(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
2016 年 8 月 25 日(25.08.2016)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2016/133067 A1

(51) 国際特許分類:
H01F 41/02 (2006.01)　*C22C 38/00* (2006.01)
B22F 1/00 (2006.01)　*H01F 1/057* (2006.01)
B22F 3/00 (2006.01)　*H01F 1/08* (2006.01)
C22C 33/02 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2016/054386

(22) 国際出願日: 2016 年 2 月 16 日(16.02.2016)

(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 2015-028435 2015 年 2 月 17 日(17.02.2015) JP

(71) 出願人: 日立金属株式会社(**HITACHI METALS, LTD.**) [JP/JP]; 〒1088224 東京都港区港南一丁目２番７０号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 石井　倫太郎(**Ishii Rintaro**); 〒6180013 大阪府三島郡島本町江川２－１５－１７　日立金属株式会社磁性材料研究所内 Osaka (JP). 佐藤　鉄兵(**Satoh Teppei**); 〒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). 齋藤　康太(**Saitou Kouta**); 〒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). 國吉　太(**Kuniyoshi Futoshi**); 〒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).

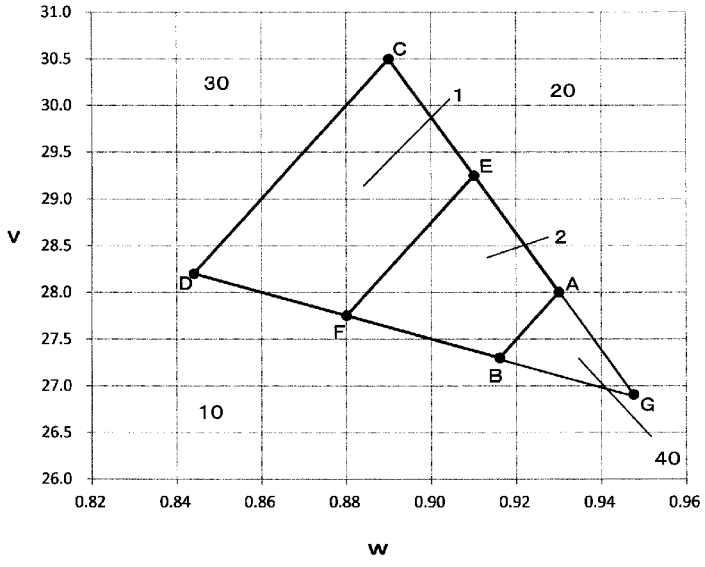
(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC,

[続葉有]

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

(54) 発明の名称 : Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の製造方法



(57) **Abstract**: [Problem] To provide a method for manufacturing an R-T-B sintered magnet having high B_r and high H_{cJ} while minimizing the Dy and Tb content. [Solution] A method for manufacturing an R-T-B sintered magnet containing R, B, Ga, Cu, and Al, and optionally M, within a specified range by a method in which an added alloy powder and a primary alloy powder are mixed, and the mixture is formed, sintered, and heat-treated, wherein the added alloy powder prepared using a raw material alloy having a specific composition and a thickness of 0.12 mm or less, and the primary alloy powder having a Ga content of 0.4 mass% or less are mixed so that the added alloy powder content is 0.5-10 mass parts per 100 mass parts of the added alloy powder and the primary alloy powder combined.

(57) 要約:

[続葉有]

WO 2016/133067 A1

MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

【課題】ＤｙやＴｂの含有量を抑制しつつ、高いＢ$_{r}$と高いＨ$_{cJ}$を有するＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の製造方法の提供。 【解決手段】添加合金粉末と主合金粉末とを混合した後、成形、焼結、熱処理する方法によって、特定の範囲で、Ｒ、Ｂ、Ｇａ、Ｃｕ、ＡｌおよびＭを含有させた、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の製造方法であって、特定組成の厚さ０．１２ｍｍ以下の原料合金を用いて作製された添加合金粉末と、Ｇａ含有量が０．４質量％以下である主合金粉末とを、添加合金粉末と主合金粉末の合計１００質量部に対して添加合金粉末を０．５～１０質量部混合する。

明　細　書

発明の名称 ： Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石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（Ｒは希土類元素のうち少なくとも一種でありＮｄを必ず含む、Ｔは遷移金属元素のうち少なくとも一種でありＦｅを必ず含む）は、永久磁石の中で最も高性能な磁石として知られており、ハードディスクドライブのボイスコイルモータ（ＶＣＭ）、電気自動車（ＥＶ、ＨＶ、ＰＨＶ）用モータ、産業機器用モータなどの各種モータや家電製品など多種多様な用途に用いられている。

[0003] Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石は、高温で保磁力$Ｈ_{cJ}$（以下、単に「$Ｈ_{cJ}$」と記載する場合がある）が低下し、不可逆熱減磁が起こる。そのため、特に電気自動車用モータに使用される場合、高温下でも高い$Ｈ_{cJ}$を維持するために、室温においてさらに高い$Ｈ_{cJ}$が要求されている。

[0004] 従来、$Ｈ_{cJ}$向上のために、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石に重希土類元素（主としてＤｙ）が多量に添加されていたが、残留磁束密度$Ｂ_r$（以下、単に「$Ｂ_r$」と記載する場合がある）が低下するという問題があった。そのため、近年、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の表面から内部に重希土類元素を拡散させて主相結晶粒の外殻部に重希土類元素を濃化して$Ｂ_r$の低下を抑制しつつ、高い$Ｈ_{cJ}$を得る方法が採られている。

[0005] しかし、Ｄｙは、産出地が限定されている等の理由から、供給が不安定である、及び価格が変動するなどの問題を有している。そのため、Ｄｙなどの重希土類元素の使用量をできるだけ少なくしてＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の$Ｈ_{cJ}$を向上させる技術が求められている。

[0006] 特許文献１には、通常のＲ－Ｔ－Ｂ系合金よりもＢ量を低くするとともに、Ａｌ、Ｇａ、Ｃｕのうちから選ばれる一種以上の金属元素Ｍを含有させる

ことによりR_2T_{17}相を生成させ、該R_2T_{17}相を原料として生成させた遷移金属リッチ相（$R_6T_{13}M$）の体積率を充分に確保することにより、Ｄｙの含有量を抑制しつつ、保磁力の高いＲ－Ｔ－Ｂ系希土類焼結磁石が得られることが記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：国際公開第２０１３／００８７５６号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] しかし、特許文献１に係るＲ－Ｔ－Ｂ系希土類焼結磁石は、従来よりもＲ量を多くＢ量を少なくしているため、主相の存在比率が低くなりＢｒが大幅に低下するという問題があった。

[0009] 本発明は、上記問題を解決するためになされたものであり、Ｄｙの含有量を抑制しつつ、高いB_rと高いH_{cJ}を有するＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の製造方法を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0010] 本発明の態様１は、下記式（１）によって表わされ、

ｕＲｗＢｘＧａｙＣｕｚＡｌｑＭ（１００－ｕ－ｗ－ｘ－ｙ－ｚ－ｑ）Ｔ （１）

（Ｒは希土類元素のうち少なくとも一種でありＮｄを必ず含む、ＴはＦｅでありＦｅの１０％以下をＣｏで置換でき、ＭはＮｂ、Ｚｒ、Ｔｉのうち少なくとも一種であり、ｕ、ｗ、ｘ、ｙ、ｚ、ｑ及び１００－ｕ－ｗ－ｘ－ｙ－ｚ－ｑは質量％を示す。）

下記式（２）～（５）を満足し、

０．２０≦ｘ≦０．７０ （２）

０．０７≦ｙ≦０．２ （３）

０．０５≦ｚ≦０．５　（４）

０≦ｑ≦０．３　（５）

Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の酸素量（質量％）をα、窒素量（質量％）をβ、炭素量（質量％）をγとしたとき、ｖ＝ｕ－（６α＋１０β＋８γ）であって、

０．４０≦ｘ≦０．７０のとき、ｖ、ｗが、下記式（６）及び（７）を満足し、

５０ｗ－１８．５≦ｖ≦５０ｗ－１４　（６）

－１２．５ｗ＋３８．７５≦ｖ≦－６２．５ｗ＋８６．１２５　（７）

０．２０≦ｘ＜０．４０のとき、ｖ、ｗが、下記式（８）及び（９）を満足し、ｘが、下記式（１０）を満足することを特徴とするＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の製造方法であって、

５０ｗ－１８．５≦ｖ≦５０ｗ－１５．５　（８）

－１２．５ｗ＋３９．１２５≦ｖ≦－６２．５ｗ＋８６．１２５　（９）

－（６２．５ｗ＋ｖ－８１．６２５）／１５＋０．５≦ｘ≦－（６２．５ｗ＋ｖ－８１．６２５）／１５＋０．８　（１０）

一種以上の添加合金粉末と一種以上の主合金粉末とを準備する工程と、

前記添加合金粉末と前記主合金粉末の合計１００質量部に対して前記添加合金粉末を０．５～１０質量部含む、前記添加合金粉末と前記主合金粉末との混合合金粉末を得る工程と、

前記混合合金粉末を成形し成形体を得る成形工程と、

前記成形体を焼結し焼結体を得る焼結工程と、

前記焼結体に熱処理を施す熱処理工程と、

を含み、

前記一種以上の主合金粉末は、Ｇａ含有量が０．４質量％以下であり、

前記一種以上の添加合金粉末は、それぞれ、下記式（１１）により表され、下記式（１２）～（１７）を満足する組成を有し、

ａＲｂＢｃＧａｄＣｕｅＡｌｆＭ（１００－ａ－ｂ－ｃ－ｄ－ｅ－ｆ）Ｔ　（１１）

（Ｒは希土類元素のうち少なくとも一種でありＮｄを必ず含む、ＴはＦｅでありＦｅの１０％以下をＣｏで置換でき、ＭはＮｂ、Ｚｒ、Ｔｉのうち少なくとも一種であり、ａ、ｂ、ｃ、ｄ、ｅ、ｆ及び１００－ａ－ｂ－ｃ－ｄ－ｅ－ｆは質量％を示す。）

３２≦ａ≦６６　（１２）

０．３≦ｂ≦０．９　（１３）

０．７≦ｃ≦１２　（１４）

０≦ｄ≦４　（１５）

０≦ｅ≦１０　（１６）

０≦ｆ≦１０　（１７）

前記一種以上の添加合金粉末は、厚さ０．１２ｍｍ以下の原料合金を用いて作製したものであることを特徴とする、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の製造方法である。

[0011] 本発明の態様２は、０．４０≦ｘ≦０．７０のとき、ｖ、ｗが、下記式（１９）及び（７）を満足し、

５０ｗ－１８．５≦ｖ≦５０ｗ－１６．２５　（１９）

－１２．５ｗ＋３８．７５≦ｖ≦－６２．５ｗ＋８６．１２５　（７）

０．２０≦ｘ＜０．４０のとき、ｖ、ｗが、下記式（２０）及び（９）を満足し、ｘが、下記式（１０）を満足することを特徴とする態様１のＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石である。

５０ｗ－１８．５≦ｖ≦５０ｗ－１７．０　（２０）

－１２．５ｗ＋３９．１２５≦ｖ≦－６２．５ｗ＋８６．１２５　（９）

－（６２．５ｗ＋ｖ－８１．６２５）／１５＋０．５≦ｘ≦－（６２．

５ｗ＋ｖ－８１．６２５）／１５＋０．８　（１０）

[0012] 態様１及び２において、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の酸素量が０．１５質量％以下であることが好ましい。

発明の効果

[0013] 本発明に係る態様により、Ｄｙの含有量を抑制しつつ、高い$Ｂ_{r}$と高い$Ｈ_{cJ}$を有するＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の製造方法を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0014] [図1]本発明の組成範囲に係る一つの態様において、Ｇａが０．４０質量％以上０．７０質量％以下の場合のｖとｗの範囲を示す説明図である。

[図2]本発明の組成範囲に係る一つの態様において、Ｇａが０．２０質量％以上０．４０質量％未満の場合のｖとｗの範囲を示す説明図である。

[図3]図１に示す範囲と図２に示す範囲の相対的な関係を示す説明図である。

[図4]図４は図１に、「＜参考例１＞」に係る試料それぞれのｖ、ｗの値をプロットした説明図である。

発明を実施するための形態

[0015] 本発明者らは、上記問題を解決するために鋭意検討を重ねた結果、前記本発明の態様１又は態様２に示す特定の範囲で、Ｒ、Ｂ、Ｇａ、Ｃｕ、ＡＩ及び必要に応じてＭを含有させることにより、高い$Ｂ_{r}$と高い$Ｈ_{cJ}$を有するＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石が得られることを見出した。そして、前記Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石を製造する態様として、一種以上の添加合金粉末と一種以上の主合金粉末を特定の混合量で混合した後成形、焼結し、熱処理する方法において、特定組成の添加合金粉末を厚さ０．１２ｍｍ以下の原料合金を用いて作製することにより、さらに高い$Ｂ_{r}$と高い$Ｈ_{cJ}$を有するＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石が得られることを見出したものである。

[0016] 前記本発明の態様により、高い$Ｂ_{r}$と高い$Ｈ_{cJ}$を有するＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石が得られるメカニズムについては未だ不明な点もある。現在までに得られている知見を基に本発明者らが考えるメカニズムについて以下に説明する。以下のメカニズムについての説明は本発明の技術的範囲を制限することを目

的とするものではないことに留意されたい。

[0017] Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石は、主相である$R_2T_{14}B$型化合物の存在比率を高めることによりB_rを向上させることができる。$R_2T_{14}B$型化合物の存在比率を高めるためには、Ｒ量、Ｔ量、Ｂ量を$R_2T_{14}B$型化合物の化学量論比に近づければよいが、$R_2T_{14}B$型化合物を形成するためのＢ量が化学量論比を下回ると、粒界に軟磁性のR_2T_{17}相が生成しH_{cJ}が急激に低下する。しかし、磁石組成にＧａが含有されていると、R_2T_{17}相の代わりにＲ－Ｔ－Ｇａ相が生成され、H_{cJ}の低下を防止することができると考えられていた。

[0018] しかし、本発明者らが検討の結果、Ｒ－Ｔ－Ｇａ相も若干の磁性を有しており、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石における粒界、特に主としてH_{cJ}に影響すると考えられる、二つの主相間に存在する粒界（以下、「二粒子粒界」と記載する場合がある）にＲ－Ｔ－Ｇａ相が多く存在すると、H_{cJ}向上の妨げになっていることが分かった。また、Ｒ－Ｔ－Ｇａ相の生成とともに、二粒子粒界にＲ－Ｇａ相及びＲ－Ｇａ－Ｃｕ相が生成されていることが分かった。そこで、本発明者らは、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の二粒子粒界にＲ－Ｇａ相及びＲ－Ｇａ－Ｃｕ相が存在することによりH_{cJ}が向上すると想定した。また、Ｒ－Ｇａ相及びＲ－Ｇａ－Ｃｕ相を生成させるため、さらにはR_2T_{17}相を無くすためにはＲ－Ｔ－Ｇａ相を生成させる必要はあるものの、高いH_{cJ}を得るにはその生成量を低く抑える必要があると想定した。そして、特に二粒子粒界において、Ｒ－Ｇａ相及びＲ－Ｇａ－Ｃｕ相を生成させつつ、Ｒ－Ｔ－Ｇａ相の生成を極力抑えることができれば、さらにH_{cJ}を向上させることができると想定した。

[0019] Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石において、Ｒ－Ｔ－Ｇａ相の生成量を低く抑えるためには、Ｒ量とＢ量とを適切な範囲にすることによってR_2T_{17}相の生成量を低くするとともに、Ｒ量とＧａ量をR_2T_{17}相の生成量に応じた最適な範囲にする必要がある。しかし、Ｒの一部はＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の製造過程において酸素、窒素、炭素と結合し消費されてしまうため、R_2T_{17}相やＲ－Ｔ－Ｇａ相に使われる実際のＲ量は製造過程で変化してしまう。そのため、Ｒ－

Ｔ－Ｇａ相を生成させつつ、その生成量を低く抑えるために、Ｒ量の調整によりＲ$_2$Ｔ$_{17}$相やＲ－Ｔ－Ｇａ相の生成量を抑制することは困難であることがわかった。本発明者らは、検討を重ねた結果、前記態様１に記載のように、Ｒ量（ｕ）からＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石における酸素量（質量％）をα、窒素量（質量％）をβ、炭素量（質量％）をγとしたとき６α＋１０β＋８γを差し引いた値（ｖ）を用いることにより、Ｒ$_2$Ｔ$_{17}$相やＲ－Ｔ－Ｇａ相の生成量を調整することが可能であることを知見した。そして、Ｒ量（ｕ）から６α＋１０β＋８γを差し引いた値（ｖ）とＢとＧａとＣｕとＡｌを特定の割合で含有させれば、高いＢ$_r$と高いＨ$_{cJ}$が得られることがわかった。これにより、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石全体において二粒子粒界にＲ－Ｇａ相及びＲ－Ｇａ－Ｃｕ相が多く存在し、さらに、Ｒ－Ｔ－Ｇａ相がほとんど存在しない二粒子粒界が多く存在する組織を得ることができると考えられる。このような組織が得られることでＲ－Ｔ－Ｇａ相によるＨ$_{cJ}$低下が抑えられ、さらに、Ｒ－Ｔ－Ｇａ相の生成量を抑えた結果、Ｒ量やＢ量を主相の存在比率を大幅に低下させない程度にすることができるため、高いＢ$_r$を得ることができると考えられる。

[0020] そして、前記Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石を製造する態様として、一種以上の添加合金粉末と一種以上の主合金粉末を特定の混合量で混合した後成形、焼結し、熱処理する方法において、特定組成の添加合金粉末を厚さ０．１２ｍｍ以下の原料合金を用いて作製し、前記添加合金粉末と、Ｇａの含有量が０．４質量％以下である主合金粉末を用いることにより、さらに高いＢ$_r$と高いＨ$_{cJ}$を有するＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石が得られることを見出した。

