

(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
2015年2月12日(12.02.2015)



(10) 国際公開番号

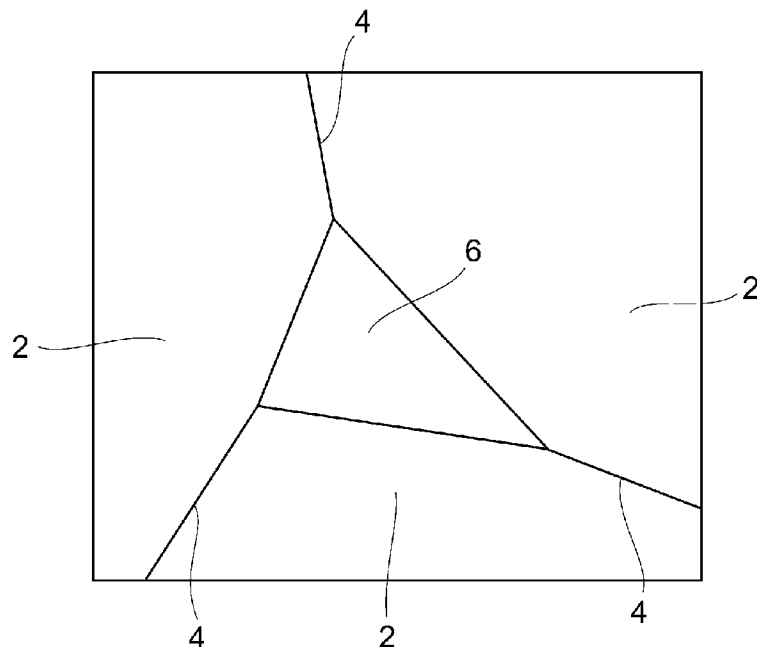
WO 2015/020180 A1

- (51) 国際特許分類:
H01F 1/08 (2006.01) H01F 41/02 (2006.01)
H01F 1/057 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2014/070968
- (22) 国際出願日: 2014年8月8日(08.08.2014)
- (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 2013-166356 2013年8月9日(09.08.2013) JP
- (71) 出願人: TDK株式会社(TDK CORPORATION)
[JP/JP]; 〒1080023 東京都港区芝浦三丁目9番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 三輪 将史(Miwa Masashi); 〒1080023 東京都港区芝浦三丁目9番1号 TDK株式会社内 Tokyo (JP). 中嶋 春菜(Nakajima Haruna); 〒1080023 東京都港区芝浦三丁目9番1号 TDK株式会社内 Tokyo (JP). 金田 功(Kanada Isao); 〒1080023 東京都港区芝浦三丁目9番1号 TDK株式会社内 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, 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, LT, 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, 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

[続葉有]

(54) Title: R-T-B SINTERED MAGNET, AND ROTATING MACHINE

(54) 発明の名称: R-T-B系焼結磁石、および回転機



(57) Abstract: [Problem] To provide an R-T-B sintered magnet which has both excellent corrosion resistance and good magnetic properties. [Solution] This R-T-B sintered magnet has R2 T14B crystal grains, and is characterized in that, at the grain boundaries formed by two or more neighboring R2 T14B crystal grains, there is an R-Ga-Co-Cu-N concentrated portion in which the concentrations of R, Ga, Co, Cu and N are all higher than inside of the R2 T14B crystal grains.

(57) 要約: 【課題】優れた耐食性を有すると共に、良好な磁気特性を併せ持つR-T-B系焼結磁石を提供すること。【解決手段】R2 T14B結晶粒を有するR-T-B系焼結磁石であって、隣り合う2つ以上の前記R2 T14B結晶粒によって形成された粒界中に、前記R2 T14B結晶粒内よりも、R、Ga、Co、Cu、Nの濃度がともに高いR-Ga-Co-Cu-N濃縮部を有することを特徴とするR-T-B系焼結磁石。

WO 2015/020180 A1

WO 2015/020180 A1



(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))

明 細 書

発明の名称： R－T－B系焼結磁石、および回転機

技術分野

[0001] 本発明は、希土類元素（R）、FeまたはFeおよびCoを必須とする少なくとも1種以上の遷移金属元素（T）およびホウ素（B）を主成分とするR－T－B系焼結磁石、および、R－T－B系焼結磁石を備える回転機に関する。

背景技術

[0002] R－T－B（Rは1種以上の希土類元素、TはFeまたはFeおよびCoを含む1種以上の遷移金属元素）系焼結磁石は優れた磁気特性を有するものの、主成分として酸化され易い希土類元素を含有していることから耐食性が低い傾向にある。

[0003] そのため、R－T－B系焼結磁石の耐食性を向上させるために、一般的には磁石素体の表面上に樹脂塗装やめっき等の表面処理を施して使用されることが多い。一方で、磁石素体の添加元素や内部構造を変えることにより、磁石素体そのものの耐食性を向上させる取り組みも行われている。磁石素体そのものの耐食性を向上させることは、表面処理後の製品の信頼性を高める上で極めて重要であり、またそれにより樹脂塗装やめっきよりも簡易な表面処理の適用が可能となることで、製品のコストを低減できるというメリットもある。

[0004] 従来、たとえば、特許文献1では、永久磁石合金中の炭素含有量を0.04質量%以下に減らすことで、非磁性Rリッチ相中の希土類元素と炭素との金属間化合物R－Cを1.0質量%以下に抑制し、磁石の耐食性を向上させる技術が提案されている。また、特許文献2では、Rリッチ相中のCo濃度を5質量%～12質量%とすることで、耐食性を改善する技術が提案されている。

[0005] しかしながら、従来から用いられているR－T－B系焼結磁石では、使用

環境における水蒸気などの水がR-T-B系焼結磁石中のRを酸化して水素を発生し、その水素を粒界中のRリッチ相が吸収することで、Rリッチ相の腐食が進行し、R-T-B系焼結磁石の磁気特性が低下してしまう。

[0006] また、特許文献1で提案されているように、磁石合金中の炭素含有量を0.04質量%以下に減らすためには、磁場中で成形する際に磁場配向性を向上させるために加える潤滑剤の添加量を大幅に減らす必要がある。そのため、成形体中の磁粉の配向度が低下し、焼結後の残留磁束密度 B_r が低下してしまい、十分な磁気特性を有する磁石が得られない。

[0007] また、特許文献2で提案されているように、Rリッチ相中のC_o濃度を増加させるためには、原料組成のC_o添加量を多くする必要がある。しかし、C_oは主相であるR₂T₁₄B相へもFeを置換する形で入るため、Rリッチ相のみのC_o濃度を増加させることはできず、Rリッチ相で必要とされる以上のC_oを添加する必要がある。そのため、高価なC_oの使用量が増えることで製品コストが上昇すると共に、主相中のFeが必要以上にC_oで置換されることにより磁気特性が低下してしまう。

先行技術文献

特許文献

[0008] 特許文献1：特開平4-330702号公報

特許文献2：特開平4-6806号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0009] 本発明は、このような実状に鑑みてなされ、その目的は、優れた耐食性を有すると共に、良好な磁気特性を併せ持つR-T-B系焼結磁石、及びそれを備える回転機を提供することである。

課題を解決するための手段

[0010] 上記目的を達成するために、本発明者らは、R-T-B系焼結磁石の腐食のメカニズムについて鋭意研究をした。その結果、まず使用環境下の水蒸気

などの水と R-T-B 系焼結磁石中の R とによる腐食反応により発生する水素 (H₂) が R-T-B 系焼結磁石中の粒界に存在する R リッチ相に吸蔵されることにより、R リッチ相の水酸化物への変化が加速される。そして、R リッチ相への水素の吸蔵および R リッチ相の水酸化物への変化に伴う R-T-B 系焼結磁石の体積膨張によって R-T-B 系焼結磁石の主相を構成する結晶粒 (主相粒子) が R-T-B 系焼結磁石から脱落し、R の腐食が加速度的に R-T-B 系焼結磁石の内部に進行していくことを発見した。

[0011] そこで、本発明者らは、粒界の水素吸蔵を抑制する方法について鋭意研究し、R-T-B 系焼結磁石内の隣り合う 2 つ以上の R₂T₁4B 結晶粒によって形成された粒界 (特に、隣り合う 3 つ以上の R₂T₁4B 結晶粒によって形成された三重点) 中に、R₂T₁4B 結晶粒内よりも希土類 (R)、ガリウム (Ga)、コバルト (Co)、銅 (Cu) および窒素 (N) の濃度が何れも高い R-Ga-Co-Cu-N 濃縮部を形成することにより、粒界への水素吸蔵は抑制でき、R-T-B 系焼結磁石の耐食性を大幅に向上できると共に、良好な磁気特性を有することができることを見出した。本発明は、かかる知見に基づいて完成されたものである。

