 A1 (Hitachi Metals, Ltd.), 19 January 2012 (19.01.2012), claims; paragraphs [0048] to [0053]; tables 1 to 8 (Family: none)	1-2

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C22C38/00(2006.01)i, B22F3/00(2006.01)i, B22F3/24(2006.01)i, C22C33/02(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 (I P C))

Int.Cl. C22C38/00, B22F3/00, B22F3/24, C22C33/02, 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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 2 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 2 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 2 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	WO 2011/007758 A1 (日立金属株式会社) 2011.01.20, 請求の範囲, [0038], 表 1-6 (ファミリーなし)	1-2
A	WO 2007/102391 A1 (株式会社NEOMAX) 2007.09.13, 請求の範囲, [0085], 実施例 8 & US 2008/0286595 A1 & EP 1993112 A1 & CN 101331566 A & KR 10-2008-0097334 A	1-2

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と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

1 4 . 0 8 . 2 0 1 2

国際調査報告の発送日

2 8 . 0 8 . 2 0 1 2

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 1 0 0 - 8 9 1 5
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)

田口 裕健

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 3 5

4 K

4 6 6 3

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
A	JP 2010-263172 A (大同特殊鋼株式会社) 2010.11.18, 【特許請求の範囲】 , 【0069】 - 【0071】 , 表 1-11 & US 2010/0003156 A1 & EP 2141710 A1 & CN 101640087 A	1-2
P, A	WO 2012/008426 A1 (日立金属株式会社) 2012.01.19, 請求の範囲, [0048]-[0053], 表 1-8 (ファミリーなし)	1-2