[0021] 本発明における添加合金粉末の組成は、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石のＲ$_2$Ｔ$_{14}$Ｂ化学量論組成よりもＲが多い。そのため原料合金作製時においてＲ$_2$Ｔ$_{14}$Ｂ化合物は必ず生成するものの、それ以外にＲＴ$_4$Ｂ$_4$相、Ｒ－Ｔ－Ｇａ相、Ｒ－Ｇａ相、Ｒ－Ｇａ－Ｃｕ相など複数の相が生成される可能性がある。一般的にＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の原料合金は液体急冷法によって作製され、冷却速度と合金の厚さには強い相関関係があり、原料合金の厚さが薄くなるにつれ

冷却速度が速くなる。通常、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の原料合金の厚さは０．２ｍｍ～０．５ｍｍ程度である。ここで発明者らは冷却速度を早くして原料合金の厚さを０．１２ｍｍ以下にしたところ、RT_4B_4相とＲ－Ｔ－Ｇａ相の生成が顕著に抑制されることを見出した。また、添加合金粉末に主合金粉末よりもＧａを多く含有することから、主合金粉末のＧａ量を抑制することができる。そのため、主合金粉末におけるＲ－Ｔ－Ｇａ相の生成も抑制される。前記添加合金粉末と前記主合金粉末とを用いることで、混合合金粉末の段階におけるＲ－Ｔ－Ｇａ相の生成量を極めて少なくすることができ、最終的に得られるＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石におけるＲ－Ｔ－Ｇａ相の生成量を(単合金の場合よりも)更に抑制することができると考えられる。

特許文献１に記載の技術では、Ｒ量に関し、酸素量、窒素量、炭素量を考慮していないため、R_2T_{17}相やＲ－Ｔ－Ｇａ相の生成量を抑制することは困難である。そもそも、特許文献１に記載の技術はＲ－Ｔ－Ｇａ相の生成を促進することによってH_{cJ}を向上させるものであり、Ｒ－Ｔ－Ｇａ相の生成量を抑制するという技術思想はない。よって、特許文献１はＲ－Ｔ－Ｇａ相の原料となるR_2T_{17}相の生成を促進するためにＢ量を従来よりも低くするとともに、Ｒ－Ｔ－Ｇａ相の生成を促進するためにＲ量を多くする必要があるため、主相の存在比率が大きく低下して高いB_rが得られていないと考えられる。さらに、特許文献１では、厚さ０．１２ｍｍ以下の原料合金を用いて作製した添加合金粉末と、主合金粉末とを混合するという技術思想もない。

[0022] ［Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石］

本発明に係るＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の態様は、

式：ｕＲｗＢｘＧａｙＣｕｚＡｌｑＭ（１００－ｕ－ｗ－ｘ－ｙ－ｚ－ｑ）Ｔ　（１）

（Ｒは希土類元素のうち少なくとも一種でありＮｄを必ず含む、ＴはＦｅでありＦｅの１０％以下をＣｏで置換でき、ＭはＮｂ、Ｚｒ、Ｔｉのうち少なくとも一種であり、ｕ、ｗ、ｘ、ｙ、ｚ、ｑ及び１００－ｕ－ｗ－ｘ－ｙ－ｚ－ｑは質量％を示す。）

によって表わされ、

０．２０≦ｘ≦０．７０　（２）

０．０７≦ｙ≦０．２　（３）

０．０５≦ｚ≦０．５　（４）

０≦ｑ≦０．３　（５）

であり、

Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の酸素量（質量％）をα、窒素量（質量％）をβ、炭素量（質量％）をγとしたとき、ｖ＝ｕ－（６α＋１０β＋８γ）であって、

０．４０≦ｘ≦０．７０のとき、ｖ、ｗが、

５０ｗ－１８．５≦ｖ≦５０ｗ－１４　（６）

－１２．５ｗ＋３８．７５≦ｖ≦－６２．５ｗ＋８６．１２５　（７）

を満足し、

０．２０≦ｘ＜０．４０のとき、ｖ、ｗが、

５０ｗ－１８．５≦ｖ≦５０ｗ－１５．５　（８）

－１２．５ｗ＋３９．１２５≦ｖ≦－６２．５ｗ＋８６．１２５　（９）

であり、かつ、

ｘが、

－（６２．５ｗ＋ｖ－８１．６２５）／１５＋０．５≦ｘ≦－（６２．５ｗ＋ｖ－８１．６２５）／１５＋０．８　（１０）

を満足することを特徴とする。

あるいは、

式：ｕＲｗＢｘＧａｙＣｕｚＡｌｑＭ（１００－ｕ－ｗ－ｘ－ｙ－ｚ－ｑ）Ｔ　（１）

（Ｒは希土類元素のうち少なくとも一種でありＮｄを必ず含む、ＴはＦｅでありＦｅの１０％以下をＣｏで置換でき、ＭはＮｂ、Ｚｒ、Ｔｉのうち少なくとも一種であり、ｕ、ｗ、ｘ、ｙ、ｚ、ｑ及び１００－ｕ－ｗ－ｘ－ｙ－ｚ－ｑは質量％を示す。）

によって表わされ、

０．２０≦ｘ≦０．７０　（２）

０．０７≦ｙ≦０．２　（３）

０．０５≦ｚ≦０．５　（４）

０≦ｑ≦０．３　（５）

であり、

Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の酸素量（質量％）をα、窒素量（質量％）をβ、炭素量（質量％）をγとしたとき、ｖ＝ｕ－（６α＋１０β＋８γ）であって、

０．４０≦ｘ≦０．７０のとき、ｖ、ｗが、

５０ｗ－１８．５≦ｖ≦５０ｗ－１６．２５　（１９）

－１２．５ｗ＋３８．７５≦ｖ≦－６２．５ｗ＋８６．１２５　（７）

を満足し、

０．２０≦ｘ＜０．４０のとき、ｖ、ｗが、

５０ｗ－１８．５≦ｖ≦５０ｗ－１７．０　（２０）

－１２．５ｗ＋３９．１２５≦ｖ≦－６２．５ｗ＋８６．１２５　（９）

であり、かつ、

ｘが、

－（６２．５ｗ＋ｖ－８１．６２５）／１５＋０．５≦ｘ≦－（６２．５ｗ＋ｖ－８１．６２５）／１５＋０．８　（１０）

を満足することを特徴とする。

[0023] 本発明のＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石は不可避的不純物を含んでよい。例えば、ジジム合金（Ｎｄ－Ｐｒ）、電解鉄、フェロボロンなどに通常含有される不可避的不純物を含有していても本発明の効果を奏することができる。不可避的不純物として例えば、Ｌａ、Ｃｅ、Ｓｍ、Ｃｒ、Ｍｎ、Ｓｉ、Ｃａ、Ｍｇなどを微量に含む。

[0024] Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石を上記式で表される組成にすることにより、高いB_rと高いH_{cJ}が得られるという効果を奏することができる。組成について以下

に詳述する。

[0025] 本発明の態様に係るＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石におけるＲは、希土類元素のうち少なくとも一種でありＮｄを必ず含む。Ｄｙ、Ｔｂ等の重希土類元素はＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の５質量％以下が好ましい。本発明は重希土類元素を使用しなくても高いB_rと高いH_{cJ}を得ることができるため、より高いH_{cJ}を求められる場合でもＲＨの添加量を削減できる。ＴはＦｅであり、質量比でＦｅの１０％以下をＣｏで置換できる。Ｂはボロンである。

[0026] 本発明に係る態様における酸素量（質量％）、窒素量（質量％）、炭素量（質量％）は、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石における含有量（すなわち、Ｒ－Ｔ－Ｂ系磁石全体の質量を１００質量％とした場合の含有量）であり、酸素量は、ガス融解－赤外線吸収法、窒素量は、ガス融解－熱伝導法、炭素量は、燃焼－赤外線吸収法、によるガス分析装置を使用して測定することができる。本発明は、Ｒ量（ｕ）から酸素、窒素、炭素と結合し消費された量を以下に説明する方法により差し引いた値（ｖ）を使用する。これによりR_2T_{17}相やＲ－Ｔ－Ｇａ相の生成量を調整することが可能となる。前記ｖは、酸素量（質量％）をα、窒素量（質量％）をβ、炭素量（質量％）をγとしてＲ量（ｕ）から$6\alpha+10\beta+8\gamma$を差し引くことにより求める。6αは、不純物として主にR_2O_3の酸化物が生成されるとして、酸素のおよそ６倍の質量のＲが酸化物として消費されることから規定したものである。10βは、主にＲＮの窒化物が生成されるとして、窒素のおよそ１０倍の質量のＲが窒化物として消費されることから規定したものである。8γは、主にR_2C_3の炭化物が生成されるとして、炭素のおよそ８倍の質量のＲが炭化物として消費されることから規定したものである。

[0027] なお、酸素量、窒素量及び炭素量は、それぞれ、上述のガス分析装置による測定により得るのに対して、式（１）に示されるＲ、Ｂ、Ｇａ、Ｃｕ、Ａｌ、Ｍのそれぞれぞれの含有量（質量％）であるｕ、ｗ、ｘ、ｙ、ｚ、ｑは、誘導結合プラズマ発光分光分析法（ＩＣＰ発光分光分析法）を用いて測定してよい。また、$100-u-w-x-y-z-q$は、ＩＣＰ発光分光分析

法により得た、ｕ、ｗ、ｘ、ｙ、ｚ及びｑの測定値を用いて計算により求めてよい。

また、式（１）は、ＩＣＰ発光分析法により測定可能であるが、酸素量、窒素量及び炭素量はＩＣＰ発光分光分析法では測定不可能である。

このように、各成分によって分析方法が異なるため、本発明に係る態様においては、式（１）で規定するｕ、ｗ、ｘ、ｙ、ｚ、ｑ及び１００－ｕ－ｗ－ｘ－ｙ－ｚ－ｑと、酸素量α、窒素量β及び炭素量γとを合計すると１００質量％を超えることが許容される。

[0028] Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の酸素量は、０．１５質量％以下が好ましい。ｖは酸素量（質量％）をα、窒素量（質量％）をβ、炭素量（質量％）をγとしてＲ量（ｕ）から６α＋１０β＋８γを差し引いた値であるため、例えば、酸素量αが多い場合は、原料合金の段階におけるＲ量を多くしておく必要がある。特に、後述する図１における本発明の１つの態様に係る領域１と２のうち、領域１は領域２と比べて相対的にｖが高いため、酸素量αが多い場合、原料合金の段階におけるＲ量が非常に多くなる恐れがある。これによって主相の存在比率が低くなりB_rが低下する恐れがあるため、特に、図１の本発明の領域１においては、酸素量は０．１５質量％以下が好ましい。

[0029] Ｇａは０．２０質量％以上０．７０質量％以下である。但し、Ｇａが、０．４０質量％以上０．７０質量％以下のときと、０．２０質量％以上０．４０質量％未満のときとでは、ｖ、ｗの範囲等が異なる。以下に詳述する。

[0030] 本発明の１つの態様ではＧａが０．４０質量％以上０．７０質量％以下の場合、ｖとｗを以下の関係とする。

５０ｗ－１８．５≦ｖ≦５０ｗ－１４　（６）

－１２．５ｗ＋３８．７５≦ｖ≦－６２．５ｗ＋８６．１２５　（７）

図１に上記式（６）及び（７）を満足するｖとｗの範囲を示す。図１中のｖは、Ｒ量（ｕ）から酸素量（質量％）をα、窒素量（質量％）をβ、炭素量（質量％）をγとして６α＋１０β＋８γを差し引いた値であり、ｗは、Ｂ量の値である。式（６）、すなわち５０ｗ－１８．５≦ｖ≦５０ｗ－１４

は図１の点Ａと点Ｂを含む直線（点Ａと点Ｂを結ぶ直線）と点Ｃと点Ｄを含む直線（点Ｃと点Ｄを結ぶ直線）に挟まれた範囲であり、式（７）、すなわち－１２．５ｗ＋３８．７５≦ｖ≦－６２．５ｗ＋８６．１２５は点Ｄと点Ｆと点Ｂと点Ｇを含む直線と点Ｃと点Ｅと点Ａと点Ｇを含む直線に挟まれた範囲である。そしてこの両方を満たす領域１と２（点Ａと点Ｂと点Ｄと点Ｃで囲まれる領域）が本発明の１つの態様に係る範囲である。ｖとｗを領域１と２の範囲にすることにより、高い$Ｂ_r$と高い$Ｈ_{cJ}$を得ることができる。領域１と２の範囲からはずれた領域１０（点Ｄと点Ｆと点Ｂと点Ｇを含む直線から図中下の領域）は、ｗに対してｖが少なすぎるためＲ－Ｔ－Ｇａ相の生成量が少なくなり、$Ｒ_2Ｔ_{17}$相を無くすことができなかったり、Ｒ－Ｇａ相及びＲ－Ｇａ－Ｃｕ相の生成量が少なくなると考えられる。これにより、高い$Ｈ_{cJ}$が得られない。逆に、領域１と２の範囲から外れた領域２０（点Ｃと点Ｅと点Ａと点Ｇを含む直線から図中上の領域）は、ｗに対してｖが多すぎるため、相対的にＦｅ量が不足する。Ｆｅ量が不足するとＲ及びＢが余ることになり、その結果Ｒ－Ｔ－Ｇａ相が生成されずに$Ｒ_1Ｆｅ_4Ｂ_4$相が生成され易くなると考えられる。これによりＲ－Ｇａ相及びＲ－Ｇａ－Ｃｕ相の生成量も少なくなり、高い$Ｈ_{cJ}$が得られない。さらに、領域１と２の範囲からはずれた領域３０（点Ｃと点Ｄを含む直線から図中上の領域）は、ｖが多すぎ且つｗが少なすぎるため、Ｒ－Ｔ－Ｇａ相やＲ－Ｇａ相及びＲ－Ｇａ－Ｃｕ相は生成されるが、主相の存在比率が低くなり、高い$Ｂ_r$が得られない。さらに領域１と２の範囲からはずれた領域４０（点Ｃと点Ｄと点Ｇで囲まれる領域から領域１と２を除いた領域）は、Ｒが少なく且つＢが多すぎるため、主相の存在比率は高いが、Ｒ－Ｔ－Ｇａ相がほとんど生成されず、Ｒ－Ｇａ相及びＲ－Ｇａ－Ｃｕ相の生成量も少なくなるため高い$Ｈ_{cJ}$が得られない。

[0031] 本発明の１つの態様では、Ｇａが０．２０質量％以上０．４０質量％未満の場合、ｖとｗを以下の関係とする。

５０ｗ－１８．５≦ｖ≦５０ｗ－１５．５ （８）

－１２．５ｗ＋３９．１２５≦ｖ≦－６２．５ｗ＋８６．１２５ （９）

図２に式（８）及び（９）を満足するｖとｗの本発明の範囲を示す。式（８）、すなわち５０ｗ－１８．５≦ｖ≦５０ｗ－１５．５は図２の点Ａと点Ｌを含む直線と点Ｊと点Ｋを含む直線に挟まれた範囲であり、式（９）、すなわち－１２．５ｗ＋３９．１２５≦ｖ≦－６２．５ｗ＋８６．１２５は点Ｋと点Ｉと点Ｌを含む直線と点Ｊと点Ｈと点Ａを含む直線に挟まれた範囲である。そしてこの両方を満たす領域３と４（点Ａと点Ｌと点Ｋと点Ｊで囲まれる領域）が本発明の１つの態様に係る範囲である。参考までに、図３に図１（Ｇａが０．４０質量％以上０．７０質量％以下の場合）と図２（Ｇａが０．２０質量％以上０．４０質量％未満の場合）の位置関係（図１に示す範囲と図２に示す範囲の相対的な関係）を示す。ｘ（Ｇａ）が０．２０質量％以上０．４０質量％未満であっても、上記範囲（点Ａと点Ｌと点Ｋと点Ｊで囲まれる領域３と４）であれば、後述するｖ、ｗに応じた適切なｘを設定することで高いB_rと高いH_{cJ}を得ることができる。

[0032] ｘが０．２０質量％以上０．４０質量％未満の場合、本発明の１つの態様では、ｖ、ｗに応じてｘを以下の式（１０）の範囲にする。

－（６２．５ｗ＋ｖ－８１．６２５）／１５＋０．５≦ｘ≦－（６２．５ｗ＋ｖ－８１．６２５）／１５＋０．８　（１０）

ｘをｖとｗに応じた上記式（１０）の範囲にすることにより、高い磁気特性を得るために最低限必要なＲ－Ｔ－Ｇａ相を生成させることができる。ｘが上記範囲未満であると、Ｒ－Ｔ－Ｇａ相の生成量が少なすぎるためH_{cJ}が低下する恐れがある。逆に、ｘが上記範囲を超えると不要なＧａが存在することになり、主相の存在比率が低下してB_rが低下する恐れがある。

[0033] 本発明はＧａが０．４０質量％以上０．７０質量％以下の場合、更に好ましくは、ｖとｗを以下の関係とする。

５０ｗ－１８．５≦ｖ≦５０ｗ－１６．２５　（１９）

－１２．５ｗ＋３８．７５≦ｖ≦－６２．５ｗ＋８６．１２５　（７）

図１に上記式（１９）及び（７）を満足するｖとｗの範囲を示す。式（１９）、すなわち５０ｗ－１８．５≦ｖ≦５０ｗ－１６．２５は点Ａと点Ｂを

含む直線と点Ｅと点Ｆを含む直線に挟まれた範囲であり、式（７）、すなわち－１２．５ｗ＋３８．７５≦ｖ≦－６２．５ｗ＋８６．１２５は点Ｄと点Ｆと点Ｂと点Ｇを含む直線と点Ｃと点Ｅと点Ａと点Ｇを含む直線に挟まれた範囲である。そしてこの両方を満たす領域２（点Ａと点Ｂと点Ｆと点Ｅで囲まれる領域）が本発明の範囲である。上記範囲とすることにより、Ｒ－Ｔ－Ｇａ相の生成量を確保しつつ、ｖを低く、ｗを高くすることができるため、主相の存在比率が低くならず、より高いB_rを得ることができる。