[0012] すなわち、本発明に係る R-T-B 系焼結磁石は、
R₂T₁4B 結晶粒を有し、
隣り合う 2 つ以上の前記 R₂T₁4B 結晶粒によって形成された粒界中に、
前記 R₂T₁4B 結晶粒内よりも、R、Ga、Co、Cu、N の濃度がともに高い R-Ga-Co-Cu-N 濃縮部を有することを特徴とする。

[0013] R-Ga-Co-Cu-N 濃縮部とは、粒界中に存在する、R、Ga、Co、Cu、N の濃度がともに R₂T₁4B 結晶粒内よりも高い領域であり、隣り合う 2 つ以上の結晶粒によって形成される粒界中に存在する。

[0014] 本発明では、粒界中に R-Ga-Co-Cu-N 濃縮部を有することで、腐食反応で発生する水素の粒界への吸蔵を効果的に抑制し、R の腐食の内部進行を抑制することができ、R-T-B 系焼結磁石の耐食性を大幅に向上できると共に、良好な磁気特性を有することができる。なお、R リッチ相とは

、 $R_2T_{14}B$ 結晶粒よりRは多いが、Ga、Co、Cu、Nの内の少なくともNに関しては、 $R_2T_{14}B$ 結晶粒と同等以下程度にしか含まない粒界相として定義される。

[0015] 本発明は更に、上記本発明のR-T-B系焼結磁石を備える回転機を提供する。本発明の回転機は、上記本発明のR-T-B系焼結磁石を備えることから、高湿度等の過酷な条件で使用されても、R-T-B系焼結磁石の錆等の発生による腐食が少ないため、長期間にわたって優れた性能を発揮することができる。

発明の効果

[0016] 本発明によれば、優れた耐食性を有するとともに、良好な磁気特性を併せ持つR-T-B系焼結磁石を得ることができる。また、本発明によれば、そのようなR-T-B系焼結磁石を備えることにより、高温高湿環境でも長期間に亘って優れた性能を維持することが可能な回転機を提供することが可能となる。

図面の簡単な説明

[0017] [図1]図1は、本発明に係るR-T-B系焼結磁石の複数の $R_2T_{14}B$ 結晶粒によって形成された粒界付近の反射電子像を模式的に示す図である。

[図2]図2は、本発明に係るR-T-B系焼結磁石を製造する方法の一例を示すフローチャートである。

[図3]図3は、回転機の一実施形態の構成を簡略に示す断面図である。

発明を実施するための形態

[0018] 以下、本発明を、図面に示す実施形態に基づき説明する。

[0019] <R-T-B系焼結磁石>

本発明の実施形態に係るR-T-B系焼結磁石の実施形態について説明する。図1に示すように、本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石は、 $R_2T_{14}B$ 結晶粒から成る粒子（主相）2を有し、隣り合う2つ以上の粒子2によって形成された粒界中に、前記 $R_2T_{14}B$ 結晶粒内よりも、R、Ga、Co、Cu、Nの濃度がともに高いR-Ga-Co-Cu-N濃縮部を有する。

[0020] 粒界とは、2つのR₂T₁4B結晶粒によって形成される二粒子粒界4と、隣り合う3つ以上のR₂T₁4B結晶粒によって形成される三重点6とを含むものである。また、R-Ga-Co-Cu-N濃縮部とは、隣り合う2つ以上の結晶粒によって形成される粒界中に存在し、R、Ga、Co、Cu、Nの各濃度がともにR₂T₁4B結晶粒内よりも高い領域である。R-Ga-Co-Cu-N濃縮部には、R、Ga、Co、Cu、Nが主な成分として含まれていれば、これら以外の成分が含まれていてもよい。

[0021] 本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石は、R-T-B系合金を用いて形成される焼結体である。本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石は、結晶粒の組成がR₂T₁4B（Rは希土類元素の少なくとも1種を表し、TはFeまたはFeおよびCoを含む1種以上の遷移金属元素を表し、BはBまたはBおよびCを表す）という組成式で表されるR₂T₁4B化合物を含む主相と、R₂T₁4B化合物よりRを多く含む粒界とを有する。

[0022] Rは、希土類元素の少なくとも1種を表す。希土類元素とは、長周期型周期表の第3族に属するScとYとランタノイド元素とをいう。ランタノイド元素には、例えば、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu等が含まれる。希土類元素は、軽希土類および重希土類に分類され、重希土類元素（以下、RHともいう）とは、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Luをいい、軽希土類元素（以下、RLともいう）はそれ以外の希土類元素である。本実施形態においては、製造コストおよび磁気特性の観点から、Rは、RL（Nd、Prの何れか一方または両方を少なくとも含む希土類元素）を含むものが好ましい。さらに磁気特性を向上させる観点からRL（Nd、Prの何れか一方または両方を少なくとも含む希土類元素）とRH（Dy、Tbのいずれか一方または両方を少なくとも含む希土類元素）の両方を含んでもよい。

[0023] 本実施形態では、Tは、Fe、またはFeおよびCoを含む1種以上の遷移金属元素を示すものである。Tは、Fe単独であってもよく、Feの一部がCoで置換されていてもよい。Feの一部をCoに置換する場合、磁気特

性を低下させることなく温度特性を向上させることができる。

[0024] FeまたはFeおよびCo以外の遷移金属元素としては、Ti、V、Cu、Cr、Mn、Ni、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、Wなどが挙げられる。また、Tは、遷移金属元素以外に、例えば、Al、Ga、Si、Bi、Snなどの元素の少なくとも1種の元素を更に含んでいてもよい。

[0025] 本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石においては、Bは、Bの一部を炭素(C)に置換することができる。この場合、磁石の製造が容易となるほか、製造コストの低減も図れるようになる。また、Cの置換量は、磁気特性に実質的に影響しない量とする。

[0026] また、その他、不可避免的にO、C、Ca等が混入してもよい。これらはそれぞれ0.5質量%程度以下の量で含有されていてもよい。

[0027] 本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石の主相は、 $R_2T_{14}B$ 結晶粒であり、 $R_2T_{14}B$ 結晶粒は $R_2T_{14}B$ 型の正方晶からなる結晶構造を有するものである。また、 $R_2T_{14}B$ 結晶粒の平均粒子径は、通常 $1\mu m \sim 30\mu m$ 程度である。

[0028] 本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石の粒界は、少なくとも、R-Ga-Co-Cu-N濃縮部を含み、R-Ga-Co-Cu-N濃縮部の他に、 $R_2T_{14}B$ 結晶粒よりRの濃度が高いRリッチ相や、ホウ素(B)の濃度が高いBリッチ相などを含んでいてもよい。

[0029] 本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石におけるRの含有量は、25質量%以上35質量%以下であり、好ましくは29.5質量%以上33質量%以下、より好ましくは29.5質量%以上32質量%以下である。Rの含有量が25質量%未満では、R-T-B系焼結磁石の主相となる $R_2T_{14}B$ 化合物の生成が十分ではない。このため、軟磁性を持つ $\alpha\text{-Fe}$ などが析出し、磁気特性が低下する可能性がある。また、Rの含有量が35質量%を超えると、R-T-B系焼結磁石の主相となる $R_2T_{14}B$ 化合物の体積比率が減少し、磁気特性が低下する可能性があり、また、耐食性も低下する傾向にある。

[0030] 本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石におけるBの含有量は、0.5質

量%以上1.5質量%以下であり、好ましくは0.7質量%以上1.2質量%以下であり、より好ましいBの量は0.75質量%以上0.95質量%以下である。Bの含有量が0.5質量%未満となると保磁力 $H_c J$ が低下する傾向がある。また、Bの含有量が1.5質量%を超えると、残留磁束密度 B_r が低下する傾向がある。特に、Bの含有量が0.75質量%以上0.95質量%以下の範囲にあるときに、 $R-Ga-Co-Cu-N$ 濃縮部が形成されやすくなる。

[0031] Tは、上述の通り、Fe、またはFeおよびCoを含む1種以上の遷移金属元素を示すものである。本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石におけるFeの含有量は、R-T-B系焼結磁石の構成要素における実質的な残部であり、Feの一部がCoで置換してもよい。Coの含有量は0.3質量%以上3.0質量%以下の範囲が好ましく、1.0質量%以上2.0質量%以下とすることがより好ましい。Coの含有量が3.0質量%を超えると、残留磁束密度が低下する傾向がある。また、本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石が高価となる傾向がある。また、Coの含有量が0.3質量%未満となると $R-Ga-Co-Cu-N$ 濃縮部を形成しにくく、耐食性が低下する傾向にある。特に、Coの含有量が0.3質量%以上3.0質量%以下の範囲にあるときに、 $R-Ga-Co-Cu-N$ 濃縮部が形成しやすくなる。FeまたはFeおよびCo以外の遷移金属元素としては、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、Wなどが挙げられる。また、Tは、遷移金属元素以外に、例えば、Al、Ga、Si、Bi、Snなどの元素の少なくとも1種の元素を更に含んでもよい。