[0034] Ｇａが０．２０質量％以上０．４０質量％未満の場合、更に好ましくは、ｘとｗを以下の式（２０）及び（９）の関係とする。

５０ｗ－１８．５≦ｖ≦５０ｗ－１７．０ （２０）

－１２．５ｗ＋３９．１２５≦ｖ≦－６２．５ｗ＋８６．１２５ （９）

図２に上記式（２０）及び（９）を満足する範囲を示す。式（２０）、すなわち５０ｗ－１８．５≦ｖ≦５０ｗ－１７．０は点Ａと点Ｌを含む直線と点Ｈと点Ｉを含む直線に挟まれた範囲であり、式（９）、すなわち－１２．５ｗ＋３９．１２５≦ｖ≦－６２．５ｗ＋８６．１２５は点Ｋと点Ｉと点Ｌを含む直線と点Ｊと点Ｈと点Ａを含む直線に挟まれた範囲である。そしてこの両方を満たす領域４（点Ａと点Ｌと点Ｉと点Ｈで囲まれる領域）が本発明１つの態様に係る範囲である。参考までに、図３に図１（Ｇａが０．４０質量％以上０．７０質量％以下）と図２（Ｇａが０．２０質量％以上０．４０質量％未満）の範囲の相対的な位置関係を示す。上記範囲（点Ａと点Ｌと点Ｉと点Ｈで囲まれる領域４）にして、かつ、上述したようにｘを－（６２．５ｗ＋ｖ－８１．６２５）／１５＋０．５≦ｘ≦－（６２．５ｗ＋ｖ－８１．６２５）／１５＋０．８の範囲とすることにより、Ｒ－Ｔ－Ｇａ相の生成量を確保しつつ、ｖを低く、ｗを高くすることができるため、主相の存在比率が低くならず、より高いB_rを得ることができる。

[0035] Ｃｕは０．０７質量％以上０．２質量％以下含有させることが好ましい。Ｃｕの含有量が０．０７質量％未満であると、二粒子粒界にＲ－Ｇａ相及びＲ－Ｇａ－Ｃｕ相が生成され難くなり、高いH_{cJ}が得られない恐れがある。

また、０．２質量％を超えると、Ｃｕの含有量が多すぎるため、焼結ができなくなる恐れがある。Ｃｕの含有量は、０．０８質量％以上０．１５質量％以下がさらに好ましい。

[0036] 更に、通常含有される程度のＡｌ（０．０５質量％以上０．５質量％以下）を含有する。Ａｌを含有することにより、H_{cJ}を向上させることができる。Ａｌは通常、製造工程で不可避的不純物として０．０２質量％以上含有されるが、不可避的不純物で含有される量と意図的に添加した量の合計で０．５質量％以下含有してもよい。

[0037] また、一般的に、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石において、Ｎｂ、Ｚｒ、Ｔｉを含有することにより焼結時における結晶粒の異常粒成長が抑制されることが知られている。本発明においても、Ｎｂ、Ｚｒ、Ｔｉを合計で０．３質量％以下含有してもよい。Ｎｂ、Ｚｒ、Ｔｉの含有量が合計で０．３質量％を超えると不要なＮｂ、Ｚｒ、Ｔｉが存在することにより、主相の体積比率が低下してB_rが低下する恐れがある。

[0038] 本発明の１つの態様において、Ｒ－Ｔ－Ｇａ相とは、Ｒ：１５質量％以上６５質量％以下、Ｔ：２０質量％以上８０質量％以下、Ｇａ：２質量％以上２０質量％以下を含むものであって、例えば$R_6Fe_{13}Ga$化合物が挙げられる。$R_6Fe_{13}Ga$化合物はその状態によっては$R_6T_{13-\delta}Ga_{1+\delta}$化合物になっている場合がある。なお、Ｒ－Ｔ－Ｇａ相は、不可避的不純物としてＡｌやＣｕ、Ｓｉが混入する場合があるため、例えば$R_6Fe_{13}(Ga_{1-x-y-z}Cu_xAl_ySi_z)$化合物になっている場合がある。また、Ｒ－Ｇａ相とは、Ｒ：７０質量％以上９５質量％以下、Ｇａ：５質量％以上３０質量％以下、Ｔ（Ｆｅ）：２０質量％以下（０を含む）を含むものであって、例えばR_3Ga化合物が挙げられる。さらに、Ｒ－Ｇａ－Ｃｕ相とは、前記Ｒ－Ｇａ相のＧａの一部がＣｕで置換されたものであって、例えば$R_3(Ga,Cu)_1$化合物が挙げられる。

[0039] 態様１又は態様２に示す組成とすることにより、公知の製造方法を用いて作製しても高いB_rと高いH_{cJ}を有するＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石が得られる。そ

して、上述したように厚さ０．１２ｍｍ以下の原料合金を用いて作製した特定組成を有する添加合金粉末と、Ｇａの含有量が０．４質量％以下である主合金粉末を用いることにより、さらに高いＢ$_{r}$と高いＨ$_{cJ}$を有するＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石を得ることができる。

以下に参考まで、公知の製造方法の一例を説明し、次に本発明の製造方法について説明する。

[0040] 公知の製造方法

公知の製造方法は、合金粉末を得る工程、成形工程、焼結工程、熱処理工程からなる。以下、各工程について説明する。

[0041] （１）合金粉末を得る工程

所定の組成となるようにそれぞれの元素の金属又は合金を準備し、これらをストリップキャスティング法等を用いて厚み０．２～０．５ｍｍ程度のフレーク状の原料合金を製造する。得られたフレーク状の原料合金を水素粉砕し、粗粉砕粉のサイズを例えば１．０ｍｍ以下とする。次に、粗粉砕粉をジェットミル等により微粉砕することで、例えば粒径Ｄ５０（気流分散式によるレーザー回折法で得られた体積基準メジアン径）が３～７μｍの微粉砕粉（単合金粉末）を得る。なお、ジェットミル粉砕前の粗粉砕粉、ジェットミル粉砕中及びジェットミル粉砕後の合金粉末に助剤として公知の潤滑剤を使用してもよい。

[0042] （２）成形工程

得られた合金粉末（単合金粉末又は混合合金粉末）を用いて磁界中成形を行い、成形体を得る。磁界中成形は、金型のキャビティー内に乾燥した合金粉末を挿入し、磁界を印加しながら成形する乾式成形法、金型のキャビティー内にスラリー（分散媒中に合金粉末が分散している）を注入し、スラリーの分散媒を排出しながら成形する湿式成形法を含む既知の任意の磁界中成形方法を用いてよい。

[0043] （３）焼結工程

成形体を焼結することにより焼結体を得る。成形体の焼結は公知の方法を

用いることができる。なお、焼結時の雰囲気による酸化を防止するために、焼結は真空雰囲気中又は不活性ガス雰囲気中で行うことが好ましい。不活性ガスは、ヘリウム、アルゴン等を用いることが好ましい。

[0044] （４）熱処理工程

得られた焼結体に対し、磁気特性を向上させることを目的とした熱処理を行うことが好ましい。熱処理温度、熱処理時間などは公知の条件を採用することができる。得られた焼結磁石に磁石寸法の調整のため、研削などの機械加工を施してもよい。その場合、熱処理は機械加工前でも機械加工後でもよい。さらに、得られた焼結磁石に、表面処理を施してもよい。表面処理は、公知の表面処理で良く、例えばＡｌ蒸着や電気Ｎｉめっきや樹脂塗装などの表面処理を行うことができる。

[0045] 本発明の製造方法

［一種以上の添加合金粉末と一種以上の主合金粉末とを準備する工程］

まず、一種以上の添加合金粉末と一種以上の主合金粉末とを準備する。

［添加合金粉末］

添加合金粉末は、以下に示す組成の厚さ０．１２ｍｍ以下の原料合金を用いて作製する。ここで厚さ０．１２ｍｍ以下の原料合金とは、得られた原料合金の厚さ方向における寸法を１００個測定した平均値である。

厚さ０．１２ｍｍ以下の原料合金は、例えば以下の方法を用いて作製する。例えば特開平２－１７９８０３に示されるようなメルトスピニング法があげられる。この方法では、底部に内径１ｍｍ以下のノズルから、回転する冷却ロール上に合金溶湯を噴射し、これを急冷することによって薄帯状の凝固合金を作製する。この方法では、溶解炉内で溶融した合金溶湯を、底部に噴射ノズルを有した容器内に注ぎ入れた後、容器内の溶湯に一定の圧力を加えることによって溶湯をノズルから回転ロールの表面に向けて噴射させている。このように圧力をかけながらノズルを介して溶湯を噴射させることで、比較的速い流速を有する溶湯の流れを回転ロールの最上部付近におよそ垂直に噴射させることができる。噴射された溶湯は、比較的高速で回転する冷却ロ

ールの表面上で湯溜まり（パドル）を形成し、このパドルのロール接触面が急冷され、薄帯状の急冷合金が作製される。

また、別の方法として特開２００４－１２２２３０に示されるような、直管型のストリップキャスト法があげられる。この方法では、傾斜した溶湯案内面の上で溶湯を整流化し、先端部における開口面積が比較的広い管状孔を通して溶湯の供給を行うことができるため、溶湯に対してバックプレッシャーを印加しない状態（溶湯の運動を引き起こす力は重力のみの状態）であるにもかかわらず、大きな運動量で溶湯をロール表面に供給できるため、メルトスピニング法に近い冷却速度にて合金を冷却可能である。

[0046] 添加合金粉末の組成は、

式：ａＲｂＢｃＧａｄＣｕｅＡｌｆＭ（１００－ａ－ｂ－ｃ－ｄ－ｅ－ｆ）Ｔ （１１）

によって表わされ、

３２≦ａ≦６６ （１２）

０．３≦ｂ≦０．９ （１３）

０．７≦ｃ≦１２ （１４）

０≦ｄ≦４ （１５）

０≦ｅ≦１０ （１６）

０≦ｆ≦１０ （１７） 残部Ｔ（Ｒは希土類元素の少なくとも一種であり、ＴはＦｅでありＦｅの１０質量％以下をＣｏで置換でき、ＭはＮｂ、Ｚｒ、Ｔｉのうち少なくとも一種であり、ａ、ｂ、ｃ、ｄ、ｅ、ｆ及び１００－ａ－ｂ－ｃ－ｄ－ｅ－ｆは質量％を示す。）によって表わされる組成を有する。

添加合金粉末は$Ｒ_2Ｔ_{14}Ｂ$化学量論組成よりも相対的にＲが多い。そのため、原料合金の厚さを０．１２ｍｍ以下とすることにより$ＲＴ_4Ｂ_4$相とＲ－Ｔ－Ｇａ相の生成が抑制された、$Ｒ_2Ｔ_{14}Ｂ$相、Ｒ－Ｇａ相、Ｒ－Ｇａ－Ｃｕ相を主とする原料合金が得られる。

添加合金粉末は不可避的不純物を含んでよい。例えば、ジジム合金（Ｎｄ－

Ｐｒ）、電解鉄、フェロボロンなどに通常含有される不可避的不純物を含有していても本発明の効果を奏することができる。不可避的不純物として例えば、Ｌａ、Ｃｅ、Ｓｍ、Ｃｒ、Ｍｎ、Ｓｉ、Ｃａ、Ｍｇなどを微量に含む。

Ｒ（ａ）は３２質量％未満であると$R_2T_{14}B$化学量論組成に対して相対的にＲ量が少なすぎるため、Ｒ－Ｇａ相が生成され難くなる恐れがあり、６６質量％を超えるとＲ量が多すぎるため、酸化の問題が発生して磁気特性の低下や発火の危険等を招き生産上問題となる恐れがある。

Ｂ（ｂ）は０．３質量％未満であると$R_2T_{14}B$化学量論組成に対して相対的にＢ量が少なすぎるため、Ｒ－Ｔ－Ｇａ相が生成され易くなる恐れがある。０．９質量％を超えると$R_2T_{14}B$化学量論組成に対して相対的にＢ量が多すぎるため、$R_1T_4B_4$相が生成され易くなる恐れがある。

Ｇａ（ｃ）が０．７質量％未満であると、Ｒ－Ｇａ相が生成され難くなる恐れがあり、１２質量％を超えると、Ｇａが偏析して高いH_{cJ}を有するＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石が得られない恐れがある。

添加合金粉末は、主合金粉末よりもＧａ含有量が高い。添加合金粉末のＧａ含有量が主合金粉末よりも低いと、主合金粉末におけるＲ－Ｔ－Ｇａ相の生成を抑制できない恐れがあるからである。なお、添加合金粉末は一種の合金粉末でもよいし、組成が異なる二種以上の合金粉末から構成されていてもよい。二種以上の添加合金粉末を使用するときは、全ての添加合金粉末を上記組成の範囲内とする。

[0047] ［主合金粉末］

主合金粉末のＧａ含有量は０．４質量％以下であり、前記添加合金粉末と混合することで本発明の組成を有するＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石となるように調整した任意の組成で主合金粉末を作製する。主合金粉末は、主合金粉末のＧａ含有量が０．４質量％を超えると、主合金粉末におけるＲ－Ｔ－Ｇａ相の生成を抑制できない恐れがある。なお、主合金粉末は一種の合金粉末でもよいし、組成が異なる二種以上の合金粉末から構成されていてもよい。

[0048] ［混合合金粉末を得る工程］

上述した組成を有する一種以上の添加合金粉末と一種以上の主合金粉末とを混合し、混合合金粉末を得る。前記混合合金粉末における添加合金粉末の混合量は、前記添加合金粉末と前記主合金粉末の合計１００質量部に対して０．５～１０質量部の範囲である。添加合金粉末の混合量を前記範囲内にして作製したＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石は、より高いB_rと高いH_{cJ}を得ることができる。添加合金粉末の混合量が０．５質量部未満であると、添加合金粉末が少なすぎるため本発明の効果を得ることができない恐れがあり、１０質量部を超えると、配向度が低下してB_rが低下する恐れがある。

[0049] 前記混合合金粉末を成形し、前記成形体を焼結し、焼結後の焼結体に対し熱処理を行う。成形工程、焼結工程、熱処理工程に関しては、上述した公知の製造方法と同じである。

[0050] 得られたＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石に磁石寸法の調整のため、研削などの機械加工を施してもよい。その場合、高温熱処理工程及び低温熱処理工程は機械加工前でも機械加工後でもよい。さらに、得られた焼結磁石に、表面処理を施してもよい。表面処理は、既知の表面処理で良く、例えばＡｌ蒸着や電気Ｎｉめっきや樹脂塗装などの表面処理を行うことができる。

実施例

[0051] 本発明を実験例によりさらに詳細に説明するが、本発明はそれらに限定されるものではない。また、まず下記に詳述する参考例１、２において、前記態様１又は態様２に示す組成のＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石を公知の製造方法で作製した場合を説明する。前記態様１又は態様２に示す組成とすれば公知の製造方法で作製しても、高いB_rと高いH_{cJ}を得ることができる。次に、上述した本発明の製造方法で作製した場合を実施例として説明する。これにより、さらに高いB_rと高いH_{cJ}を得ることができる。

[0052] ＜参考例１＞

Ｎｄメタル、Ｐｒメタル、Ｄｙメタル、Ｔｂメタル、フェロボロン合金、電解Ｃｏ、Ａｌメタル、Ｃｕメタル、Ｇａメタル、フェロニオブ合金、フェロジルコニウム合金及び電解鉄を用いて（メタルはいずれも純度９９％以上

）、表１の組成となるように配合し、それらの原料を溶解してストリップキャスト法により鋳造し、厚み０．３～０．４ｍｍのフレーク状の原料合金を得た。得られたフレーク状の原料合金に水素加圧雰囲気で水素脆化させた後、５５０℃まで真空中で加熱、冷却する脱水素処理を施し、粗粉砕粉を得た。次に、得られた粗粉砕粉に、潤滑剤としてステアリン酸亜鉛を粗粉砕粉１００質量部に対して０．０４質量部添加、混合した後、ジェットミル装置を用いて、窒素気流中で乾式粉砕し、粒径Ｄ５０が４μｍの微粉砕粉（合金粉末）を得た。なお、粉砕時に窒素ガスに大気を混合することにより粉砕時の窒素ガス中の酸素濃度を調節した。大気を混合しない場合の粉砕時の窒素ガス中の酸素濃度は５０ｐｐｍ以下であり、大気を混合することで窒素ガス中の酸素濃度を最大５０００ｐｐｍまで増加させ、様々な酸素量の微粉砕粉を作製した。なお、粒径Ｄ５０は、気流分散式によるレーザー回折法で得られた体積基準メジアン径である。また、表１におけるＯ（酸素量）はガス融解－赤外線吸収法、Ｎ（窒素量）はガス融解－熱伝導法、Ｃ（炭素量）は燃焼－赤外線吸収法、によるガス分析装置を使用して測定した。

[0053] 前記微粉砕粉に、潤滑剤としてステアリン酸亜鉛を微粉砕粉１００質量部に対して０．０５質量部添加、混合した後、磁界中で成形し、成形体を得た。なお、成形装置には、磁界印加方向と加圧方向とが直交する、いわゆる直角磁界成形装置（横磁界成形装置）を用いた。

[0054] 得られた成形体を、真空中、１０２０℃で４時間焼結した後急冷し、Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石を得た。焼結磁石の密度は７．５Ｍｇ／ｍ^{3}以上であった。得られた焼結磁石の成分を求めるために、Ｎｄ、Ｐｒ、Ｄｙ、Ｔｂ、Ｂ、Ｃｏ、Ａｌ、Ｃｕ、Ｇａ、Ｎｂ及びＺｒの含有量をＩＣＰ発光分光分析法により測定した結果を表１に示す。そして、残部（１００質量％から測定により得たＮｄ、Ｐｒ、Ｄｙ、Ｔｂ、Ｂ、Ｃｏ、Ａｌ、Ｃｕ、Ｇａ、Ｎｂ及びＺｒの含有量を引いて得た残り）をＦｅの含有量とした。さらにガス分析結果（Ｏ、Ｎ及びＣ）を表１に示す。焼結体に、８００℃で２時間保持した後室温まで冷却し、次いで５００℃で２時間保持した後室温まで冷却する熱処理を

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

[0055]

[表1]

No.	R－T－B系焼結磁石の分析結果（質量%）															組成
	Nd	Pr	Dy	Tb	B	Co	Al	Cu	Ga	Nb	Zr	Fe	O	N	C	
01	22.7	7.4	0.0	0.0	0.910	0.5	0.10	0.08	0.47	0.00	0.00	bal.	0.10	0.05	0.10	○
02	22.7	7.4	0.0	0.0	0.910	0.5	0.05	0.08	0.47	0.00	0.00	bal.	0.10	0.05	0.10	○
03	22.7	7.4	0.0	0.0	0.910	2.0	0.10	0.08	0.47	0.00	0.00	bal.	0.10	0.05	0.10	○
04	22.7	7.4	0.0	0.0	0.910	0.5	0.05	0.08	0.42	0.10	0.00	bal.	0.10	0.05	0.10	○
05	22.7	7.4	0.0	0.0	0.910	0.5	0.05	0.08	0.41	0.00	0.10	bal.	0.10	0.05	0.10	○
06	22.7	7.4	0.0	0.0	0.910	0.5	0.05	0.08	0.40	0.03	0.05	bal.	0.10	0.05	0.10	○
07	22.7	7.4	0.0	0.0	0.910	0.5	0.10	0.08	0.43	0.00	0.00	bal.	0.10	0.05	0.10	○
08	22.7	7.4	0.0	0.0	0.905	0.5	0.10	0.08	0.26	0.00	0.00	bal.	0.10	0.05	0.10	×
09	22.7	7.4	0.0	0.0	0.910	0.5	0.10	0.08	0.70	0.00	0.00	bal.	0.10	0.05	0.10	○
10	22.7	7.4	0.0	0.0	0.910	0.0	0.10	0.08	0.47	0.00	0.00	bal.	0.10	0.05	0.10	○
11	23.0	7.6	0.0	0.0	0.910	0.5	0.10	0.12	0.46	0.00	0.00	bal.	0.39	0.01	0.08	○
12	23.0	7.6	0.0	0.0	0.907	0.5	0.10	0.12	0.48	0.00	0.00	bal.	0.44	0.01	0.08	×
13	23.0	7.6	0.0	0.0	0.905	0.5	0.10	0.12	0.46	0.00	0.00	bal.	0.08	0.04	0.09	○
14	23.1	7.6	0.0	0.0	0.937	0.5	0.10	0.13	0.47	0.00	0.00	bal.	0.08	0.04	0.09	×
15	23.1	7.6	0.0	0.0	0.920	0.5	0.10	0.12	0.47	0.00	0.00	bal.	0.08	0.05	0.09	×
16	23.1	7.6	0.0	0.0	0.878	0.5	0.10	0.12	0.48	0.00	0.00	bal.	0.41	0.01	0.08	×
17	23.0	7.7	0.0	0.0	0.930	0.5	0.10	0.13	0.48	0.00	0.00	bal.	0.41	0.01	0.08	×
18	23.0	7.7	0.0	0.0	0.897	0.5	0.10	0.12	0.47	0.00	0.00	bal.	0.40	0.01	0.08	○
19	23.1	7.6	0.0	0.0	0.937	0.5	0.10	0.14	0.50	0.00	0.00	bal.	0.24	0.03	0.08	×
20	23.1	7.7	0.0	0.0	0.887	0.5	0.10	0.12	0.47	0.00	0.00	bal.	0.39	0.01	0.07	○
21	23.1	7.7	0.0	0.0	0.894	0.5	0.10	0.12	0.50	0.00	0.00	bal.	0.07	0.05	0.09	○
22	23.1	7.7	0.0	0.0	0.860	0.5	0.10	0.12	0.47	0.00	0.00	bal.	0.39	0.01	0.09	×
23	23.1	7.7	0.0	0.0	0.937	0.5	0.10	0.13	0.10	0.00	0.00	bal.	0.43	0.01	0.08	×
24	23.4	7.4	0.0	0.0	0.974	0.5	0.10	0.15	0.49	0.00	0.00	bal.	0.08	0.04	0.09	×
25	23.2	7.7	0.0	0.0	0.850	0.5	0.10	0.16	0.51	0.00	0.00	bal.	0.24	0.03	0.09	○
26	23.2	7.6	0.0	0.0	0.918	0.5	0.10	0.13	0.49	0.00	0.00	bal.	0.23	0.03	0.08	○
27	23.2	7.7	0.0	0.0	0.850	0.5	0.10	0.12	0.52	0.00	0.00	bal.	0.08	0.06	0.09	×
28	23.2	7.7	0.0	0.0	0.875	0.5	0.10	0.20	0.55	0.00	0.00	bal.	0.08	0.04	0.09	○
29	23.3	7.6	0.0	0.0	0.890	0.5	0.10	0.15	0.45	0.00	0.00	bal.	0.22	0.04	0.08	○
30	23.4	7.6	0.0	0.0	0.896	0.5	0.10	0.15	0.10	0.00	0.00	bal.	0.08	0.05	0.10	×
31	23.4	7.6	0.0	0.0	0.904	0.5	0.10	0.16	0.49	0.00	0.00	bal.	0.07	0.05	0.11	○
32	23.3	7.9	0.0	0.0	0.830	0.5	0.20	0.11	0.15	0.00	0.00	bal.	0.10	0.05	0.09	×
33	23.3	7.9	0.0	0.0	0.830	0.5	0.20	0.11	0.15	0.00	0.00	bal.	0.40	0.02	0.09	×
34	23.6	7.7	0.0	0.0	0.883	0.5	0.10	0.15	0.48	0.00	0.00	bal.	0.08	0.05	0.11	○
35	23.7	7.6	0.0	0.0	0.910	0.5	0.10	0.15	0.51	0.00	0.00	bal.	0.09	0.05	0.10	×
36	23.6	7.7	0.0	0.0	0.891	0.5	0.10	0.15	0.94	0.00	0.00	bal.	0.08	0.05	0.10	×
37	23.6	7.8	0.0	0.0	0.890	0.5	0.10	0.16	0.50	0.00	0.00	bal.	0.07	0.03	0.07	○
38	23.7	7.7	0.0	0.0	0.910	0.5	0.10	0.15	0.51	0.00	0.00	bal.	0.08	0.04	0.08	×
39	24.0	8.0	0.0	0.0	0.870	0.5	0.20	0.05	0.57	0.00	0.00	bal.	0.10	0.05	0.09	×
40	24.0	8.0	0.0	0.0	0.870	0.5	0.20	0.05	0.57	0.00	0.00	bal.	0.43	0.02	0.09	×
41	24.0	8.0	0.0	0.0	0.860	0.5	0.20	0.30	0.57	0.00	0.00	bal.	0.10	0.05	0.09	×
42	24.0	8.0	0.0	0.0	0.860	0.5	0.20	0.30	0.57	0.00	0.00	bal.	0.41	0.02	0.09	×
43	24.2	8.1	0.0	0.0	0.900	0.5	0.10	0.14	0.45	0.00	0.00	bal.	0.09	0.05	0.11	×
44	24.3	8.2	0.0	0.0	0.883	0.5	0.10	0.13	0.46	0.00	0.00	bal.	0.10	0.05	0.11	×
45	24.5	8.3	0.0	0.0	0.937	0.5	0.10	0.13	0.10	0.00	0.00	bal.	0.43	0.01	0.08	×
46	23.0	7.6	0.0	0.0	0.923	0.5	0.10	0.12	0.48	0.00	0.00	bal.	0.39	0.01	0.08	×
47	21.3	7.0	2.0	0.0	0.940	0.5	0.10	0.13	0.10	0.00	0.00	bal.	0.10	0.05	0.10	×
48	21.5	7.1	0.0	2.0	0.905	0.5	0.10	0.12	0.46	0.00	0.00	bal.	0.39	0.01	0.08	○
49	21.5	7.1	2.0	0.0	0.905	0.5	0.10	0.12	0.46	0.00	0.00	bal.	0.39	0.01	0.08	○
50	21.5	7.2	2.0	0.0	0.944	0.5	0.10	0.13	0.10	0.00	0.00	bal.	0.40	0.01	0.08	×
51	21.5	7.2	2.0	0.0	0.890	0.5	0.10	0.13	0.10	0.00	0.00	bal.	0.40	0.01	0.08	×
52	20.7	6.7	4.0	0.0	0.940	0.5	0.10	0.12	0.10	0.00	0.00	bal.	0.40	0.01	0.08	×
53	20.7	6.7	4.0	0.0	0.894	0.5	0.10	0.12	0.46	0.00	0.00	bal.	0.40	0.01	0.08	○
54	20.7	6.7	3.0	0.0	0.905	0.5	0.10	0.08	0.44	0.00	0.00	bal.	0.10	0.05	0.10	○
55	20.7	6.7	3.0	0.0	0.905	0.5	0.10	0.08	0.26	0.00	0.00	bal.	0.10	0.05	0.10	×
56	30.3	0.0	0.0	0.0	0.910	0.5	0.05	0.08	0.45	0.00	0.00	bal.	0.10	0.05	0.10	○
57	21.5	7.1	1.0	1.0	0.905	0.5	0.10	0.12	0.46	0.00	0.00	bal.	0.39	0.01	0.08	○
58	22.1	7.2	0.0	0.0	0.850	0.5	0.10	0.13	0.54	0.00	0.00	bal.	0.07	0.01	0.06	○
59	21.6	7.2	0.0	0.0	0.889	0.5	0.10	0.11	0.46	0.00	0.00	bal.	0.08	0.01	0.06	○
60	21.6	7.1	0.0	0.0	0.910	0.5	0.10	0.11	0.43	0.00	0.00	bal.	0.08	0.01	0.07	○
61	22.4	7.3	0.0	0.0	0.900	0.5	0.10	0.11	0.38	0.00	0.09	bal.	0.09	0.06	0.07	○

[0056]

[表2]

No.	u	v	w	領域	Br(T)	HcJ(kA/m)	組成
01	30.1	28.27	0.910	2	1.396	1502	
02	30.1	28.27	0.910	2	1.411	1454	○
03	30.1	28.27	0.910	2	1.401	1500	○
04	30.1	28.27	0.910	2	1.407	1484	○
05	30.1	28.27	0.910	2	1.408	1473	○
06	30.1	28.27	0.910	2	1.409	1480	○
07	30.1	28.27	0.910	2	1.400	1498	○
08	30.1	28.27	0.905	2	1.401	1280	×
09	30.1	28.27	0.910	2	1.396	1502	○
10	30.1	28.27	0.910	2	1.395	1510	○
11	30.6	27.45	0.910	2	1.361	1500	○
12	30.6	27.21	0.907	10	1.363	1213	×
13	30.6	29.02	0.905	2	1.376	1460	○
14	30.7	29.04	0.937	20	1.398	1275	×
15	30.7	28.94	0.920	20	1.390	1279	×
16	30.7	27.50	0.878	10	1.345	1145	×
17	30.7	27.54	0.930	40	1.396	1212	×
18	30.7	27.51	0.897	2	1.361	1350	○
19	30.7	28.36	0.937	20	1.397	1249	×
20	30.8	27.76	0.887	2	1.371	1340	○
21	30.8	29.16	0.894	1	1.360	1525	○
22	30.8	27.67	0.860	10	1.322	1010	×
23	30.8	27.52	0.937	20	1.405	1180	×
24	30.8	29.23	0.974	20	1.402	1200	×
25	30.9	28.44	0.850	1	1.347	1380	○
26	30.8	28.55	0.918	2	1.385	1490	○
27	30.9	29.11	0.850	30	1.320	1600	×
28	30.9	29.25	0.875	1	1.350	1548	○
29	30.9	28.58	0.890	1	1.360	1470	○
30	31.0	29.27	0.896	1	1.400	1272	×
31	31.0	29.33	0.904	1	1.389	1428	○
32	31.2	29.36	0.830	30	1.315	1550	×
33	31.2	27.86	0.830	10	1.310	1510	×
34	31.3	29.43	0.883	1	1.371	1580	○
35	31.3	29.48	0.910	20	1.403	1250	×
36	31.3	29.57	0.891	1	1.323	1540	×
37	31.4	30.09	0.890	1	1.370	1573	○
38	31.4	29.88	0.910	20	1.403	1270	×
39	32.0	30.23	0.870	30	1.320	1460	×
40	32.0	28.55	0.870	1	1.315	1420	×
41	32.0	30.24	0.860	30	1.310	1480	×
42	32.0	28.68	0.860	1	1.305	1440	×
43	32.3	30.47	0.900	20	1.326	1358	×
44	32.5	30.48	0.883	30	1.323	1455	×
45	32.8	29.52	0.937	20	1.363	1261	×
46	30.6	27.43	0.923	40	1.381	1280	×
47	30.3	28.44	0.940	20	1.389	1492	×
48	30.6	27.52	0.905	2	1.317	1960	○
49	30.6	27.55	0.905	2	1.317	1800	○
50	30.7	27.62	0.944	20	1.360	1490	×
51	30.7	27.62	0.890	10	1.357	1272	×
52	31.4	27.78	0.940	20	1.324	1730	×
53	31.4	27.78	0.894	2	1.280	2051	○
54	30.4	28.50	0.905	2	1.328	1978	○
55	30.4	28.50	0.905	2	1.329	1760	×
56	30.3	28.40	0.910	2	1.420	1400	○
57	30.6	26.52	0.905	2	1.317	1880	○
58	29.3	28.30	0.850	1	1.387	1410	○
59	28.8	27.73	0.889	2	1.415	1400	○
60	28.7	27.57	0.910	2	1.401	1525	○
61	29.7	27.97	0.900	2	1.411	1440	○

[0057] 表２におけるｕは、表１におけるＮｄ、Ｐｒ、Ｄｙ、Ｔｂの量を合計した値であり、ｖは、表１における酸素量（質量％）をα、窒素量（質量％）をβ、炭素量（質量％）をγとしたとき６α＋１０β＋８γをｕから差し引いた値である。ｗは、表１のＢ量をそのまま転記した。なお、表１におけるＮｄ、Ｐｒ、Ｄｙ、Ｔｂの量は、それぞれ表記されている数値以下の数値を省略しているため、ｕおよびｖの数値は表１の表記されている数値から求められる値と若干異なっている場合がある。以下に記載される表のｕおよびｖの数値も同様である。また、表２における領域は、ｖとｗが図１中のどの位置にあるか示したものであり、図１中の１の領域にある場合は１と、図１中の２の領域にある場合は２と記載した。さらに、図１中の１、２の領域以外にある場合はその位置に応じて１０、２０、３０、４０のいずれかを記載した。例えばＮｏ．０１は、ｖが２８．２７質量％であり、ｗが０．９１０質量％であるため図１中の２の領域である。そのため２と記載した。また、Ｎｏ．２１は、ｖが２９．１６質量％であり、ｗが０．８９４質量％であるため図１中の１の領域である。そのため１と記載した。さらに、Ｎｏ．４７は、ｖが２８．４４質量％であり、ｗが０．９４０質量％であるため図１中の２０の領域である。よって２０と記載した。また、表１、表２における組成の欄は、前記態様１又は態様２に示すＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の組成（以下、単に「態様１又は２に示す組成」と記載する場合がある）範囲内である場合を「○」と、組成範囲外である場合を「×」と記載した。

図４は、図１に態様１又は２に示す組成範囲内である参考例試料と組成範囲外である参考例試料、それぞれのｖ、ｗの値をプロットした説明図である。図４から組成範囲内である試料が領域１又は２の範囲内にあり、組成範囲外である試料が領域１及び２の範囲外にあることが容易に理解できる。

[0058] 上述したように、態様１又は２に示す組成は、ｘが０．４０質量％以上０．７０質量％以下の場合、ｖとｗを以下の割合で含有させる。

５０ｗ－１８．５≦ｖ≦５０ｗ－１４　（６）

－１２．５ｗ＋３８．７５≦ｖ≦－６２．５ｗ＋８６．１２５　（７）

好ましくは、

５０ｗ－１８．５≦ｖ≦５０ｗ－１６．２５　（１９）

－１２．５ｗ＋３８．７５≦ｖ≦－６２．５ｗ＋８６．１２５　（７）

当該割合で含有させた場合の前記ｖとｗの範囲が図１中の１と２又は２の領域に相当する。

[0059] 表２に示す様に、原料合金にＤｙ、Ｔｂを含有していない場合、ｖとｗの関係が態様１又は２に示す組成領域（図１中の１と２の領域）に位置し、かつ、０．４０≦ｘ（Ｇａ）≦０．７０、０．０７≦ｙ（Ｃｕ）≦０．２、０．０５≦ｚ（Ａｌ）≦０．５、０≦ｑ（Ｍ）≦０．３である参考例試料（試料Ｎｏ．４８、４９、５３、５４、５７以外で組成が「〇」である参考例試料）は、いずれもB_r≧１．３４０Ｔ、かつ、H_{cJ}≧１３００ｋＡ／ｍの高い磁気特性を有している。これに対し、Ｇａ、Ｃｕ、Ａｌの量が態様１又は２に示す組成範囲内であっても、ｖとｗが態様１又は２に示す組成範囲外（図１中の１又は２以外の領域）となっている参考例試料（例えば、試料Ｎｏ．１２、１６、２２、３５）及び、ｖとｗが態様１又は２に示す組成範囲内（図１中の１又は２の領域）であってもＧａ、Ｃｕの量が態様１又は２に示す組成範囲外である参考例試料（例えば、試料Ｎｏ．０８、３０、３６、４０、４２）は、B_r≧１．３４０Ｔ、かつ、H_{cJ}≧１３００ｋＡ／ｍの高い磁気特性が得られていない。特に、態様１又は２に示す組成範囲内である試料Ｎｏ．０７とＧａの含有量が試料Ｎｏ．０７と比べて０．１７質量％低い以外は同じ組成である試料Ｎｏ．０８から明らかなように、ｖとｗが態様１又は２に示す組成範囲内であっても、Ｇａが態様１又は２に示す組成範囲外であるとH_{cJ}が大きく低下している。なお、試料Ｎｏ．０８は、Ｇａが０．２０質量％以上０．４０質量％未満の場合における態様１又は２に示すＧａの組成範囲（－（６２．５ｗ＋ｖ－８１．６２５）／１５＋０．５≦ｘ（Ｇａ）≦－（６２．５ｗ＋ｖ－８１．６２５）／１５＋０．８）から外れるため、高い磁気特性を得るために最低限必要なＲ－Ｔ－Ｇａ相を生成させることができず、そのため、H_{cJ}が大きく低下していると考えられる。