[0032] 本実施形態のR-T-B系焼結磁石においては、Cuが含まれることになり、Cuの含有量は、好ましくは0.01~1.5質量%、さらに好ましくは0.05~1.5質量%である。Cuを含有することにより、得られる磁石の高保磁力化、高耐食性化、温度特性の改善が可能となる。Cuの含有量が1.5質量%を超えると、残留磁束密度が低下する傾向がある。また、Cuの含有量が0.01質量%未満となると $R-Ga-Co-Cu-N$ 濃縮部

を形成しにくく、耐食性が低下する傾向にある。特に、Cuの含有量が0.05質量%以上1.5質量%以下の範囲にあるときに、R-Ga-Co-Cu-N濃縮部が形成されやすくなる。

[0033] 本実施形態のR-T-B系焼結磁石においては、Gaが含まれることになり、Gaの含有量は、好ましくは0.01～1.5質量%、さらに好ましくは0.1～1.0質量%である。Gaを含有することにより、得られる磁石の高保磁力化、高耐食性化、温度特性の改善が可能となる。Gaの含有量が1.5質量%を超えると、残留磁束密度が低下する傾向がある。また、Gaの含有量が0.1質量%未満となるとR-Ga-Co-Cu-N濃縮部を形成しにくく、耐食性が低下する傾向にある。特に、Gaの含有量が0.1質量%以上1.0質量%以下の範囲にあるときに、R-Ga-Co-Cu-N濃縮部が形成されやすくなる。

[0034] 本実施形態のR-T-B系焼結磁石においては、Alを含有することが好ましい。Alを含有させることにより、得られる磁石の高保磁力化、高耐食性化、温度特性の改善が可能となる。Alの含有量は0.03質量%以上0.6質量%以下であるのが好ましく、0.05質量%以上0.25質量%以下がより好ましい。

[0035] 本実施形態のR-T-B系焼結磁石においては、必要に応じてZrを含有させてもよい。Zrを含有させることにより、焼結時の粒成長を抑制し、焼結温度幅を改善することが可能となる。Zrを含有させる場合、Zrの含有量は0.01質量%以上1.5質量%以下であることが好ましい。

[0036] 本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石においては、一定量の酸素(O)を含んでもよい。一定量とは、他のパラメータ等で変化し適量決定されるが、酸素量は、耐食性の観点から、500ppm以上が好ましい。また、磁気特性の観点から、酸素量は、好ましくは2500ppm以下、より好ましくは、2000ppm以下である。

[0037] また、本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石中には、炭素(C)が含まれても良く、その炭素量は、他のパラメータ等によって変化し適量決定され

るが、炭素量が増えると磁気特性は低下する。

[0038] また、本実施形態に係る R-T-B 系焼結磁石中の窒素 (N) 量は、好ましくは 100~2000 ppm、さらに好ましくは 200~1000 ppm、特に好ましくは 300~800 ppm である。窒素量がこの範囲にあるとき、R-Ga-Co-Cu-N 濃縮部が形成しやすくなる。R-T-B 系焼結磁石中の窒素 (N) の添加方法は、特に限定されないが、たとえば後述するように、所定濃度の窒素ガス雰囲気下で原料合金を熱処理することにより導入しても良い。あるいは粉砕助剤として、窒素を含む助剤などを用いたり、その他、原料合金の処理剤として、窒素を含む物を用いることで、R-T-B 系焼結磁石中の粒界に窒素を導入してもよい。

[0039] R-T-B 系焼結磁石中の酸素量、炭素量、窒素量の測定方法は、従来より一般的に知られている方法を用いることができる。酸素量は、例えば、不活性ガス融解-非分散型赤外線吸収法により測定され、炭素量は、例えば、酸素気流中燃焼-赤外線吸収法により測定され、窒素量は、例えば、不活性ガス融解-熱伝導度法により測定される。

[0040] 本実施形態に係る R-T-B 系焼結磁石では、粒界の R-Ga-Co-Cu-N 濃縮部は、R-Ga-Co-Cu-N 濃縮部における N の原子数が、R、Fe、Ga、Co、Cu、N の原子数の和に対して 1~13% であることが好ましい。このような比率で N を含む R-Ga-Co-Cu-N 濃縮部が存在することにより、水と R-T-B 系焼結磁石中の R とによる腐食反応により発生する水素が内部の R リッチ相へ吸蔵されていくことを効果的に抑制し、R-T-B 系焼結磁石の腐食の内部への進行を抑制することができると共に、本実施形態に係る R-T-B 系焼結磁石は良好な磁気特性を有することができる。

[0041] また、R-Ga-Co-Cu-N 濃縮部における Ga の原子数は、R、Fe、Ga、Co、Cu、N の原子数の和に対して 7~16%、Co の原子数は、R、Fe、Ga、Co、Cu、N の原子数の和に対して 1~9%、Cu の原子数は、R、Fe、Ga、Co、Cu、N の原子数の和に対して 4~8%

、であることが好ましい。このような比率で各元素を含むR-Ga-Co-Cu-N濃縮部が存在することにより、水とR-T-B系焼結磁石中のRとによる腐食反応により発生する水素が内部のRリッチ相へ吸蔵されていくことを効果的に抑制し、R-T-B系焼結磁石の腐食の内部への進行を抑制することができると共に、本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石は良好な磁気特性を有することができる。

[0042] 本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石は、粒界中に、 $R_2T_{14}B$ 結晶粒内よりも、R、Ga、Co、Cu、Nの濃度がともに高いR-Ga-Co-Cu-N濃縮部を有する。なお、R-Ga-Co-Cu-N濃縮部は、上述の通り、主に、R、Ga、Co、Cu、Nで構成されているが、これら以外の成分が含まれていてもよい。

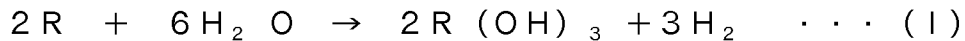
[0043] 本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石では、粒界中に、R-Ga-Co-Cu-N濃縮部が形成される。R-Ga-Co-Cu-N濃縮部が形成されないR-T-B系焼結磁石では、使用環境における水蒸気などによる水に起因した腐食反応で発生する水素の粒界への吸蔵を十分に抑制できなくなり、R-T-B系焼結磁石の耐食性が低下する。

[0044] 本実施形態では、粒界中に、R-Ga-Co-Cu-N濃縮部が形成されることで、使用環境における水蒸気などによる水がR-T-B系焼結磁石内に侵入してR-T-B系焼結磁石中のRと反応して発生した水素が粒界全体に吸蔵されるのを効果的に抑制し、R-T-B系焼結磁石の腐食が内部に進行することを抑制することができると共に、良好な磁気特性を有することができる。

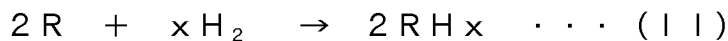
[0045] R-T-B系焼結磁石の腐食の進行は、使用環境下の水蒸気などによる水とR-T-B系焼結磁石中のRとによる腐食反応で発生する水素が、R-T-B系焼結磁石中の粒界に存在するRリッチ相に吸蔵されることにより、R-T-B系焼結磁石の腐食が加速度的にR-T-B系焼結磁石の内部に進行していく。

[0046] すなわち、R-T-B系焼結磁石の腐食は、以下のようなプロセスで進行

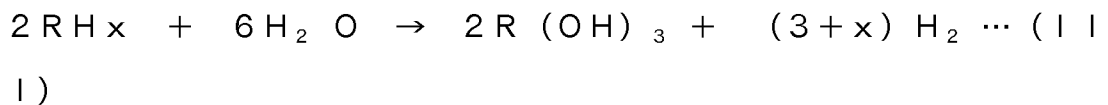
すると考えられる。まず、粒界に存在するRリッチ相は酸化されやすいことから、粒界に存在するRリッチ相のRが使用環境下の水蒸気などによる水により酸化されてRは腐食され、水酸化物に変わり、その過程で水素を発生する。



[0047] 次に、この発生した水素が、腐食されていないRリッチ相に吸蔵される。



[0048] そして、水素吸蔵することでRリッチ相がより腐食され易くなると共に、水素吸蔵されたRリッチ相と水とによる腐食反応により、Rリッチ相に吸蔵された量以上の水素を発生する。



[0049] 上記(I)～(III)の連鎖反応によりR-T-B系焼結磁石の腐食がR-T-B系焼結磁石の内部に進行していき、Rリッチ相がR水酸化物、R水素化物に変化していく。この変化に伴う体積膨張によって応力が蓄積され、R-T-B系焼結磁石の主相を構成する結晶粒（主相粒子）の脱落に至る。そして、主相の結晶粒の脱落によって、R-T-B系焼結磁石の新生面が現れ、R-T-B系焼結磁石の腐食はさらにR-T-B系焼結磁石の内部に進行していく。

[0050] そこで、本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石は、粒界、特に三重点に、R-Ga-Co-Cu-N濃縮部を有し、この濃縮部は、水素を吸蔵しにくいため、腐食反応により発生する水素が内部のRリッチ相へ吸蔵されていくことを防ぐことができ、上記プロセスによる腐食の内部への進行を抑制できる。また、R-Ga-Co-Cu-N濃縮部はRリッチ相と比較して酸化され難いため、腐食による水素発生自体も抑制することができる。そのため、本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石によれば、R-T-B系焼結磁石の耐食性を大幅に向上することができる。また、本実施形態では、粒界中にRリッチ相が存在していてもよい。粒界中にRリッチ相が存在していてもR

—Ga—Co—Cu—N濃縮部を有することによって内部のRリッチ相へ水素が吸蔵されていくことを効果的に防ぐことができるため、十分耐食性を向上することが可能である。

[0051] 本実施形態に係るR—T—B系焼結磁石は、例えば後述するように、主に主相を形成するR—T—B系原料合金（第1合金）以外に、主に粒界相を形成する第2合金を添加し、製造プロセスにおける雰囲気中の窒素濃度等の製造条件を制御することにより製造することができる。あるいは、必要に応じて窒素源となる原料を添加しても良い。

[0052] 本実施形態に係るR—T—B系焼結磁石の粒界に形成されるR—Ga—Co—Cu—N濃縮部は、以下のようにして生成されていると考えられる。すなわち、第2合金中に存在するR、Ga、Co、Cuと窒素が、粗粉碎工程、および／または焼結工程などで化合物を形成し、R—Ga—Co—Cu—N濃縮部という形で粒界に現れると考えられる。

[0053] 本実施形態に係るR—T—B系焼結磁石は、一般的には任意の形状に加工されて使用される。本実施形態に係るR—T—B系焼結磁石の形状は特に限定されるものではなく、例えば、直方体、六面体、平板状、四角柱などの柱状、R—T—B系焼結磁石の断面形状がC型の円筒状等の任意の形状とすることができる。四角柱としては、たとえば、底面が長方形の四角柱、底面が正方形の四角柱であってもよい。

[0054] また、本実施形態に係るR—T—B系焼結磁石には、当該磁石を加工して着磁した磁石製品と、当該磁石を着磁していない磁石製品との両方が含まれる。

[0055] <R—T—B系焼結磁石の製造方法>

上述したような構成を有する本実施形態に係るR—T—B系焼結磁石を製造する方法の一例について図面を用いて説明する。図2は、本発明の実施形態に係るR—T—B系焼結磁石を製造する方法の一例を示すフローチャートである。図2に示すように、本実施形態に係るR—T—B系焼結磁石を製造する方法は、以下の工程を有する。

- [0056] (a) 第1合金と第2合金とを準備する合金準備工程（ステップS11）
 (b) 第1合金と第2合金とを粉砕する粉砕工程（ステップS12）
 (c) 第1合金粉末と第2合金粉末とを混合する混合工程（ステップS13）
 (d) 混合した混合粉末を成形する成形工程（ステップS14）
 (e) 成形体を焼結し、R-T-B系焼結磁石を得る焼結工程（ステップS15）
 (f) R-T-B系焼結磁石を時効処理する時効処理工程（ステップS16）
 (g) R-T-B系焼結磁石を冷却する冷却工程（ステップS17）
 (h) R-T-B系焼結磁石を加工する加工工程（ステップS18）
 (i) R-T-B系焼結磁石の粒界中に重希土類元素を拡散させる粒界拡散工程（ステップS19）
 (j) R-T-B系焼結磁石に表面処理する表面処理工程（ステップS20）

[0057] [合金準備工程：ステップS11]

本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石における主に主相を構成するものとなる組成の合金（第1合金）と粒界相を構成するものとなる組成の合金（第2合金）とを準備する（合金準備工程（ステップS11））。合金準備工程（ステップS11）では、本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石の組成に対応する原料金属を、真空またはArガスなどの不活性ガス雰囲気中で溶解した後、これを用いて鑄造を行うことによって所望の組成を有する第1合金および第2合金を作製する。なお、本実施形態では、第1合金と第2合金との2合金を混合して原料粉末を作製する2合金法の場合について説明するが、第1合金と第2合金をわけずに単独の合金を使用する1合金法でもよい。

- [0058] 原料金属としては、例えば、希土類金属あるいは希土類合金、純鉄、フェロボロン、さらにはこれらの合金や化合物等を使用することができる。原料

金属を鑄造する鑄造方法は、例えばインゴット鑄造法やストリップキャスト法やブックモールド法や遠心鑄造法などである。得られた原料合金は、凝固偏析がある場合は必要に応じて均質化処理を行う。原料合金の均質化処理を行う際は、真空または不活性ガス雰囲気の下、700℃以上1500℃以下の温度で1時間以上保持して行う。これにより、R-T-B系焼結磁石用合金は融解されて均質化される。

[0059] [粉碎工程：ステップS12]

第1合金および第2合金が作製された後、第1合金および第2合金を粉碎する（粉碎工程（ステップS12））。粉碎工程（ステップS12）では、第1合金および第2合金が作製された後、これらの第1合金および第2合金を別々に粉碎して粉末とする。なお、第1合金および第2合金を共に粉碎してもよい。

[0060] 粉碎工程（ステップS12）は、粒径が数百 μm ～数mm程度になるまで粉碎する粗粉碎工程（ステップS12-1）と、粒径が数 μm 程度になるまで微粉碎する微粉碎工程（ステップS12-2）とがある。

[0061] （粗粉碎工程：ステップS12-1）

第1合金および第2合金を各々粒径が数百 μm ～数mm程度になるまで粗粉碎する（粗粉碎工程（ステップS12-1））。これにより、第1合金および第2合金の粗粉碎粉末を得る。粗粉碎は、第1合金および第2合金に水素を吸蔵させた後、異なる相間の水素吸蔵量の相違に基づいて水素を放出させ、脱水素を行なうことで自己崩壊的な粉碎を生じさせる（水素吸蔵粉碎）ことによって行うことができる。

[0062] R-Ga-Co-Cu-N濃縮部の形成に必要な窒素の添加量は、第2合金の水素吸蔵粉碎において、脱水素処理時の雰囲気窒素ガス濃度を調節することにより、制御することができる。最適な窒素ガス濃度は原料合金の組成等により変化するが、好ましくは150ppm以上、さらに好ましくは200ppm以上、特に好ましくは300ppm以上とする。なお、第1合金の水素吸蔵粉碎においては、窒素ガス濃度は、好ましくは150ppmより

も小さく、さらに好ましくは100ppm以下、特に好ましくは50ppm以下である。

[0063] なお、粗粉碎工程（ステップS12-1）は、上記のように水素吸蔵粉碎を用いる以外に、不活性ガス雰囲気中にて、スタンプミル、ジョークラッシャー、ブラウンミル等の粗粉碎機を用いて行うようにしてもよい。

[0064] また、高い磁気特性を得るために、粉碎工程（ステップS12）から焼結工程（ステップS15）までの各工程の雰囲気は、低酸素濃度とすることが好ましい。酸素濃度は、各製造工程における雰囲気の制御等により調節される。各製造工程の酸素濃度が高いと第1合金および第2合金の粉末中の希土類元素が酸化してR酸化物が生成されてしまい、焼結中に還元されずR酸化物の形でそのまま粒界に析出し、得られるR-T-B系焼結磁石のBrが低下する。そのため、例えば、各工程の酸素の濃度を100ppm以下とすることが好ましい。

[0065] （微粉碎工程：ステップS12-2）

第1合金および第2合金を粗粉碎した後、得られた第1合金および第2合金の粗粉碎粉末を平均粒子径が数 μm 程度になるまで微粉碎する（微粉碎工程（ステップS12-2））。これにより、第1合金および第2合金の微粉碎粉末を得る。粗粉碎した粉末を更に微粉碎することで、好ましくは1 μm 以上10 μm 以下、より好ましくは3 μm 以上5 μm 以下の粒子を有する微粉碎粉末を得ることができる。

[0066] なお、本実施形態においては、第1合金および第2合金を別々に粉碎して微粉碎粉末を得るようにしているが、微粉碎工程（ステップS12-2）において第1合金および第2合金の粗粉碎粉末を混合してから微粉碎粉末を得るようにしてもよい。