[0060] 原料合金にＤｙ、Ｔｂを含有する場合はＤｙ、Ｔｂの含有量に応じてB_rが低下して、H_{cJ}が向上する。この場合、B_rはＤｙやＴｂを１質量％含有すると０．０２４Ｔ程度減少する。H_{cJ}はＤｙが１質量％含有されると１６０ｋＡ／ｍ程度、Ｔｂが１質量％含有されると２４０ｋＡ／ｍ程度上昇する。

そのため、態様１又は２に示す組成範囲内は、上述したように原料合金にＤｙ、Ｔｂを含有しない場合は$B_r \geqq 1.340$Ｔ、かつ、$H_{cJ} \geqq 1300$ｋＡ／ｍの磁気特性を有しているので、Ｄｙ、Ｔｂの含有量に応じてB_r（Ｔ）≧１．３４０－０．０２４［Ｄｙ］－０．０２４［Ｔｂ］、かつ、H_{cJ}（ｋＡ／ｍ）≧１３００＋１６０［Ｄｙ］＋２４０［Ｔｂ］の磁気特性を有することになる。なお、［Ｄｙ］［Ｔｂ］は、それぞれＤｙ、Ｔｂの含有量（質量％）を示す。

[0061] 表２に示すように、態様１又は２に示す組成範囲内で原料合金にＤｙ、Ｔｂを含有している参考例試料（試料Ｎｏ．４８、４９、５３、５４、５７）は、いずれもB_r（Ｔ）≧１．３４０－０．０２４［Ｄｙ］－０．０２４［Ｔｂ］、かつ、H_{cJ}（ｋＡ／ｍ）≧１３００＋１６０［Ｄｙ］＋２４０［Ｔｂ］の高い磁気特性を有している。これに対し、態様１又は２に示す組成範囲外で原料合金にＤｙ、Ｔｂを含有している参考例試料（試料Ｎｏ．４７、５０、５１、５２、５５）は、いずれもB_r（Ｔ）≧１．３４０－０．０２４［Ｄｙ］－０．０２４［Ｔｂ］、かつ、H_{cJ}（ｋＡ／ｍ）≧１３００＋１６０［Ｄｙ］＋２４０［Ｔｂ］の高い磁気特性を有していない。特に、態様１又は２に示す組成範囲内である試料Ｎｏ．５４と、Ｇａの含有量が試料Ｎｏ．５４に比べて０．１８質量％低い以外は同じ組成である試料Ｎｏ．５５とから明らかなように、ｖとｗが態様１又は２に示す組成範囲内であっても、Ｇａが態様１又は２に示す組成範囲外であるとH_{cJ}が大きく低下している。なお、試料Ｎｏ．５５は、Ｇａが０．２０質量％以上０．４０質量％未満の場合における態様１又は２に示すＧａの組成範囲（－（６２．５ｗ＋ｖ－８１．６２５）／１５＋０．５≦ｘ（Ｇａ）≦－（６２．５ｗ＋ｖ－８１．６２５）／１５＋０．８）から外れるため、高い磁気特性を得るために最低限必

要なＲ－Ｔ－Ｇａ相を生成させることができず、そのため、H_{cJ}が大きく低下していると考えられる。

[0062] さらに、表２に示すように、態様１又は２に示す組成範囲内において領域の１（図１中の１の領域）よりも領域の２（図１中の２の領域）の方が更に高いB_r（原料合金にＤｙ、Ｔｂを含有しない場合$B_r \geqq 1.360T$、Ｄｙ、Ｔｂを含有する場合、$B_r \geqq 1.360T - 0.024[Dy] - 0.024[Tb]$）を得ることができる。なお、［Ｄｙ］［Ｔｂ］は、それぞれＤｙ、Ｔｂの含有量（質量％）を示す。

[0063] ＜参考例２＞

Ｎｄメタル、Ｐｒメタル、Ｄｙメタル、フェロボロン合金、電解Ｃｏ、Ａｌメタル、Ｃｕメタル、Ｇａメタル、フェロニオブ合金、フェロジルコニウム合金及び電解鉄を用いて（メタルはいずれも純度９９％以上）、表３の組成となるように配合し、参考例１と同様の方法により粒径Ｄ５０が４μｍの微粉砕粉（合金粉末）を得た。なお、粉砕時に窒素ガスに大気を混合することにより粉砕時の窒素ガス中の酸素濃度を調節した。大気を混合しない場合の粉砕時の窒素ガス中の酸素濃度は５０ｐｐｍ以下であり、大気を混合することで窒素ガス中の酸素濃度を最大１５００ｐｐｍまで増加させ、様々な酸素量の微粉砕粉を作製した。なお、粒径Ｄ５０は、気流分散式によるレーザー回折法で得られた体積基準メジアン径である。また、表３におけるＯ（酸素量）、Ｎ（窒素量）、Ｃ（炭素量）は参考例１と同様の方法で測定した。

[0064] 前記微粉砕粉に、潤滑剤としてステアリン酸亜鉛を微粉砕粉１００質量部に対して０．０５質量部添加、混合した後、参考例１と同様の方法で、成形体を作製し、さらに参考例１と同様の方法で焼結、熱処理を行った。熱処理後の焼結磁石に機械加工を施し、参考例１と同様の方法で各試料のB_r及びH_{cJ}を測定した。測定結果を表４に示す。

[0065]

[表3]

No.	R－T－B系焼結磁石の分析結果（質量%）															組成
	Nd	Pr	Dy	Tb	B	Co	Al	Cu	Ga	Nb	Zr	Fe	O	N	C	
70	23.4	7.7	0.0	0.0	0.904	0.5	0.10	0.16	0.27	0.00	0.00	bal.	0.07	0.05	0.11	○
71	23.0	7.6	0.0	0.0	0.910	0.5	0.10	0.12	0.27	0.00	0.00	bal.	0.08	0.04	0.09	○
72	22.7	7.4	0.0	0.0	0.918	0.5	0.10	0.13	0.27	0.00	0.00	bal.	0.13	0.03	0.08	○
73	22.7	7.4	0.0	0.0	0.880	0.9	0.10	0.15	0.39	0.00	0.00	bal.	0.11	0.05	0.09	○
74	22.7	7.4	0.0	0.0	0.892	0.9	0.10	0.15	0.39	0.00	0.00	bal.	0.12	0.05	0.09	○
75	22.7	7.4	0.0	0.0	0.910	0.9	0.10	0.15	0.31	0.00	0.00	bal.	0.15	0.05	0.11	○
76	22.7	7.4	0.0	0.0	0.924	0.9	0.10	0.15	0.28	0.00	0.00	bal.	0.15	0.05	0.11	○
77	22.7	7.4	0.0	0.0	0.890	0.5	0.10	0.15	0.35	0.00	0.00	bal.	0.10	0.04	0.08	○
78	22.7	7.4	0.0	0.0	0.910	0.5	0.10	0.08	0.32	0.00	0.00	bal.	0.10	0.05	0.10	○
79	22.7	7.4	0.0	0.0	0.910	0.5	0.05	0.08	0.32	0.00	0.00	bal.	0.10	0.05	0.10	○
80	22.7	7.4	0.0	0.0	0.910	0.0	0.10	0.08	0.32	0.00	0.00	bal.	0.10	0.05	0.10	○
81	20.7	6.7	3.0	0.0	0.905	0.5	0.10	0.08	0.34	0.00	0.00	bal.	0.10	0.05	0.10	○
82	22.7	7.4	0.0	0.0	0.910	2.0	0.10	0.08	0.32	0.00	0.00	bal.	0.10	0.05	0.10	○
83	22.7	7.4	0.0	0.0	0.910	0.5	0.05	0.08	0.32	0.10	0.00	bal.	0.10	0.05	0.10	○
84	22.7	7.4	0.0	0.0	0.910	0.5	0.05	0.08	0.33	0.00	0.10	bal.	0.10	0.05	0.10	○
85	22.7	7.4	0.0	0.0	0.910	0.5	0.05	0.08	0.33	0.03	0.05	bal.	0.10	0.05	0.10	○
86	30.3	0.0	0.0	0.0	0.910	0.5	0.05	0.08	0.33	0.00	0.00	bal.	0.10	0.05	0.10	○
87	23.6	7.8	0.0	0.0	0.890	0.5	0.10	0.16	0.32	0.00	0.00	bal.	0.07	0.03	0.07	×
88	23.2	7.7	0.0	0.0	0.875	0.5	0.10	0.20	0.38	0.00	0.00	bal.	0.08	0.04	0.09	×
89	22.7	7.4	0.0	0.0	0.905	0.5	0.10	0.08	0.26	0.00	0.00	bal.	0.10	0.05	0.10	×

[0066] [表4]

No.	u	v	w	領域	B_r(T)	H_{cJ}(kA/m)	組成
70	31.1	29.33	0.904	3	1.394	1431	○
71	30.6	29.02	0.910	3	1.381	1463	○
72	30.2	28.49	0.918	4	1.390	1493	○
73	30.2	28.29	0.880	3	1.373	1582	○
74	30.2	28.23	0.892	3	1.377	1527	○
75	30.1	27.82	0.910	4	1.421	1438	○
76	30.2	27.89	0.924	4	1.430	1422	○
77	30.2	28.57	0.890	3	1.378	1473	○
78	30.2	28.27	0.910	4	1.401	1505	○
79	30.2	28.27	0.910	4	1.416	1457	○
80	30.2	28.27	0.910	4	1.400	1513	○
81	30.4	28.50	0.905	3	1.333	1981	○
82	30.2	28.27	0.910	4	1.406	1503	○
83	30.2	28.27	0.910	4	1.412	1487	○
84	30.2	28.27	0.910	4	1.413	1476	○
85	30.2	28.27	0.910	4	1.414	1483	○
86	30.3	28.40	0.910	4	1.425	1403	○
87	31.4	30.09	0.890	/	1.373	1568	×
88	30.9	29.25	0.875	/	1.359	1539	×
89	30.1	28.27	0.905	4	1.401	1280	×

[0067] 表４におけるｕは、表３におけるＮｄ、Ｐｒ、Ｄｙ、Ｔｂの量（質量%）を合計した値であり、ｖは、表３における酸素量（質量%）をα、窒素量（質量%）をβ、炭素量（質量%）をγとしたとき６α＋１０β＋８γをｕか

ら差し引いた値である。ｗは、表３のＢ量をそのまま転記した。表４における領域は、ｖとｗが図２中のどの位置にあるか示したものであり、図２中の３の領域にある場合は３と、図２中の４の領域にある場合は４と記載した。さらに、図２中の３、４の領域以外にある場合は「／」と記載した。また、表３、表４における組成の欄は、態様１又は２に示す組成範囲内である場合を「○」と、組成範囲外である場合を「×」と記載した。

[0068] 表４に示す様に、原料合金にＤｙ、Ｔｂを含有していない場合、０．２０≦ｘ（Ｇａ）＜０．４０のとき、ｖとｗの関係が態様１又は２に示す組成領域（図２中の３と４の領域）に位置し、かつ、－（６２．５ｗ＋ｖ－８１．６２５）／１５＋０．５≦ｘ≦－（６２．５ｗ＋ｖ－８１．６２５）／１５＋０．８、０．０７≦ｙ（Ｃｕ）≦０．２、０．０５≦ｚ（ＡＩ）≦０．５、０≦ｑ≦０．３である参考例試料（試料Ｎｏ．８１以外で組成が「○」である参考例試料）は、いずれもB_r≧１．３７７Ｔ、かつ、H_{cJ}≧１４０３ｋＡ／ｍであり、参考例１の態様１又は２に示す組成範囲内の試料（図１、２における組成が「○」の試料）よりも少ないＧａの量（参考例１は、ｘ（Ｇａ）０．４０質量％以上）に係らず、参考例１と比較して同等以上の高い磁気特性を有している。これに対し、Ｇａ、Ｃｕ、ＡＩの量が態様１又は２に示す組成範囲内であっても、ｖとｗが態様１又は２に示す組成範囲外（図２中の３又は４以外の領域）である試料Ｎｏ．８７、８８及び、ｖとｗが態様１又は２に示す組成範囲内（図２中の３又は４の領域）であってもＧａが態様１又は２に示す組成範囲外である比較例試料Ｎｏ．８９は、B_r≧１．３７７Ｔ、かつ、H_{cJ}≧１４０３ｋＡ／ｍの高い磁気特性が得られていない。

[0069] ＜実施例１＞

Ｎｄメタル、Ｐｒメタル、Ｄｙメタル、フェロボロン合金、電解Ｃｏ、ＡＩメタル、Ｃｕメタル、Ｇａメタル、フェロニオブ合金、フェロジルコニウム合金、Ｔｉメタル及び電解鉄を原料として（メタルはいずれも純度９９％以上）、表５に示す組成となるように原料を配合・溶解して、主合金粉末の原料合金及び添加合金粉末の原料合金を作製した。主合金粉末の原料合金は

ストリップキャスト法により鋳造し、厚み０．２～０．５ｍｍのフレーク状の原料合金を得た。また、添加合金粉末の原料合金は、上述したメルトスピニング法により作製した。具体的には、８０ｋＰａのアルゴン雰囲気としたチャンバー内にて、オリフィス径０．８ｍｍの石英ノズル内で原料を高周波溶解した後、１００ｋＰａのバックプレッシャーを印加して、溶湯をＣｕロール上へ噴射した。Ｃｕロール周速度は組成に応じて１０～４０ｍ／ｓの範囲で行った。得られた原料合金の厚さ方向における寸法を１００個測定して平均値を求めた。平均値は組成に応じて０．０７５～０．０８４ｍｍの間であった。得られた原料合金（主合金粉末に使用する原料合金および添加合金粉末に使用する原料合金）に対して水素加圧雰囲気で水素脆化させた後、５５０℃まで真空中で加熱、冷却する脱水素処理を施し、粗粉砕粉を得た。得られた添加合金の粗粉砕粉末と主合金の粗粉砕粉末を表６に示す混合量でＶ型混合機に投入して混合し、混合合金粉末を得た。得られた混合合金粉末に潤滑剤としてステアリン酸亜鉛を粗粉砕粉１００質量部に対して０．０４質量部添加、混合した後、ジェットミル装置を用いて、窒素気流中で乾式粉砕し、粒径Ｄ５０が４μｍの微粉砕粉となした混合合金粉末を得た。なお、粉砕時に窒素ガスに大気を混合することにより粉砕時の窒素ガス中の酸素濃度を調節した。大気を混合しない場合の粉砕時の窒素ガス中の酸素濃度は５０ｐｐｍ以下であり、大気を混合することで窒素ガス中の酸素濃度を最大５５００ｐｐｍまで増加させ、様々な酸素量の微粉砕粉を作製した。なお、粒径Ｄ５０は、気流分散式によるレーザー回折法で得られた体積基準メジアン径である。また、表７におけるＯ（酸素量）、Ｎ（窒素量）、Ｃ（炭素量）は参考例１と同様の方法で測定した。

[0070] 添加合金粉末と主合金粉末を混合して得られた微粉砕粉（混合合金粉末）に、潤滑剤としてステアリン酸亜鉛を微粉砕粉１００質量部に対して０．０５質量部添加、混合した後、参考例１と同様の方法で、成形体を作製し、さらに参考例１と同様の方法で焼結、熱処理を行った。得られたＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の組成を表７に示す。熱処理後の焼結磁石に機械加工を施し、参考

例１と同様の方法で各試料のＢ$_r$及びＨ$_{cJ}$を測定した。測定結果を表８に示す。

[0071] 表７における試料Ｎｏ．１００のＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石は、表５のＡ合金粉末（添加合金粉末）とＡ－１合金粉末（主合金粉末）を表６に示す混合量で混合した混合合金粉末を用いて作製したものであり、前記添加合金粉末（Ａ合金粉末）と前記主合金粉末（Ａ－１合金粉末）の合計１００質量部に対して前記添加合金粉末（Ａ合金粉末）を４質量部含む、前記添加合金粉末と前記主合金粉末との混合合金粉末を用いている。試料Ｎｏ．１０１～１３５も同様の方法で記載している。また、表８におけるｕは、表７におけるＮｄ、Ｐｒ、Ｄｙの量を合計した値であり、ｖは、表７における酸素量（質量％）をα、窒素量（質量％）をβ、炭素量（質量％）をγとしたとき$6\alpha+10\beta+8\gamma$をｕから差し引いた値である。ｗは、表７のＢ量をそのまま転記した。また、表７における領域は、ｖとｗが図１中のどの位置にあるか示したものであり、図１中の１の領域にある場合は１と、図１中の２の領域にある場合は２と記載した。さらに、図１中の１、２の領域以外にある場合はその位置に応じて１０、２０、３０、４０のいずれかを記載した。