[0067] 微粉碎は、粉碎時間等の条件を適宜調整しながら、ジェットミル、ボールミル、振動ミル、湿式アトライター等の微粉碎機を用いて粗粉碎した粉末の更なる粉碎を行なうことで実施される。ジェットミルは、高圧の不活性ガス（たとえば、 N_2 ガス）を狭いノズルより開放して高速のガス流を発生させ、

この高速のガス流により第1合金および第2合金の粗粉碎粉末を加速して第1合金および第2合金の粗粉碎粉末同士の衝突やターゲットまたは容器壁との衝突を発生させて粉碎する方法である。

[0068] 第1合金および第2合金の粗粉碎粉末を微粉碎する際、ステアリン酸亜鉛、オレイン酸アミド等の粉碎助剤を添加することにより、成形時に配向性の高い微粉碎粉末を得ることができる。

[0069] [混合工程：ステップS13]

第1合金および第2合金を微粉碎した後、各々の微粉碎粉末を低酸素雰囲気で混合する（混合工程（ステップS13））。これにより、混合粉末が得られる。低酸素雰囲気は、例えば、N₂ガス、Arガス雰囲気など不活性ガス雰囲気として形成する。第1合金粉末および第2合金粉末の配合比率は、質量比で80対20以上97対3以下とするのが好ましく、より好ましくは質量比で90対10以上97対3以下である。

[0070] また、粉碎工程（ステップS12）において、第1合金および第2合金を一緒に粉碎する場合の配合比率も、第1合金および第2合金を別々に粉碎する場合と同様に、第1合金粉末および第2合金粉末の配合比率は、質量比で80対20以上97対3以下とするのが好ましく、より好ましくは質量比で90対10以上97対3以下である。

[0071] 本実施形態では、第1合金および第2合金は、相互に、合金組成が異なることが好ましい。たとえば第1合金に比較して、第2合金は、Ga、Cu、Coが多く含まれる。

[0072] 第2合金に含まれるGaの質量%は、好ましくは0.2%～20%、さらに好ましくは0.5%～10%である。第1合金はGaを含んでも含まなくてもかまわないが、第1合金にGaを含む場合、第1合金に含まれるGaの質量%は、0.3%以下であることが好ましい。第2合金に含まれるCoの質量%は、好ましくは1%～80%、さらに好ましくは3%～60%である。第1合金はCoを含んでも含まなくてもかまわないが、第1合金にCoを含む場合、第1合金に含まれるCoの質量%は、2%以下であることが好まし

い。第2合金に含まれるCuの質量％は、好ましくは0.2％～20％、さらに好ましくは0.5％～10％である。第1合金はCuを含んでも含まなくてもかまわないが、第1合金にCuを含む場合、第1合金に含まれるCuの質量％は、1.0％以下であることが好ましい。

[0073] [成形工程：ステップS14]

第1合金粉末と第2合金粉末とを混合した後、混合粉末を目的の形状に成形する（成形工程（ステップS14））。成形工程（ステップS14）では、第1合金粉末および第2合金粉末の混合粉末を、電磁石に抱かれた金型内に充填して加圧することによって、混合粉末を任意の形状に成形する。このとき、磁場を印加しながら行い、磁場印加によって原料粉末に所定の配向を生じさせ、結晶軸を配向させた状態で磁場中成形する。これにより成形体を得られる。得られる成形体は、特定方向に配向するので、より磁性の強い異方性を有するR-T-B系焼結磁石が得られる。

[0074] 成形時の加圧は、30MPa～300MPaで行うことが好ましい。印加する磁場は、950kA/m～1600kA/mであることが好ましい。印加する磁場は静磁場に限定されず、パルス状磁場とすることもできる。また、静磁場とパルス状磁場を併用することもできる。

[0075] なお、成形方法としては、上記のように混合粉末をそのまま成形する乾式成形のほか、原料粉末を油等の溶媒に分散させたスラリーを成形する湿式成形を適用することもできる。

[0076] 混合粉末を成形して得られる成形体の形状は特に限定されるものではなく、例えば直方体、平板状、柱状、リング状等、所望とするR-T-B系焼結磁石の形状に応じて任意の形状とすることができる。

[0077] [焼結工程：ステップS15]

磁場中で成形し、目的の形状に成形して得られた成形体を真空または不活性ガス雰囲気中で焼結し、R-T-B系焼結磁石を得る（焼結工程（ステップS15））。焼結温度は、組成、粉砕方法、粒度と粒度分布の違い等、諸条件により調整する必要があるが、成形体に対して、例えば、真空中また

は不活性ガスの存在下、 1000°C 以上 1200°C 以下で1時間以上48時間以下で加熱する処理を行うことにより焼結する。これにより、混合粉末が液相焼結を生じ、主相の体積比率が向上したR-T-B系焼結磁石（R-T-B系磁石の焼結体）が得られる。成形体を焼結した後は、生産効率を向上させる観点から焼結体は急冷することが好ましい。

[0078] [時効処理工程：ステップS16]

成形体を焼結した後、R-T-B系焼結磁石を時効処理する（時効処理工程（ステップS16））。焼結後、得られたR-T-B系焼結磁石を焼結時よりも低い温度で保持することなどによって、R-T-B系焼結磁石に時効処理を施す。時効処理は、例えば、 700°C 以上 900°C 以下の温度で10分から6時間、更に 500°C から 700°C の温度で10分から6時間加熱する2段階加熱や、 600°C 付近の温度で10分から6時間加熱する1段階加熱等、時効処理を施す回数に応じて適宜処理条件を調整する。このような時効処理によって、R-T-B系焼結磁石の磁気特性を向上させることができる。また、時効処理工程（ステップS16）は加工工程（ステップS18）や粒界拡散工程（ステップS19）の後に行ってもよい。

[0079] [冷却工程：ステップS17]

R-T-B系焼結磁石に時効処理を施した後、R-T-B系焼結磁石はArガス雰囲気中で急冷を行う（冷却工程（ステップS17））。これにより、本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石を得ることができる。冷却速度は、特に限定されるものではなく、 $30^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 以上とするのが好ましい。

[0080] [加工工程：ステップS18]

得られたR-T-B系焼結磁石は、必要に応じて所望の形状に加工してもよい（加工工程：ステップS18）。加工方法は、例えば切断、研削などの形状加工や、バレル研磨などの面取り加工などが挙げられる。

[0081] [粒界拡散工程：ステップS19]

加工されたR-T-B系焼結磁石の粒界に対して、さらに重希土類元素

を拡散させる工程を有してもよい（粒界拡散工程：ステップS 1 9）。粒界拡散は、塗布または蒸着等により重希土類元素を含む化合物をR-T-B系焼結磁石の表面に付着させた後、熱処理を行うことや、重希土類元素の蒸気を含む雰囲気中でR-T-B系焼結磁石に対して熱処理を行うことにより、実施することができる。これにより、R-T-B系焼結磁石の保磁力をさらに向上させることができる。

[0082] [表面処理工程：ステップS 2 0]

以上の工程により得られたR-T-B系焼結磁石は、めっきや樹脂被膜や酸化処理、化成処理などの表面処理を施してもよい（表面処理工程（ステップS 2 0））。これにより、耐食性をさらに向上させることができる。

[0083] なお、本実施形態では、加工工程（ステップS 1 8）、粒界拡散工程（ステップS 1 9）、表面処理工程（ステップS 2 0）を行っているが、これらの各工程は必ずしも行う必要はない。

[0084] このように、本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石を製造し、処理を終了する。また、着磁させることで、磁石製品が得られる。

[0085] 以上のようにして得られる本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石は、粒界中にR-Ga-Co-Cu-N濃縮部を有することから、優れた耐食性を有すると共に、良好な磁気特性を有する。

[0086] このようにして得られる本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石は、モータなど回転機用の磁石に用いた場合、耐食性が高いため長期に渡って使用することができ、信頼性の高いR-T-B系焼結磁石を得ることができる。本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石は、例えば、ロータ表面に磁石を取り付けた表面磁石型（Surface Permanent Magnet：SPM）回転機、インナーロータ型のブラシレスモータのような内部磁石埋込型（Interior Permanent Magnet：IPM）回転機、PRM（Permanent magnet Reluctance Motor）などの磁石として好適に用いられる。具体的には、本実施形態に係るR-T-B系焼結磁石は、ハードディスクドライブのハードディスク

ク回転駆動用スピンドルモータやボイスコイルモータ、電気自動車やハイブリッドカー用モータ、自動車の電動パワーステアリング用モータ、工作機械のサーボモータ、携帯電話のバイブレータ用モータ、プリンタ用モータ、発電機用モータ等の用途として好適に用いられる。