[0072]

[表5]

合金粉末	合金の種類	合金粉末の分析結果(質量%)												
		Nd	Pr	Dy	Tb	B	Co	Al	Cu	Ga	Nb	Ti	Zr	Fe
A	添加合金粉末	42.5	13.9	0.0	0.0	0.500	0.00	0.10	0.15	6.79	0.00	0.00	0.00	bal.
A-1	主合金粉末	22.6	7.4	0.0	0.0	0.920	1.04	0.10	0.16	0.23	0.00	0.00	0.00	bal.
A-2	主合金粉末	22.4	7.5	0.0	0.0	0.889	0.83	0.10	0.20	0.29	0.00	0.00	0.00	bal.
A-3	主合金粉末	22.8	7.5	0.0	0.0	0.905	0.83	0.10	0.16	0.24	0.00	0.00	0.00	bal.
A-4	主合金粉末	21.9	7.2	0.0	0.0	0.926	0.83	0.10	0.08	0.21	0.00	0.00	0.00	bal.
A-5	主合金粉末	21.9	7.2	0.0	0.0	0.926	0.94	0.05	0.08	0.21	0.00	0.00	0.00	bal.
A-6	主合金粉末	21.9	7.2	0.0	0.0	0.926	0.83	0.10	0.08	0.17	0.00	0.00	0.00	bal.
A-7	主合金粉末	21.9	7.2	0.0	0.0	0.926	1.56	0.10	0.08	0.21	0.00	0.00	0.00	bal.
A-8	主合金粉末	21.9	7.2	0.0	0.0	0.926	0.83	0.05	0.08	0.15	0.10	0.00	0.00	bal.
A-9	主合金粉末	21.9	7.2	0.0	0.0	0.926	0.83	0.05	0.08	0.14	0.00	0.00	0.10	bal.
A-10	主合金粉末	21.9	7.2	0.0	0.0	0.926	0.83	0.05	0.08	0.13	0.03	0.00	0.05	bal.
A-11	主合金粉末	21.9	7.2	0.0	0.0	0.934	0.83	0.10	0.13	0.00	0.00	0.00	0.00	bal.
A-12	主合金粉末	21.9	7.2	0.0	0.0	0.895	0.83	0.10	0.15	0.13	0.00	0.00	0.00	bal.
A-13	主合金粉末	21.9	7.2	0.0	0.0	0.907	0.83	0.10	0.15	0.12	0.00	0.00	0.00	bal.
A-14	主合金粉末	21.9	7.1	0.0	0.0	0.926	0.83	0.10	0.15	0.04	0.00	0.00	0.00	bal.
A-15	主合金粉末	21.9	7.2	0.0	0.0	0.941	0.83	0.10	0.15	0.01	0.00	0.00	0.00	bal.
A-16	主合金粉末	21.9	7.2	0.0	0.0	0.905	0.83	0.10	0.15	0.08	0.00	0.00	0.00	bal.
A-17	主合金粉末	19.8	6.4	3.1	0.0	0.921	0.83	0.10	0.08	0.07	0.00	0.00	0.00	bal.
A-18	主合金粉末	21.3	6.9	0.0	0.0	0.864	0.83	0.10	0.13	0.28	0.00	0.00	0.00	bal.
A-19	主合金粉末	20.7	6.9	0.0	0.0	0.906	0.83	0.10	0.11	0.20	0.00	0.00	0.00	bal.
A-20	主合金粉末	20.7	6.8	0.0	0.0	0.926	0.83	0.10	0.11	0.17	0.00	0.00	0.00	bal.
A-21	主合金粉末	21.5	7.0	0.0	0.0	0.916	0.83	0.10	0.11	0.11	0.00	0.00	0.09	bal.
B	添加合金粉末	42.5	13.9	0.0	0.0	0.375	0.80	0.10	0.15	6.79	0.00	3.00	0.00	bal.
B-1	主合金粉末	21.9	7.1	0.0	0.0	0.931	0.80	0.10	0.15	0.04	0.00	0.03	0.00	bal.
C	添加合金粉末	42.5	13.9	0.0	0.0	0.375	0.80	0.10	0.15	6.79	0.00	0.00	2.00	bal.
C-1	主合金粉末	21.9	7.1	0.0	0.0	0.931	0.80	0.10	0.15	0.04	0.00	0.00	0.04	bal.
D	添加合金粉末	42.5	13.9	0.0	0.0	0.375	0.80	0.10	0.15	6.79	0.50	0.00	0.00	bal.
D-1	主合金粉末	21.9	7.1	0.0	0.0	0.931	0.80	0.10	0.15	0.04	0.00	0.00	0.10	bal.
E	添加合金粉末	49.2	16.1	0.0	0.0	0.350	1.50	3.80	1.40	11.30	0.00	0.00	0.00	bal.
E-1	主合金粉末	22.5	7.3	0.0	0.0	0.916	0.99	0.01	0.07	0.29	0.03	0.00	0.05	bal.
F	添加合金粉末	24.0	8.0	0.0	0.0	0.900	2.00	0.10	0.10	2.00	0.00	0.00	0.00	bal.
F-1	主合金粉末	22.6	7.4	0.0	0.0	0.911	0.89	0.04	0.08	0.22	0.03	0.00	0.06	bal.
G	添加合金粉末	24.0	8.0	0.0	0.0	0.915	0.90	0.10	0.15	0.70	0.00	0.00	0.00	bal.
G-1	主合金粉末	21.9	7.0	0.0	0.0	0.908	1.07	0.02	0.03	0.20	0.05	0.00	0.08	bal.
H	添加合金粉末	24.0	8.0	0.0	0.0	0.915	0.90	0.10	0.15	0.70	0.00	0.00	0.00	bal.
H-1	主合金粉末	21.7	6.9	0.0	0.0	0.907	1.08	0.01	0.02	0.15	0.05	0.00	0.09	bal.
I	添加合金粉末	49.2	16.1	0.0	0.0	0.350	1.50	3.80	1.40	11.30	0.00	0.00	0.00	bal.
I-1	主合金粉末	20.2	6.8	3.0	0.0	0.919	2.41	0.01	0.18	0.12	0.00	0.00	0.00	bal.
I-2	主合金粉末	22.4	7.5	3.0	0.0	0.929	2.41	0.01	0.13	0.11	0.00	0.00	0.00	bal.
I-3	主合金粉末	21.1	7.0	3.0	0.0	0.945	2.41	0.01	0.16	0.11	0.00	0.00	0.00	bal.
I-4	主合金粉末	23.5	7.9	0.0	0.0	0.894	1.20	0.06	0.19	0.15	0.00	0.00	0.10	bal.
I-5	主合金粉末	23.0	7.8	0.0	0.0	0.836	0.59	0.16	0.10	0.54	0.00	0.00	0.00	bal.
J	添加合金粉末	42.5	13.9	0.0	0.0	0.375	0.8	0.10	0.15	6.79	0.00	0.00	0.00	bal.
J-1	主合金粉末	21.9	7.2	0.0	0.0	0.929	0.8	0.05	0.08	0.21	0.00	0.00	0.10	bal.
K	添加合金粉末	42.5	13.9	0.0	0.0	0.375	0.80	0.10	0.15	6.79	0.00	0.00	0.00	bal.
K-1	主合金粉末	21.2	6.91	0.0	1.1	0.928	0.80	0.05	0.08	0.21	0.00	0.00	0.10	bal.
L	添加合金粉末	0.0	32.4	0.0	20.0	0.375	0.80	0.10	0.15	6.79	0.00	0.00	0.00	bal.
L-1	主合金粉末	22.9	6.15	0.0	0.2	0.927	0.80	0.05	0.08	0.21	0.00	0.00	0.10	bal.

[0073]

[表6]

No.	混合合金粉末の組合せ	混合量（質量部）	
100	A+A-1	4%	本発明
101	A+A-2	4%	本発明
102	A+A-3	4%	本発明
103	A+A-4	4%	本発明
104	A+A-5	4%	本発明
105	A+A-6	4%	本発明
106	A+A-7	4%	本発明
107	A+A-8	4%	本発明
108	A+A-9	4%	本発明
109	A+A-10	4%	本発明
110	A+A-11	4%	本発明
111	A+A-12	4%	本発明
112	A+A-13	4%	本発明
113	A+A-14	4%	本発明
114	A+A-15	4%	本発明
115	A+A-16	4%	本発明
116	A+A-17	4%	本発明
117	A+A-18	4%	本発明
118	A+A-19	4%	本発明
119	A+A-20	4%	本発明
120	A+A-21	4%	本発明
121	B+B-1	4%	本発明
122	C+C-1	4%	本発明
123	D+D-1	4%	本発明
124	E+E-1	1%	本発明
125	F+F-1	10%	本発明
126	G+G-1	30%	比較例
127	H+H-1	40%	比較例
128	I+I-1	1%	比較例
129	I+I-2	1%	比較例
130	I+I-3	1%	比較例
131	I+I-4	1%	比較例
132	I+I-5	1%	比較例
133	J+J-1	4%	本発明
134	K+K-1	4%	本発明
135	L+L-1	4%	本発明

[0074]

[表7]

No.	R−T−B系焼結磁石の分析結果(質量%)																v	
	Nd	Pr	Dy	Tb	B	Co	Al	Cu	Ga	Nb	Ti	Zr	Fe	O	N	C		
100	23.4	7.7	0.0	0.0	0.903	1.0	0.10	0.16	0.49	0.00	0.00	0.00	bal.	0.09	0.05	0.10	29.23	本発明
101	23.2	7.7	0.0	0.0	0.874	0.8	0.10	0.20	0.55	0.00	0.00	0.00	bal.	0.10	0.05	0.09	29.15	本発明
102	23.6	7.8	0.0	0.0	0.889	0.8	0.10	0.16	0.50	0.00	0.00	0.00	bal.	0.09	0.04	0.07	29.99	本発明
103	22.7	7.4	0.0	0.0	0.909	0.8	0.10	0.08	0.47	0.00	0.00	0.00	bal.	0.12	0.06	0.10	28.17	本発明
104	22.7	7.4	0.0	0.0	0.909	0.9	0.05	0.08	0.47	0.00	0.00	0.00	bal.	0.12	0.06	0.10	28.17	本発明
105	22.7	7.4	0.0	0.0	0.909	0.8	0.10	0.08	0.43	0.00	0.00	0.00	bal.	0.12	0.06	0.10	28.17	本発明
106	22.7	7.4	0.0	0.0	0.909	1.5	0.10	0.08	0.47	0.00	0.00	0.00	bal.	0.12	0.06	0.10	28.17	本発明
107	22.7	7.4	0.0	0.0	0.909	0.8	0.05	0.08	0.42	0.10	0.00	0.00	bal.	0.12	0.06	0.10	28.17	本発明
108	22.7	7.4	0.0	0.0	0.909	0.8	0.05	0.08	0.41	0.00	0.00	0.10	bal.	0.12	0.06	0.10	28.17	本発明
109	22.7	7.4	0.0	0.0	0.909	0.8	0.05	0.08	0.40	0.03	0.00	0.05	bal.	0.12	0.06	0.10	28.17	本発明
110	22.7	7.4	0.0	0.0	0.917	0.8	0.10	0.13	0.27	0.00	0.00	0.00	bal.	0.15	0.04	0.08	28.39	本発明
111	22.7	7.4	0.0	0.0	0.879	0.8	0.10	0.15	0.39	0.00	0.00	0.00	bal.	0.13	0.06	0.09	28.16	本発明
112	22.7	7.4	0.0	0.0	0.891	0.8	0.10	0.15	0.39	0.00	0.00	0.00	bal.	0.14	0.06	0.09	28.13	本発明
113	22.7	7.4	0.0	0.0	0.909	0.8	0.10	0.15	0.31	0.00	0.00	0.00	bal.	0.17	0.06	0.11	27.72	本発明
114	22.7	7.4	0.0	0.0	0.923	0.8	0.10	0.15	0.28	0.00	0.00	0.00	bal.	0.17	0.06	0.11	27.79	本発明
115	22.7	7.4	0.0	0.0	0.889	0.8	0.10	0.15	0.35	0.00	0.00	0.00	bal.	0.12	0.04	0.07	28.47	本発明
116	20.7	6.7	3.0	0.0	0.904	0.8	0.10	0.08	0.34	0.00	0.00	0.00	bal.	0.12	0.06	0.10	28.40	本発明
117	22.1	7.2	0.0	0.0	0.849	0.8	0.10	0.13	0.54	0.00	0.00	0.00	bal.	0.09	0.02	0.06	28.20	本発明
118	21.6	7.2	0.0	0.0	0.890	0.8	0.10	0.11	0.46	0.00	0.00	0.00	bal.	0.10	0.02	0.06	27.63	本発明
119	21.6	7.1	0.0	0.0	0.909	0.8	0.10	0.11	0.43	0.00	0.00	0.00	bal.	0.10	0.01	0.07	27.47	本発明
120	22.4	7.3	0.0	0.0	0.899	0.8	0.10	0.11	0.38	0.00	0.00	0.09	bal.	0.11	0.06	0.07	27.87	本発明
121	22.7	7.4	0.0	0.0	0.910	0.8	0.10	0.15	0.31	0.00	0.15	0.00	bal.	0.16	0.06	0.11	27.77	本発明
122	22.7	7.4	0.0	0.0	0.912	0.8	0.10	0.15	0.31	0.00	0.00	0.12	bal.	0.15	0.06	0.10	27.80	本発明
123	22.7	7.4	0.0	0.0	0.911	0.8	0.10	0.15	0.31	0.02	0.00	0.10	bal.	0.16	0.06	0.10	27.80	本発明
124	22.7	7.4	0.0	0.0	0.909	1.0	0.05	0.08	0.40	0.03	0.00	0.05	bal.	0.10	0.05	0.10	28.23	本発明
125	22.7	7.4	0.0	0.0	0.912	1.0	0.05	0.08	0.40	0.03	0.00	0.05	bal.	0.11	0.05	0.10	28.21	本発明
126	22.7	7.4	0.0	0.0	0.910	1.0	0.05	0.08	0.40	0.03	0.00	0.05	bal.	0.11	0.05	0.11	28.14	比較例
127	22.7	7.4	0.0	0.0	0.911	1.0	0.05	0.08	0.40	0.03	0.00	0.05	bal.	0.11	0.05	0.10	28.20	比較例
128	20.5	6.8	3.0	0.0	0.914	2.4	0.05	0.19	0.23	0.00	0.00	0.00	bal.	0.06	0.04	0.07	29.13	比較例
129	22.7	7.6	3.0	0.0	0.923	2.4	0.05	0.14	0.22	0.00	0.00	0.00	bal.	0.55	0.04	0.10	28.85	比較例
130	21.4	7.1	3.0	0.0	0.940	2.4	0.05	0.17	0.22	0.00	0.00	0.00	bal.	0.30	0.03	0.08	28.73	比較例
131	23.8	8.0	0.0	0.0	0.890	1.2	0.10	0.20	0.26	0.00	0.00	0.10	bal.	0.14	0.06	0.22	28.61	比較例
132	23.3	7.9	0.0	0.0	0.831	0.6	0.20	0.11	0.65	0.00	0.00	0.00	bal.	0.40	0.02	0.09	27.87	比較例
133	22.7	7.4	0.0	0.0	0.907	0.8	0.05	0.08	0.47	0.00	0.00	0.10	bal.	0.10	0.05	0.09	28.28	本発明
134	22.0	7.2	0.0	1.0	0.906	0.8	0.05	0.08	0.47	0.00	0.00	0.10	bal.	0.11	0.05	0.09	28.31	本発明
135	22.0	7.2	0.0	1.0	0.905	0.8	0.05	0.08	0.47	0.00	0.00	0.10	bal.	0.10	0.06	0.09	28.30	本発明

[0075]

[表8]

No.	U	V	W	領域	Br[T]	HcJ[kA/m]	
100	31.1	29.23	0.903	1	1.412	1564	本発明
101	30.9	29.15	0.874	1	1.378	1644	本発明
102	31.4	29.99	0.889	1	1.393	1709	本発明
103	30.2	28.17	0.909	2	1.419	1638	本発明
104	30.2	28.17	0.909	2	1.434	1590	本発明
105	30.2	28.17	0.909	2	1.423	1634	本発明
106	30.2	28.17	0.909	2	1.424	1636	本発明
107	30.2	28.17	0.909	2	1.430	1620	本発明
108	30.2	28.17	0.909	2	1.431	1609	本発明
109	30.2	28.17	0.909	2	1.432	1616	本発明
110	30.2	28.39	0.917	2	1.413	1629	本発明
111	30.2	28.16	0.879	1	1.396	1718	本発明
112	30.2	28.13	0.891	2	1.400	1663	本発明
113	30.1	27.72	0.909	2	1.444	1574	本発明
114	30.2	27.79	0.923	2	1.453	1558	本発明
115	30.2	28.47	0.889	1	1.401	1609	本発明
116	30.4	28.40	0.904	2	1.356	2117	本発明
117	29.3	28.20	0.849	1	1.410	1546	本発明
118	28.8	27.63	0.890	2	1.438	1536	本発明
119	28.7	27.47	0.909	2	1.424	1661	本発明
120	29.7	27.87	0.899	2	1.434	1576	本発明
121	30.1	27.77	0.910	2	1.450	1559	本発明
122	30.1	27.80	0.912	2	1.451	1560	本発明
123	30.1	27.80	0.911	2	1.451	1556	本発明
124	30.2	28.23	0.909	2	1.427	1556	本発明
125	30.2	28.21	0.912	2	1.425	1536	本発明
126	30.2	28.14	0.910	2	1.405	1512	比較例
127	30.2	28.20	0.911	2	1.402	1509	比較例
128	30.4	29.13	0.914	20	1.339	1684	比較例
129	33.3	28.85	0.923	20	1.280	1670	比較例
130	31.5	28.73	0.940	20	1.324	1654	比較例
131	31.8	28.61	0.890	1	1.333	1482	比較例
132	31.2	27.87	0.831	10	1.304	1512	比較例
133	30.2	28.28	0.907	2	1.433	1564	本発明
134	30.2	28.31	0.906	2	1.409	1804	本発明
135	30.2	28.30	0.905	2	1.409	1923	本発明

[0076] 表８に示すように、本発明の製造方法（厚さ０．１２ｍｍ以下の原料合金を用いて作製した本発明の組成を有する添加合金粉末と、Ｇａの含有量が０．４質量％以下である主合金粉末を準備し、前記添加合金粉末と前記主合金粉末の合計１００質量部に対して前記添加合金粉末を０．５～１０質量部含

む、前記添加合金粉末と前記主合金粉末との混合合金粉末を用いる）により、態様１又２に示す組成範囲内で作製した試料Ｎｏ．１００～１２５及び試料Ｎｏ．１３３～１３５は、原料合金にＤｙ、Ｔｂを含有しない場合（試料Ｎｏ．１１６、１３４、１３５以外の本発明）はB_r≧１．３７８Ｔ、かつ、H_{cJ}≧１５３６ｋＡ／ｍと参考例１、２と比較してさらに高いB_rと高いH_{cJ}を得ることができる。さらに、原料合金にＤｙ、Ｔｂを含有する場合（試料Ｎｏ．１１６、１３４、１３５）もB_r（Ｔ）≧１．３４０－０．０２４［Ｄｙ］－０．０２４［Ｔｂ］、かつ、H_{cJ}（ｋＡ／ｍ）≧１３００＋１６０［Ｄｙ］＋２４０［Ｔｂ］の高いB_rと高いH_{cJ}が得られている。さらに、表８に示すように、本発明において領域の１（図１中の１の領域）よりも領域の２（図１中の２の領域）の方が更に高いB_r（原料合金にＤｙ、Ｔｂを含有しない場合B_r≧１．４００Ｔ）を得ることができる。これに対し、態様１又は２に示す組成範囲内であっても本発明の製造方法でない（添加合金粉末と主合金粉末の混合比率が本発明の範囲外）である試料Ｎｏ．１２６、１２７や本発明の製造方法であっても態様１又は２に示す組成範囲外である試料Ｎｏ．１２８～１３２（試料Ｎｏ．１２８～１３０及び１３２は図１中の領域１、２以外の組成範囲、試料Ｎｏ．１３１はＧａが組成範囲外）は、B_r≧１．３７８Ｔ、かつ、H_{cJ}≧１５３６ｋＡ／ｍの高い磁気特性が得られていない。

[0077] ＜実施例２＞

Ｎｄメタル、Ｐｒメタル、フェロボロン合金、電解Ｃｏ、ＡｌメタルＣｕメタル、Ｇａメタル、及び電解鉄を用いて（メタルはいずれも純度９９％以上）、表９に示す組成となるように添加合金粉末及び主合金粉末を配合し、主合金粉末については、それらの原料を溶解してストリップキャスト法により鋳造し、厚み０．３～０．４ｍｍのフレーク状の原料合金を得た。また、添加合金粉末については、実施例１と同じ条件でメルトスピニング法により作製した。得られた原料合金の厚さ方向における寸法をそれぞれ１００個測定して平均値を求めた。平均値は組成に応じて０．０７５～０．０８２ｍ

ｍの間であった。それぞれ得られた原料合金に対して水素加圧雰囲気で水素脆化させた後、５５０℃まで真空中で加熱、冷却する脱水素処理を施し、粗粉砕粉を得た。得られた添加合金の粗粉砕粉末と主合金の粗粉砕粉末を表１０に示す混合量でＶ型混合機に投入して混合し、混合合金粉末を得た。得られた混合合金粉末に潤滑剤としてステアリン酸亜鉛を粗粉砕粉１００質量部に対して０．０４質量部添加、混合した後、ジェットミル装置を用いて、窒素気流中で乾式粉砕し、粒径Ｄ５０が４μｍの微粉砕粉となした混合合金粉末を得た。なお、粉砕時に窒素ガスに大気を混合することにより粉砕時の窒素ガス中の酸素濃度を調節した。大気を混合しない場合の粉砕時の窒素ガス中の酸素濃度は５０ｐｐｍ以下であり、大気を混合することで窒素ガス中の酸素濃度を最大１６００ｐｐｍまで増加させ、様々な酸素量の微粉砕粉を作製した。なお、粒径Ｄ５０は、気流分散式によるレーザー回折法で得られた体積基準メジアン径である。また、表１１におけるＯ（酸素量）、Ｎ（窒素量）、Ｃ（炭素量）は参考例１と同様の方法で測定した。

[0078] 添加合金粉末と主合金粉末を混合して得られた微粉砕粉（混合合金粉末）に、潤滑剤としてステアリン酸亜鉛を微粉砕粉１００質量部に対して０．０５質量部添加、混合した後、参考例１と同様の方法で、成形体を作製し、さらに参考例１と同様の方法で焼結、熱処理を行った。得られたＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の組成を表１１に示す。熱処理後の焼結磁石に機械加工を施し、参考例１と同様の方法で各試料のB_r及びH_{cJ}を測定した。測定結果を表１２に示す。

[0079] 表１１における試料Ｎｏ．１４０のＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石は、表９のＭ合金粉末（添加合金粉末）とＭ－１合金粉末（主合金粉末）とＭ－２合金粉末（主合金粉末）を表１０に示す混合量で混合した混合合金粉末を用いて作製したものであり、混合量は、前記添加合金粉末（Ｍ合金粉末）と前記主合金粉末（Ｍ－１およびＭ－２合金粉末）の合計１００質量部に対して添加合金粉末（Ｍ）：４質量部、主合金粉末（Ｍ－１）４８質量部、主合金粉末（Ｍ－２）４８質量部である。試料Ｎｏ．１４１、１４２も同様の方法で記載し

ている。また、表１２におけるｕは、表１１におけるＮｄ、Ｐｒ、Ｄｙの量を合計した値であり、ｖは、表１１における酸素量（質量％）をα、窒素量（質量％）をβ、炭素量（質量％）をγとしたとき６α＋１０β＋８γをｕから差し引いた値である。ｗは、表１１のＢ量をそのまま転記した。また、表１２における領域は、ｖとｗが図１中のどの位置にあるか示したものであり、図１中の１の領域にある場合は１と、図１中の２の領域にある場合は２と記載した。なお、表９に示す添加合金粉末及び主合金粉末の組成、表１０に示す添加合金粉末の混合量および表１１に示すＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の組成は、全て本発明の範囲内である。

[0080] [表9]

合金粉末	合金の種類	合金粉末の分析結果（質量%）											
		Nd	Pr	Dy	B	Co	Al	Cu	Ga	Nb	Ti	Zr	Fe
M	添加合金粉末	42.5	13.9	0.0	0.375	0.8	0.10	0.15	6.79	0.00	0.00	0.00	bal.
M-1	主合金粉末	21.9	7.1	0.0	0.961	0.8	0.10	0.15	0.04	0.00	0.00	0.00	bal.
M-2	主合金粉末	21.9	7.1	0.0	0.901	0.8	0.10	0.15	0.04	0.00	0.00	0.00	bal.
M-3	主合金粉末	21.9	7.1	0.0	0.970	0.8	0.10	0.15	0.04	0.00	0.00	0.00	bal.
M-4	主合金粉末	21.9	7.1	0.0	0.891	0.8	0.10	0.15	0.04	0.00	0.00	0.00	bal.
M-5	主合金粉末	21.9	7.1	0.0	0.979	0.8	0.10	0.15	0.04	0.00	0.00	0.00	bal.
M-6	主合金粉末	21.9	7.1	0.0	0.882	0.8	0.10	0.15	0.04	0.00	0.00	0.00	bal.

[0081] [表10]

No.	混合合金粉末の組合せ	混合量（質量部）	
140	M+M-1+M-2	M:4% M-1:48% M-2:48%	本発明
141	M+M-3+M-4	M:4% M-3:48% M-4:48%	本発明
142	M+M-5+M-6	M:4% M-5:48% M-6:48%	本発明

[0082]

[表11]

No.	R−T−B系焼結磁石の分析結果(質量%)															v	
	Nd	Pr	Dy	B	Co	Al	Cu	Ga	Nb	Ti	Zr	Fe	O	N	C		
140	22.7	7.4	0	0.909	0.8	0.10	0.15	0.31	0.00	0.00	0.00	bal.	0.15	0.05	0.11	27.82	本発明
141	22.7	7.4	0	0.909	0.8	0.10	0.15	0.31	0.00	0.00	0.00	bal.	0.16	0.06	0.10	27.81	本発明
142	22.7	7.4	0	0.909	0.8	0.10	0.15	0.31	0.00	0.00	0.00	bal.	0.16	0.05	0.11	27.76	本発明

[0083] [表12]

No.	U	V	W	領域	Br[T]	HcJ[kA/m]	
140	30.1	27.82	0.909	2	1.454	1555	本発明
141	30.1	27.81	0.909	2	1.453	1557	本発明
142	30.1	27.76	0.909	2	1.452	1551	本発明

[0084] 表１２に示すように、一種の添加合金粉末と二種の主合金粉末を混合してＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石を作製した試料Ｎｏ．１４０～１４２は、いずれもB_r≧１．３７８Ｔ、かつ、H_{cJ}≧１５３６ｋＡ／ｍと参考例１、２と比較してさらに高いB_rと高いH_{cJ}を得ることができる。

[0085] ＜実施例３＞

Ｎｄメタル、Ｐｒメタル、フェロボロン合金、電解Ｃｏ、ＡｌメタルＣｕメタル、Ｇａメタル、及び電解鉄を用いて（メタルはいずれも純度９９％以上）、表１３に示す組成となるように添加合金粉末及び主合金粉末を配合し、主合金粉末については、それらの原料を溶解してストリップキャスト法により鋳造し、厚み０．３～０．４ｍｍのフレーク状の原料合金を得た。また、添加合金粉末については、メルトスピニング法により原料合金の厚さ（原料合金の厚さ方向における寸法を１００個測定した平均値）を二種類（表１３の合金粉末Ｎは厚さ０．１ｍｍの原料合金、表１３の合金粉末ＮＡは厚さ０．０２ｍｍの原料合金）作製した。それぞれ得られた原料合金に対して水素加圧雰囲気で水素脆化させた後、５５０℃まで真空中で加熱、冷却する脱水素処理を施し、粗粉砕粉を得た。得られた添加合金の粗粉砕粉末と主合金の粗粉砕粉末を表１４に示す混合量でＶ型混合機に投入して混合し、混合合金粉末を得た。得られた混合合金粉末に潤滑剤としてステアリン酸亜鉛を

粗粉砕粉１００質量部に対して０．０４質量部添加、混合した後、ジェットミル装置を用いて、窒素気流中で乾式粉砕し、粒径Ｄ５０が４μｍの微粉砕粉となした混合合金粉末を得た。なお、粉砕時に窒素ガスに大気を混合することにより粉砕時の窒素ガス中の酸素濃度を調節した。大気を混合しない場合の粉砕時の窒素ガス中の酸素濃度は５０ｐｐｍ以下であり、大気を混合することで窒素ガス中の酸素濃度を最大１１００ｐｐｍまで増加させ、様々な酸素量の微粉砕粉を作製した。なお、粒径Ｄ５０は、気流分散式によるレーザー回折法で得られた体積基準メジアン径である。また、表１５におけるＯ（酸素量）、Ｎ（窒素量）、Ｃ（炭素量）は参考例１と同様の方法で測定した。

[0086] 添加合金粉末と主合金粉末を混合して得られた微粉砕粉（混合合金粉末）に、潤滑剤としてステアリン酸亜鉛を微粉砕粉１００質量部に対して０．０５質量部添加、混合した後、参考例１と同様の方法で、成形体を作製し、さらに参考例１と同様の方法で焼結、熱処理を行った。得られたＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の組成を表１５に示す。熱処理後の焼結磁石に機械加工を施し、参考例１と同様の方法で各試料のB_r及びH_{cJ}を測定した。測定結果を表１６に示す。

[0087] 表１５における試料Ｎｏ．１４５のＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石は、表１３のＮ合金粉末（添加合金粉末）とＮ－１合金粉末（主合金粉末）とＮ－２合金粉末（主合金粉末）を表１４に示す混合量で混合した混合合金粉末を用いて作製したものであり、混合量は、前記添加合金粉末（Ｎ合金粉末）と前記主合金粉末（Ｎ－１およびＮ－２合金粉末の合計１００質量部に対して添加合金粉末（Ｎ）：４質量部、主合金粉末（Ｎ－１）４８質量部、主合金粉末（Ｎ－２）４８質量部である。試料Ｎｏ．１４７、１４８も同様の方法で記載している。また、表１６におけるｕは、表１５におけるＮｄ、Ｐｒ、Ｄｙの量を合計した値であり、ｖは、表１５における酸素量（質量％）をα、窒素量（質量％）をβ、炭素量（質量％）をγとしたとき６α＋１０β＋８γをｕから差し引いた値である。ｗは、表１５のＢ量をそのまま転記した。また、

表１６における領域は、ｖとｗが図１中のどの位置にあるか示したものであり、図１中の１の領域にある場合は１と、図１中の２の領域にある場合は２と記載した。なお、表１３に示す添加合金粉末及び主合金粉末の組成、表１４に示す添加合金粉末の混合量および表１５に示すＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の組成は、全て本発明の範囲内である。

[0088] [表13]

No.	U	V	W	領域	Br[T]	HcJ[kA/m]	
140	30.1	27.82	0.909	2	1.454	1555	本発明
141	30.1	27.81	0.909	2	1.453	1557	本発明
142	30.1	27.76	0.909	2	1.452	1551	本発明

[0089] [表14]

No.	混合合金粉末の組合せ	混合量（質量部）	原料合金の厚さ(mm)	
145	N+N-1+N-2	N:4% N-1:48% N-2:48%	0.1	本発明
146	N+N-3+N-4	N:4% N-3:48% N-4:48%	0.1	本発明
147	NA+N-1+N-2	NA:4% N-1:48% N-2:48%	0.02	本発明
148	NA+N-3+N-4	NA:4% N-3:48% N-4:48%	0.02	本発明

[0090] [表15]

No.	R－T－B系焼結磁石の分析結果(質量%)															v	
	Nd	Pr	Dy	B	Co	Al	Cu	Ga	Nb	Ti	Zr	Fe	O	N	C		
145	22.7	7.4	0	0.910	0.8	0.05	0.08	0.47	0.00	0.00	0.00	bal.	0.10	0.05	0.09	28.29	本発明
146	22.7	7.4	0	0.909	0.8	0.05	0.08	0.47	0.00	0.00	0.00	bal.	0.10	0.06	0.10	28.24	本発明
147	22.7	7.4	0	0.910	0.8	0.05	0.08	0.47	0.00	0.00	0.00	bal.	0.10	0.06	0.09	28.26	本発明
148	22.7	7.4	0	0.909	0.8	0.05	0.08	0.47	0.00	0.00	0.00	bal.	0.11	0.06	0.10	28.20	本発明

[0091]

[表16]

No.	U	V	W	領域	Br[T]	HcJ[kA/m]	
145	30.2	28.29	0.910	2	1.435	1560	本発明
146	30.2	28.24	0.909	2	1.434	1560	本発明
147	30.2	28.26	0.910	2	1.434	1559	本発明
148	30.2	28.20	0.909	2	1.433	1561	本発明

[0092] 表１６に示すように、一種の添加合金粉末と二種の主合金粉末を混合してＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石を作製した試料Ｎｏ．１４５～１４８は、いずれもB_r≧１．３７８Ｔ、かつ、H_{cJ}≧１５３６ｋＡ／ｍと参考例１、２と比較してさらに高いB_rと高いH_{cJ}を得ることができる。

産業上の利用可能性

[0093] 本発明によるＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石は、電気自動車用モータや産業機器用モータなどに好適に利用することができる。

請求の範囲

[請求項1] 下記式（１）によって表わされ、

ｕＲｗＢｘＧａｙＣｕｚＡｌｑＭ（１００－ｕ－ｗ－ｘ－ｙ－ｚ－ｑ）Ｔ （１）

（Ｒは希土類元素のうち少なくとも一種でありＮｄを必ず含む、ＴはＦｅでありＦｅの１０％以下をＣｏで置換でき、ＭはＮｂ、Ｚｒ、Ｔｉのうち少なくとも一種であり、ｕ、ｗ、ｘ、ｙ、ｚ、ｑ及び１００－ｕ－ｗ－ｘ－ｙ－ｚ－ｑは質量％を示す。）

下記式（２）～（５）を満足し、

０．２０≦ｘ≦０．７０ （２）

０．０７≦ｙ≦０．２ （３）

０．０５≦ｚ≦０．５ （４）

０≦ｑ≦０．３ （５）

Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の酸素量（質量％）をα、窒素量（質量％）をβ、炭素量（質量％）をγとしたとき、ｖ＝ｕ－（６α＋１０β＋８γ）であって、

０．４０≦ｘ≦０．７０のとき、ｖ、ｗが、下記式（６）及び（７）を満足し、

５０ｗ－１８．５≦ｖ≦５０ｗ－１４ （６）

－１２．５ｗ＋３８．７５≦ｖ≦－６２．５ｗ＋８６．１２５ （７）

０．２０≦ｘ＜０．４０のとき、ｖ、ｗが、下記式（８）及び（９）を満足し、ｘが、下記式（１０）を満足することを特徴とするＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の製造方法であって、