[0087] <回転機>

次に、本実施形態に係る R-T-B 系焼結磁石を回転機に用いた好適な実施形態について説明する。ここでは、本実施形態に係る R-T-B 系焼結磁石を SPM 回転機に適用した一例について説明する。図 3 は、SPM 回転機の一実施形態の構成を簡略に示す断面図であり、図 3 に示すように、SPM 回転機 10 は、ハウジング 11 内に、円柱状のロータ 12 と、円筒状のステータ 13 と、回転軸 14 とを有する。回転軸 14 はロータ 12 の横断面の中心を貫通している。

[0088] ロータ 12 は、鉄材等からなる円柱状のロータコア（鉄芯）15 と、そのロータコア 15 の外周面に所定間隔で設けられた複数の永久磁石 16 と、永久磁石 16 を収容する複数の磁石挿入スロット 17 とを有する。永久磁石 16 には本実施形態に係る R-T-B 系焼結磁石が用いられる。この永久磁石 16 は、ロータ 12 の円周方向に沿って各々の磁石挿入スロット 17 内に N 極と S 極が交互に並ぶように複数設けられている。これによって、円周方向に沿って隣り合う永久磁石 16 は、ロータ 12 の径方向に沿って互いに逆の方向の磁力線を発生する。

[0089] ステータ 13 は、その筒壁（周壁）の内部の周方向にロータ 12 の外周面に沿って所定間隔で設けられた複数のステータコア 18 とスロットル 19 とを有している。この複数のステータコア 18 はステータ 13 の中心に向けてロータ 12 に対向するように設けられる。また、各々のスロットル 19 内にはコイル 20 が巻装されている。永久磁石 16 とステータコア 18 とは互いに対向するように設けられている。

[0090] ロータ 12 は、回転軸 14 と共にステータ 13 内の空間内で回転可能に設けられている。ステータ 13 は電磁気的作用によってロータ 12 にトルクを

与え、ロータ 12 は円周方向に回転する。

[0091] SPM回転機 10 は、永久磁石 16 として本実施形態に係る R-T-B 系焼結磁石を用いている。永久磁石 16 は、耐食性を有しつつ高い磁気特性を有するため、SPM回転機 10 は、回転機のトルク特性など回転機の性能を向上させることができ、長期間に亘って高出力を有することができ、信頼性に優れる。

[0092] なお、本発明は、上述した実施形態に限定されるものではなく、本発明の範囲内で種々に改変することができる。

実施例

[0093] 以下、実施例により発明をより詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

[0094] (実施例 1)

まず、表 1 に示す磁石組成 I を有する焼結磁石が得られるように、ストリップキャスト法により原料合金を準備した。原料合金としては、主に磁石の主相を形成する第 1 合金 A と、主に粒界を形成する第 2 合金 a の 2 種類を、表 1 に示す組成でそれぞれ作製して準備した。なお、表 1 (後述する表 2 も同様) では、b a l. は、各合金の全体組成を 100 質量%とした場合の残りを示し、(T. R E) は、希土類の合計質量%を示す。

[0095]

[表1]

	組成(質量%)								質量比
	Nd	Dy	(T. RE)	Co	Ga	Al	Cu	B	Fe
第1合金A	30.00	0.00	30.00	0.50	0.00	0.20	0.00	0.95	bal.
第2合金a	30.00	20.00	50.00	10.00	6.00	0.20	3.00	0.00	bal.
磁石組成I	30.00	1.00	31.00	0.98	0.30	0.20	0.15	0.90	bal.

[0096] 次いで、これらの原料合金に対してそれぞれ室温で水素を吸蔵させた後、第1合金は、Ar雰囲気下で、第2合金は、300ppmの窒素ガスを含んだAr雰囲気下で、それぞれ600℃、1時間の脱水素を行う水素粉碎処理

(粗粉碎)を行った。特に、第2合金を窒素ガスを含んだAr雰囲気下で水素粉碎処理することにより、第2合金と窒素とを反応させた。

[0097] なお、本実施例では、この水素粉碎処理から焼結までの各工程（微粉碎および成形）を、50ppm未満の酸素濃度のAr雰囲気下で行った（以下の実施例および比較例において同じ）。

[0098] 次に、それぞれの合金に対して、水素粉碎後微粉碎を行う前に粗粉碎粉末に粉碎助剤として、ステアリン酸亜鉛0.1質量%を添加し、ナウタミキサを用いて混合した。その後、ジェットミルを用いて微粉碎を行い、平均粒径が4.0μm程度の微粉碎粉末とした。

[0099] その後、ナウタミキサを用いて、第1合金の微粉碎粉末と第2合金の微粉碎粉末を95:5の重量割合で混合し、R-T-B系焼結磁石の原料粉末である混合粉末を調製した。

[0100] 得られた混合粉末を、電磁石中に配置された金型内に充填し、1200kA/mの磁場を印加しながら120MPaの圧力を加える磁場中成形を行い、成形体を得た。

[0101] その後、得られた成形体を、真空中1060℃で4時間保持して焼結した後、急冷して、表1に示す磁石組成1を有する焼結体（R-T-B系焼結磁石）を得た。そして、得られた焼結体を、850℃で1時間、および、540℃で2時間（ともにAr雰囲気下）の2段階の時効処理を施し、実施例1のR-T-B系焼結磁石を得た。

[0102] （実施例2）

表2に示す磁石組成11を有する焼結磁石が得られるように、原料合金として、表2に示す組成の第2合金bを用いた以外は、実施例1と同様にし、実施例2のR-T-B系焼結磁石を得た。

[0103]

[表2]

	組成(質量%)									質量比
	Nd	Dy	(T. RE)	Co	Ga	Al	Cu	B	Fe	
第1合金A	30.00	0.00	30.00	0.50	0.00	0.20	0.00	0.95	bal.	95
第2合金b	30.00	20.00	50.00	20.00	9.00	0.20	5.00	0.00	bal.	5
磁石組成Ⅱ	30.00	1.00	31.00	1.48	0.45	0.20	0.25	0.90	bal.	

[0104] (比較例1)

第2合金を、窒素ガスを含まないAr雰囲気下で水素粉砕処理した以外は、実施例1と同様にして、比較例1のR-T-B系焼結磁石を得た。

[0105] <評価>

[組成分析]

実施例 1、2 および比較例 1 で得られた R-T-B 系焼結磁石について、蛍光 X 線分析法および誘導結合プラズマ質量分析法（ICP-MS 法）により組成分析した。その結果、いずれの R-T-B 系焼結磁石も仕込み組成（表 1 および 2 にそれぞれ示す組成）と略一致していることが確認できた。

[0106] [組織評価]

実施例 1、2 および比較例 1 で得られた R-T-B 系焼結磁石について、断面の表面をイオンミリングで削り、最表面の酸化等の影響を除いた後、R-T-B 系焼結磁石の断面を EPMA（電子線マイクロアナライザー：Electron Probe Micro Analyzer）で元素分布を観察し、分析した。具体的には、50 μ m 角の領域について、Nd、Ga、Co、Cu、および N の各元素のマッピング分析を行い、Nd、Ga、Co、Cu、および N の各元素が主相粒よりも濃く分布する部分を観察した。

[0107] その結果、実施例 1、2 の R-T-B 系焼結磁石では、粒界に、Nd、Ga、Co、Cu、N の各元素の濃度が主相結晶粒内よりも濃く分布する部分（R-Ga-Co-Cu-N 濃縮部）が存在することが確認された。しかし、比較例 1 の R-T-B 系焼結磁石の粒界には、R-Ga-Co-Cu-N 濃縮部は確認できなかった。

[0108] さらに、粒界に R-Ga-Co-Cu-N 濃縮部が観察された実施例 1、2 の R-T-B 系焼結磁石については、R-Ga-Co-Cu-N 濃縮部（5 点）と、主相の粒内（1 点）についてそれぞれ、EPMA での定量分析を行った。結果を表 3 に示す。

[0109] なお、表中の組成比とは、Nd、Fe、Ga、Co、Cu、N の原子数の合計を 100 としたときの各元素の割合である。

[0110]

[表3]

		組成比 (%)					
		Nd	Fe	Ga	Co	Cu	N
実施例 1	粒界相 点 1	60	13	12	5	6	4
	粒界相 点 2	59	12	12	6	6	5
	粒界相 点 3	58	14	11	5	7	5
	粒界相 点 4	59	14	11	5	8	3
	粒界相 点 5	58	15	9	7	5	6
	主相	13	86	0	1	0	0
実施例 2	粒界相 点 1	58	13	15	5	6	3
	粒界相 点 2	58	16	13	5	6	2
	粒界相 点 3	58	12	16	6	6	3
	粒界相 点 4	60	11	14	7	7	1
	粒界相 点 5	56	15	15	4	7	3
	主相	13	85	0	2	0	0

[0111] 表 3 に示すように、E P M A での定量分析においても、実施例 1、2 の R

－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の粒界中には、Nd、Ga、Co、Cu、Nの各元素の濃度が主相結晶粒内よりも濃く分布する部分（R－Ga－Co－Cu－N濃縮部）が存在することが確認された。

[0112] [磁気特性]

実施例１、２および比較例１で得られたＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石の磁気特性をＢ－Ｈトレーサーを用いて測定した。磁気特性として、残留磁束密度 B_r と保磁力 H_{cJ} とを測定した。結果を表４に示す。

[0113] [耐食性]

実施例１、２および比較例１で得られたＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石を、 $13\text{ mm} \times 8\text{ mm} \times 2\text{ mm}$ の板状に加工した。この板状磁石を 120°C 、２気圧、相対湿度 100% の飽和水蒸気雰囲気中に 200 時間放置し、腐食による重量減少量を評価した。結果を表４に示す。

[0114] [表４]

	磁気特性		飽和PCT200時間後の 重量減少量 (mg/cm^2)
	B_r (mT)	H_{cJ} (kA/m)	
実施例１	1371	1542	1.4
実施例２	1365	1594	0.6
比較例１	1369	1532	21.3

[0115] 表４に示されるように、実施例１、２のＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石は、比較例１のＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石と同等の磁気特性を有するとともに、いずれも比較例１の磁石と比較して、大幅に耐食性が向上していることが確認された。

[0116] (実施例３)

表５に示す磁石組成ⅠⅠⅠを有する焼結磁石が得られるように、原料合金として、表５に示す組成の第１合金Ｃおよび第２合金ｃを用いた以外は、実施例１と同様にして、実施例３のＲ－Ｔ－Ｂ系焼結磁石を得た。

[0117]

[表5]

	組成(質量%)										質量比
	Nd	Pr	Dy	(T. RE)	Co	Ga	Al	Cu	Zr	B	Fe
第1合金C	23.50	6.50	0.00	30.00	0.00	0.00	0.03	0.00	1.67	1.05	bal.
第2合金c	30.00	10.00	0.00	40.00	15.00	8.00	0.03	4.00	0.00	0.00	bal.
磁石組成III	24.15	6.85	0.00	31.00	1.50	0.80	0.03	0.40	1.50	0.95	bal.

[0118] (実施例4)

表6に示す磁石組成ⅠⅤを有する焼結磁石が得られるように、原料合金として、表6に示す組成の第1合金Dおよび第2合金dを用いた以外は、実施例1と同様にして、実施例4のR-T-B系焼結磁石を得た。

[0119]

[表6]

	組成(質量%)										質量比
	Nd	Pr	Dy	(T. RE)	Co	Ga	Al	Cu	Zr	B	Fe
第1合金D	25.20	7.02	0.00	32.22	1.67	0.22	0.10	1.00	0.00	0.83	bal.
第2合金d	30.00	10.00	0.00	40.00	15.00	8.00	0.10	6.00	0.00	0.00	bal.
磁石組成IV	25.68	7.32	0.00	33.00	3.00	1.00	0.10	1.50	0.00	0.75	bal.

[0120] (実施例 5)

表 7 に示す磁石組成 V を有する焼結磁石が得られるように、原料合金として、表 7 に示す組成の第 1 合金 E および第 2 合金 e を用いた以外は、実施例 1 と同様にして、実施例 5 の R-T-B 系焼結磁石を得た。

[0121]

[表7]

	組成(質量%)										質量比
	Nd	Pr	Dy	(T. RE)	Co	Ga	Al	Cu	Zr	B	Fe
第1合金E	29.00	0.00	0.20	29.20	0.00	0.00	0.62	0.00	0.10	0.95	bal.
第2合金e	40.00	0.00	0.00	40.00	10.00	3.20	0.10	1.80	0.00	0.00	bal.
磁石組成V	29.33	0.00	0.19	29.52	0.30	0.10	0.60	0.05	0.10	0.92	bal.

[0122] (実施例 6)

表 8 に示す磁石組成 V I を有する焼結磁石が得られるように、原料合金として、表 8 に示す組成の第 1 合金 F および第 2 合金 f を用いた以外は、実施例 1 と同様にして、実施例 6 の R-T-B 系焼結磁石を得た。

[0123]

[表8]

	組成(質量%)										質量比
	Nd	Pr	Dy	(T. RE)	Co	Ga	Al	Cu	Zr	B	Fe
第1合金F	23.70	7.90	0.00	31.60	0.20	0.10	0.25	0.00	0.40	0.88	bal.
第2合金f	30.00	10.00	0.00	40.00	15.00	10.00	0.25	6.00	0.00	0.00	bal.
磁石組成VI	24.02	8.01	0.00	32.02	0.94	0.60	0.25	0.30	0.38	0.84	bal.

[0124] (比較例 2)

第 2 合金 c を、窒素ガスを含まない A r 雰囲気下で水素粉砕処理した以外は、実施例 3 と同様にして、比較例 2 の R-T-B 系焼結磁石を得た。

[0125] (比較例 3)

第 2 合金 d を、窒素ガスを含まない A r 雰囲気下で水素粉砕処理した以外は、実施例 4 と同様にして、比較例 3 の R-T-B 系焼結磁石を得た。

[0126] (比較例 4)

第 2 合金 e を、窒素ガスを含まない A r 雰囲気下で水素粉砕処理した以外は、実施例 5 と同様にして、比較例 4 の R-T-B 系焼結磁石を得た。

[0127] (比較例 5)

第 2 合金 f を、窒素ガスを含まない A r 雰囲気下で水素粉砕処理した以外は、実施例 6 と同様にして、比較例 5 の R-T-B 系焼結磁石を得た。

[0128] <評価>

[組成分析]

実施例 3～6 および比較例 2～5 で得られた R-T-B 系焼結磁石について、蛍光 X 線分析法および誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS 法) により組成分析した。その結果、いずれの R-T-B 系焼結磁石も仕込み組成 (表 5～表 8 にそれぞれ示す組成) と略一致していることが確認できた。

[0129] [組織評価]

実施例 3～6 および比較例 2～5 で得られた R-T-B 系焼結磁石について、断面の表面をイオンミリングで削り、最表面の酸化等の影響を除いた後、R-T-B 系焼結磁石の断面を EPMA (電子線マイクロアナライザー: Electron Probe Micro Analyzer) で元素分布を観察し、分析した。具体的には、50 μ m 角の領域について、Nd、Ga、Co、Cu、および N の各元素のマッピング分析を行い、Nd、Ga、Co、Cu、および N の各元素が主相粒よりも濃く分布する部分を観察した。

[0130] その結果、実施例3～6のR-T-B系焼結磁石では、粒界に、Nd, Ga, Co, Cu、Nの各元素の濃度が主相結晶粒内よりも濃く分布する部分（R-Ga-Co-Cu-N濃縮部）が存在することが確認された。しかし、比較例2～5のR-T-B系焼結磁石の粒界には、R-Ga-Co-Cu-N濃縮部は確認できなかった。

[0131] さらに、粒界にR-Ga-Co-Cu-N濃縮部が観察された実施例3～6のR-T-B系焼結磁石については、さらにR-Ga-Co-Cu-N濃縮部（5点）と、主相の粒内（1点）についてそれぞれ、EPMAでの定量分析を行った。結果を表9に示す。

[0132] なお、表中の組成比とは、Nd, Pr, Dy, Fe, Ga, Co, Cu, Nの原子数の合計を100としたときの各元素の割合である。

[0133]

[表9]

		組成比(%)					
		Nd+Pr+Dy	Fe	Ga	Co	Cu	N
実施例3	粒界相 点1	57	7	10	7	6	13
	粒界相 点2	58	10	9	6	5	12
	粒界相 点3	56	9	11	8	4	12
	粒界相 点4	57	8	11	7	6	11
	粒界相 点5	59	7	10	9	5	10
	主相	13	85	0	2	0	0
実施例4	粒界相 点1	65	8	11	8	6	2
	粒界相 点2	64	9	12	7	5	3
	粒界相 点3	65	10	10	6	7	2
	粒界相 点4	63	7	11	8	7	4
	粒界相 点5	68	10	10	6	5	1
	主相	13	84	0	3	0	0
実施例5	粒界相 点1	61	17	8	1	6	7
	粒界相 点2	61	15	9	1	5	9
	粒界相 点3	62	16	10	1	5	6
	粒界相 点4	61	18	7	1	5	8
	粒界相 点5	62	16	8	1	6	7
	主相	13	87	0	0	0	0
実施例6	粒界相 点1	59	13	12	5	6	5
	粒界相 点2	60	13	11	5	5	6
	粒界相 点3	60	11	10	8	7	4
	粒界相 点4	59	15	11	4	4	7
	粒界相 点5	58	14	11	6	6	5
	主相	13	86	0	1	0	0