５０ｗ－１８．５≦ｖ≦５０ｗ－１５．５ （８）

－１２．５ｗ＋３９．１２５≦ｖ≦－６２．５ｗ＋８６．１２５　（９）

－（６２．５ｗ＋ｖ－８１．６２５）／１５＋０．５≦ｘ≦－（６２．５ｗ＋ｖ－８１．６２５）／１５＋０．８　（１０）

一種以上の添加合金粉末と一種以上の主合金粉末とを準備する工程と、

前記添加合金粉末と前記主合金粉末の合計１００質量部に対して前記添加合金粉末を０．５～１０質量部含む、前記添加合金粉末と前記主合金粉末との混合合金粉末を得る工程と、

前記混合合金粉末を成形し成形体を得る成形工程と、

前記成形体を焼結し焼結体を得る焼結工程と、

前記焼結体に熱処理を施す熱処理工程と、

を含み、

前記一種以上の主合金粉末は、Ｇａ含有量が０．４質量％以下であり、

前記一種以上の添加合金粉末は、それぞれ、下記式（１１）により表され、下記式（１２）～（１７）を満足する組成を有し、

ａＲｂＢｃＧａｄＣｕｅＡｌｆＭ（１００－ａ－ｂ－ｃ－ｄ－ｅ－ｆ）Ｔ　（１１）

（Ｒは希土類元素のうち少なくとも一種でありＮｄを必ず含む、ＴはＦｅでありＦｅの１０％以下をＣｏで置換でき、ＭはＮｂ、Ｚｒ、Ｔｉのうち少なくとも一種であり、ａ、ｂ、ｃ、ｄ、ｅ、ｆ及び１００－ａ－ｂ－ｃ－ｄ－ｅ－ｆは質量％を示す。）

３２≦ａ≦６６　（１２）

０．３≦ｂ≦０．９　（１３）

０．７≦ｃ≦１２　（１４）

０≦ｄ≦４　（１５）

０≦ｅ≦１０　（１６）

０≦ｆ≦１０　（１７）

前記一種以上の添加合金粉末は、厚さ０．１２ｍｍ以下の原料合金を用いて作製したものであることを特徴とする、

Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の製造方法。

[請求項2] ０．４０≦ｘ≦０．７０のとき、ｖ、ｗが、下記式（１９）及び（７）を満足し、

５０ｗ－１８．５≦ｖ≦５０ｗ－１６．２５　（１９）

－１２．５ｗ＋３８．７５≦ｖ≦－６２．５ｗ＋８６．１２５　（７）

０．２０≦ｘ＜０．４０のとき、ｖ、ｗが、下記式（２０）及び（９）を満足し、ｘが、下記式（１０）を満足することを特徴とする請求項１に記載のＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の製造方法。

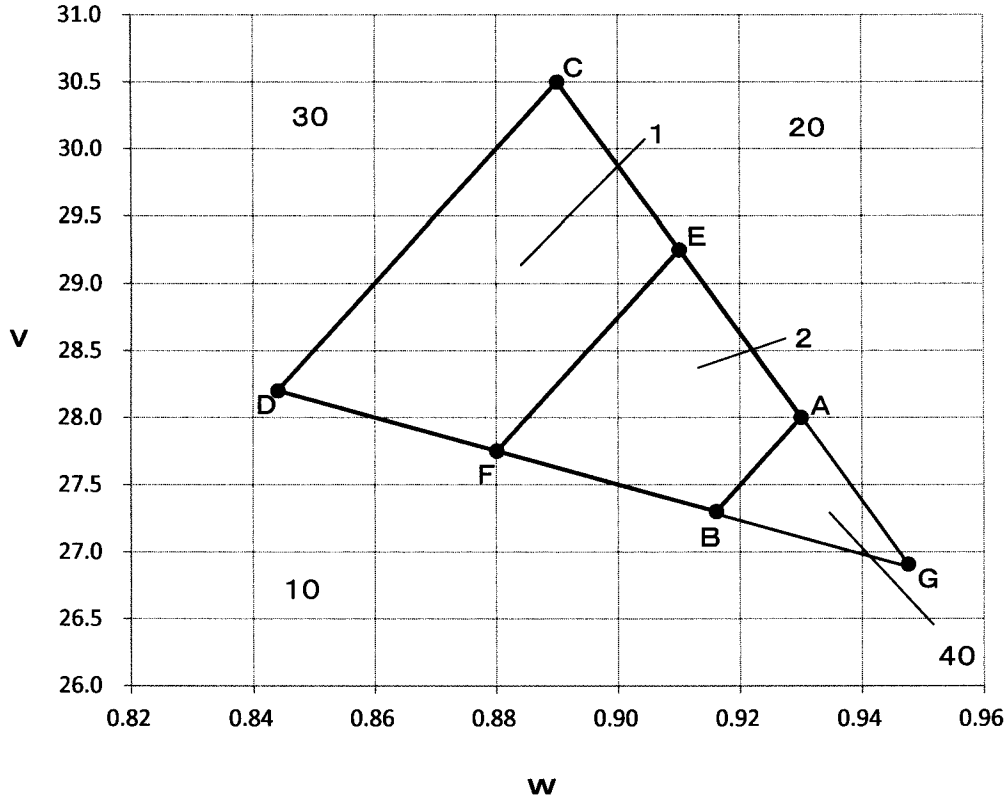
５０ｗ－１８．５≦ｖ≦５０ｗ－１７．０　（２０）

－１２．５ｗ＋３９．１２５≦ｖ≦－６２．５ｗ＋８６．１２５　（９）

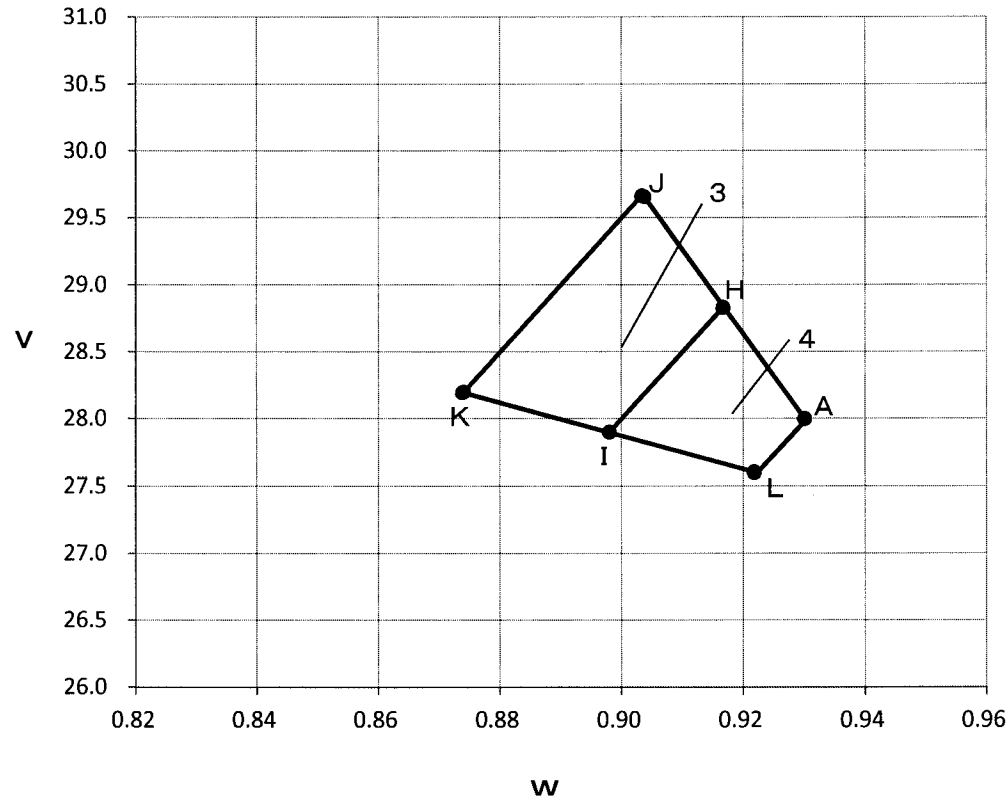
－（６２．５ｗ＋ｖ－８１．６２５）／１５＋０．５≦ｘ≦－（６２．５ｗ＋ｖ－８１．６２５）／１５＋０．８　（１０）

[請求項3] Ｒ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の酸素量が０．１５質量％以下である、請求項１又は２に記載のＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の製造方法。

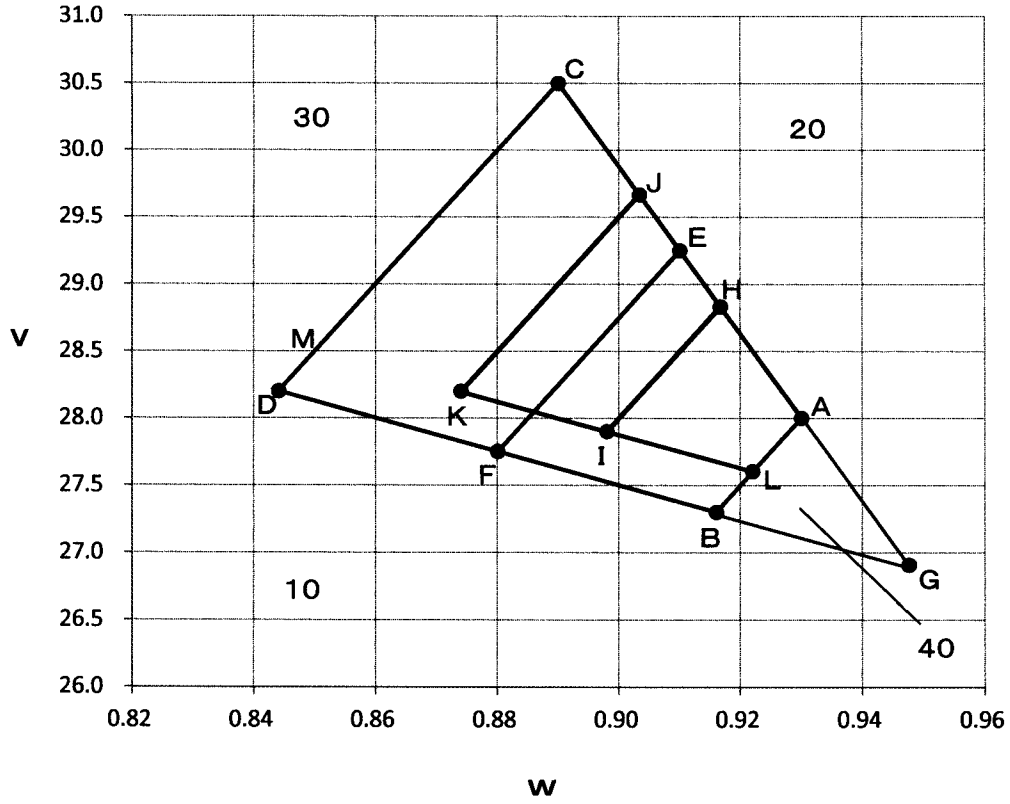
[図1]


31.0
30.5
30.0
29.5
29.0
28.5
28.0
27.5
27.0
26.5
26.0
V
0.82
0.84
0.86
0.88
0.90
0.92
0.94
0.96
W
C
E
A
D
F
B
G
30
20
10
40
1
2

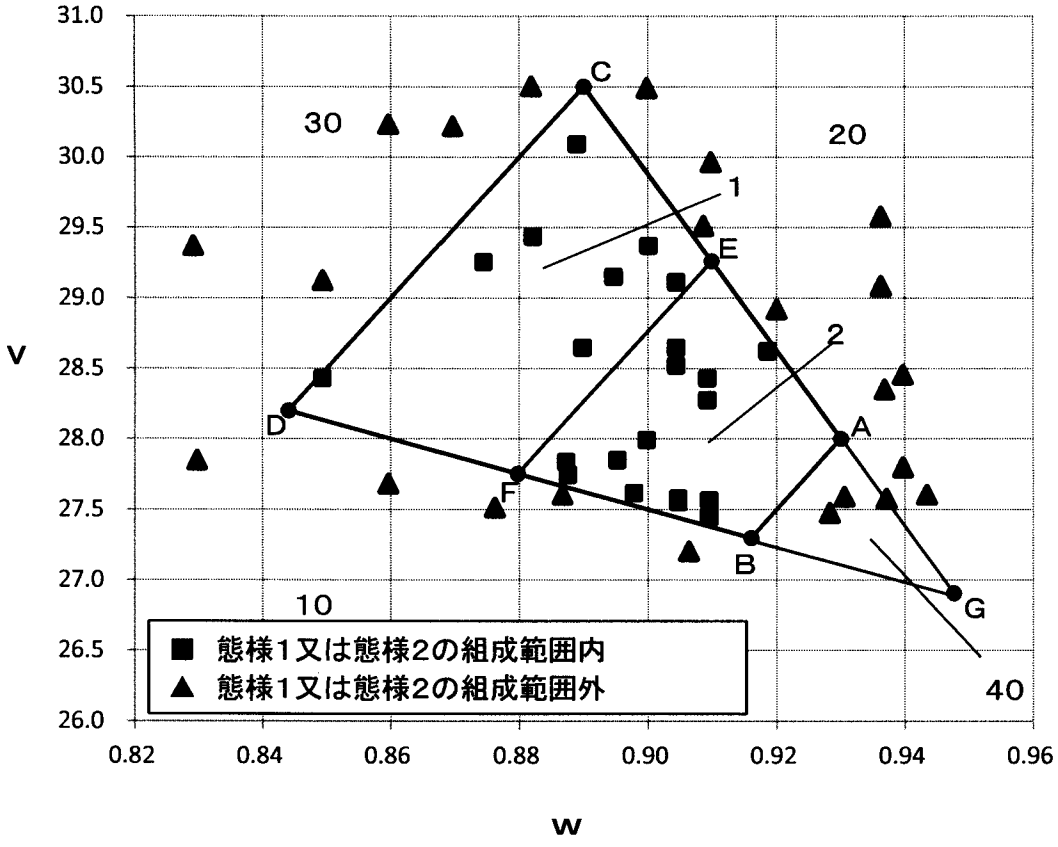
[図2]


31.0
30.5
30.0
29.5
29.0
28.5
28.0
27.5
27.0
26.5
26.0
V
0.82
0.84
0.86
0.88
0.90
0.92
0.94
0.96
W
J
H
A
K
I
L
3
4

[図3]


31.0
30.5
30.0
29.5
29.0
28.5
28.0
27.5
27.0
26.5
26.0
V
0.82
0.84
0.86
0.88
0.90
0.92
0.94
0.96
W
C
J
E
H
M
D
K
A
I
F
L
B
G
30
20
10
40

[図4]


31.0
30.5
30.0
29.5
29.0
28.5
28.0
27.5
27.0
26.5
26.0
V
0.82
0.84
0.86
0.88
0.90
0.92
0.94
0.96
W
C
30
20
1
E
2
D
A
F
B
G
10
40
態様1又は態様2の組成範囲内
態様1又は態様2の組成範囲外

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2016/054386

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
H01F41/02(2006.01)i, *B22F1/00*(2006.01)i, *B22F3/00*(2006.01)i, *C22C33/02*(2006.01)i, *C22C38/00*(2006.01)i, *H01F1/057*(2006.01)i, *H01F1/08*(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)
H01F41/02, B22F1/00, B22F3/00, C22C33/02, C22C38/00, H01F1/057, H01F1/08

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	1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2016	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2016

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2014/157448 A1 (Hitachi Metals, Ltd.), 02 October 2014 (02.10.2014), paragraphs [0023] to [0028], [0043] to [0053]; table 1 & US 2016/0042847 A1 paragraphs [0029] to [0034], [0075] to [0084]; table 1 & EP 2980808 A1 & CN 105190793 A	1-3
Y	JP 7-130522 A (TDK Corp.), 19 May 1995 (19.05.1995), paragraphs [0012], [0020] to [0053]; claims 1, 4, 15 & US 5595608 A column 6, lines 14 to 21; column 14, line 56 to column 19, line 18; claims 19, 22, 32 & EP 651401 A1 & DE 69431096 T2	1-3

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
02 May 2016 (02.05.16)	17 May 2016 (17.05.16)

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
Japan Patent Office 3-4-3,Kasumigaseki,Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915,Japan	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2016/054386

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P,Y	WO 2015/022946 A1 (Hitachi Metals, Ltd.), 19 February 2015 (19.02.2015), claims 4 to 6 & CN 105453195 A	1-3

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１６／０５４３８６

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　H01F41/02(2006.01)i, B22F1/00(2006.01)i, B22F3/00(2006.01)i, C22C33/02(2006.01)i, C22C38/00(2006.01)i, H01F1/057(2006.01)i, H01F1/08(2006.01)i

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　H01F41/02, B22F1/00, B22F3/00, C22C33/02, C22C38/00, H01F1/057, H01F1/08

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	１９７１－２０１６年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１６年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１６年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

Ｃ．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
Y	WO 2014/157448 A1 (日立金属株式会社) 2014.10.02, 段落[0023]-[0028],[0043]-[0053],表1 & US 2016/0042847 A1,段落[0029]-[0034],[0075]-[0084],表1 & EP 2980808 A1 & CN 105190793 A	1-3
Y	JP 7-130522 A (ティーディーケイ株式会社) 1995.05.19, 段落[0012],[0020]-[0053], 請求項1,4,15 & US 5595608 A,第6欄第14-21行,第14欄第56行-第19欄第18行,請求項19,22,32 & EP 651401 A1 & DE 69431096 T2	1-3

☑　Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。　　☐　パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊　引用文献のカテゴリー
「Ａ」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「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	国際調査報告の発送日
０２．０５．２０１６	１７．０５．２０１６

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
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）　５Ｄ　４２３０
久保田　昌晴
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３５５１

C（続き）．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
P, Y	WO 2015/022946 A1 (日立金属株式会社) 2015.02.19, 請求項 4-6 & CN 105453195 A	1-3