[0134] 表9に示すように、EPMAでの定量分析においても、実施例3～6のR-T-B系焼結磁石の粒界中には、R（Nd+Pr+Dyの合計）、Ga、Co、Cu、Nの各元素の濃度が主相結晶粒内よりも濃く分布する部分（R-Ga-Co-Cu-N濃縮部）が存在することが確認された。

[0135] [磁気特性]

実施例3～6および比較例2～5で得られたR-T-B系焼結磁石の磁

気特性を、B-Hトレーサーを用いて測定した。磁気特性として、残留磁束密度 B_r と保磁力 H_{cJ} とを測定した。結果を表10に示す。

[0136] [耐食性]

実施例3～6および比較例2～5で得られたR-T-B系焼結磁石を、
13mm×8mm×2mmの板状に加工した。この板状磁石を120℃、2
気圧、相対湿度100%の飽和水蒸気雰囲気中に200時間放置し、腐食に
よる重量減少量を評価した。結果を表10に示す。

[0137] [表10]

	磁気特性		飽和PCT200時間後の 重量減少量 (mg/cm ²)
	Br (mT)	HcJ (kA/m)	
実施例3	1338	1320	1.0
実施例4	1286	1432	2.1
実施例5	1401	1192	1.2
実施例6	1345	1580	0.6
比較例2	1335	1306	13.6
比較例3	1281	1420	22.6
比較例4	1398	1170	14.2
比較例5	1340	1565	10.7

[0138] 表10に示されるように、実施例3～6のR-T-B系焼結磁石は、比較
例2～5のR-T-B系焼結磁石と同等の磁気特性を有するとともに、いず
れも比較例2～5の磁石とそれぞれ比較して、大幅に耐食性が向上している
ことが確認された。

符号の説明

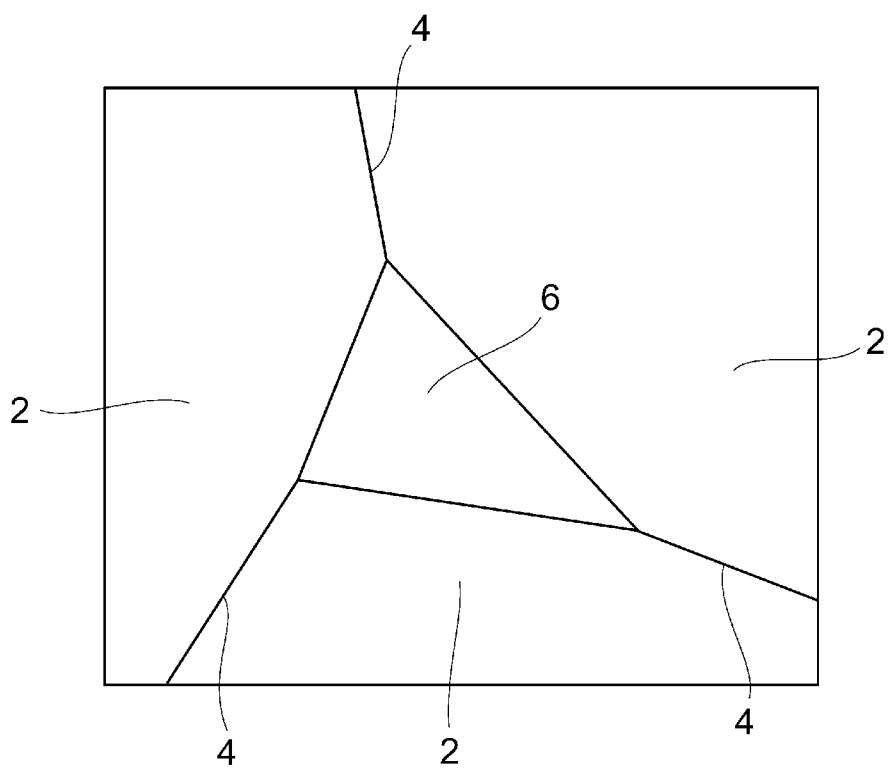
- [0139]
- 2 粒子（主相）
 - 4 2粒子粒界
 - 6 三重点
 - 10 SPM回転機
 - 11ハウジング
 - 12ロータ
 - 13ステータ

- 1 4 回転軸
- 1 5 ロータコア（鉄芯）
- 1 6 永久磁石
- 1 7 磁石挿入スロット
- 1 8 ステータコア
- 1 9 スロットル
- 2 0 コイル

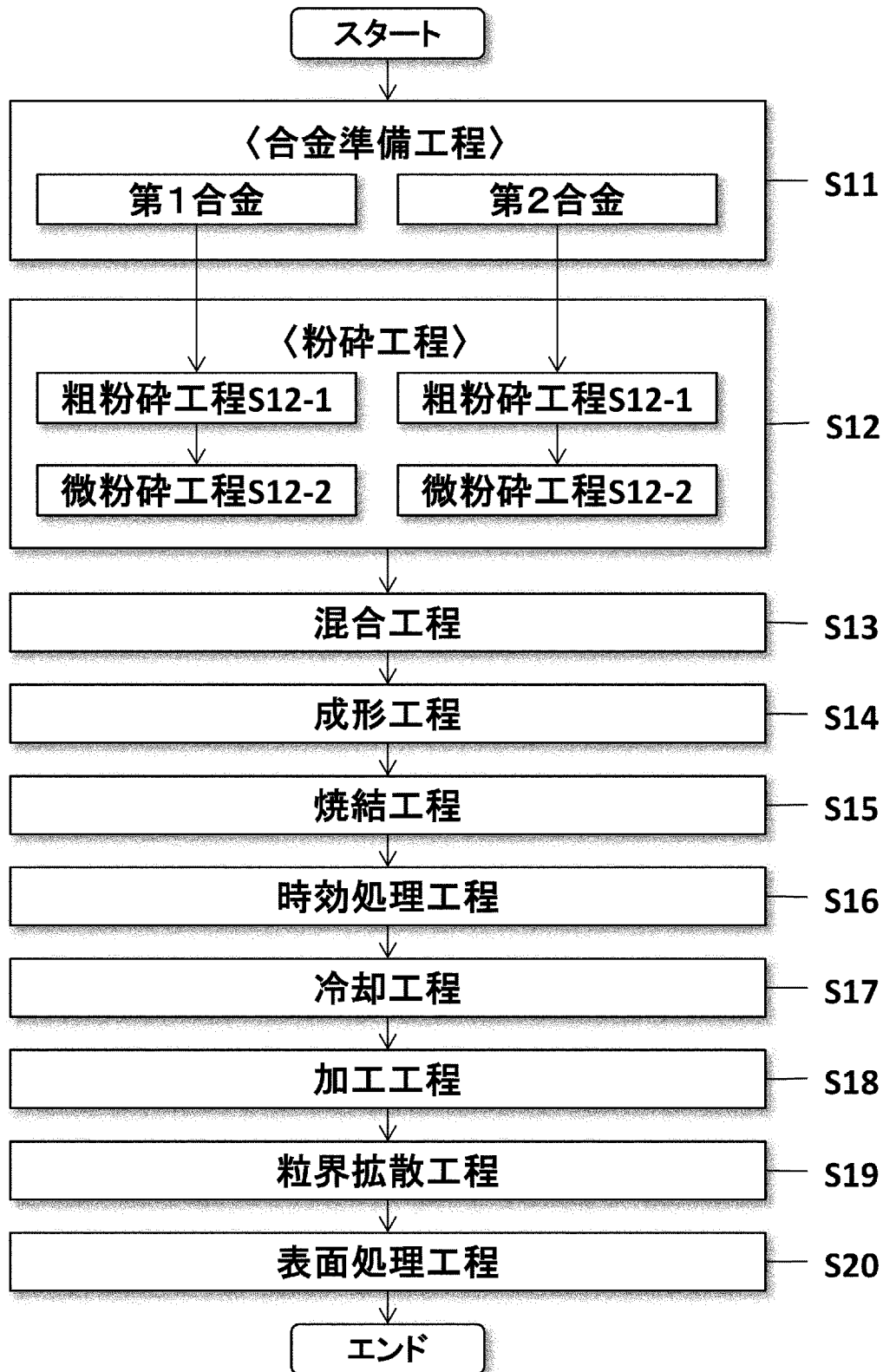
請求の範囲

- [請求項1] R 2 T 1 4 B 結晶粒を有する R-T-B 系焼結磁石であって、
隣り合う 2 つ以上の前記 R 2 T 1 4 B 結晶粒によって形成された粒
界中に、前記 R 2 T 1 4 B 結晶粒内よりも、R、Ga、Co、Cu、
N の濃度がともに高い R-Ga-Co-Cu-N 濃縮部を有すること
を特徴とする R-T-B 系焼結磁石。
- [請求項2] 請求項 1 記載の R-T-B 系焼結磁石を備える回転機。

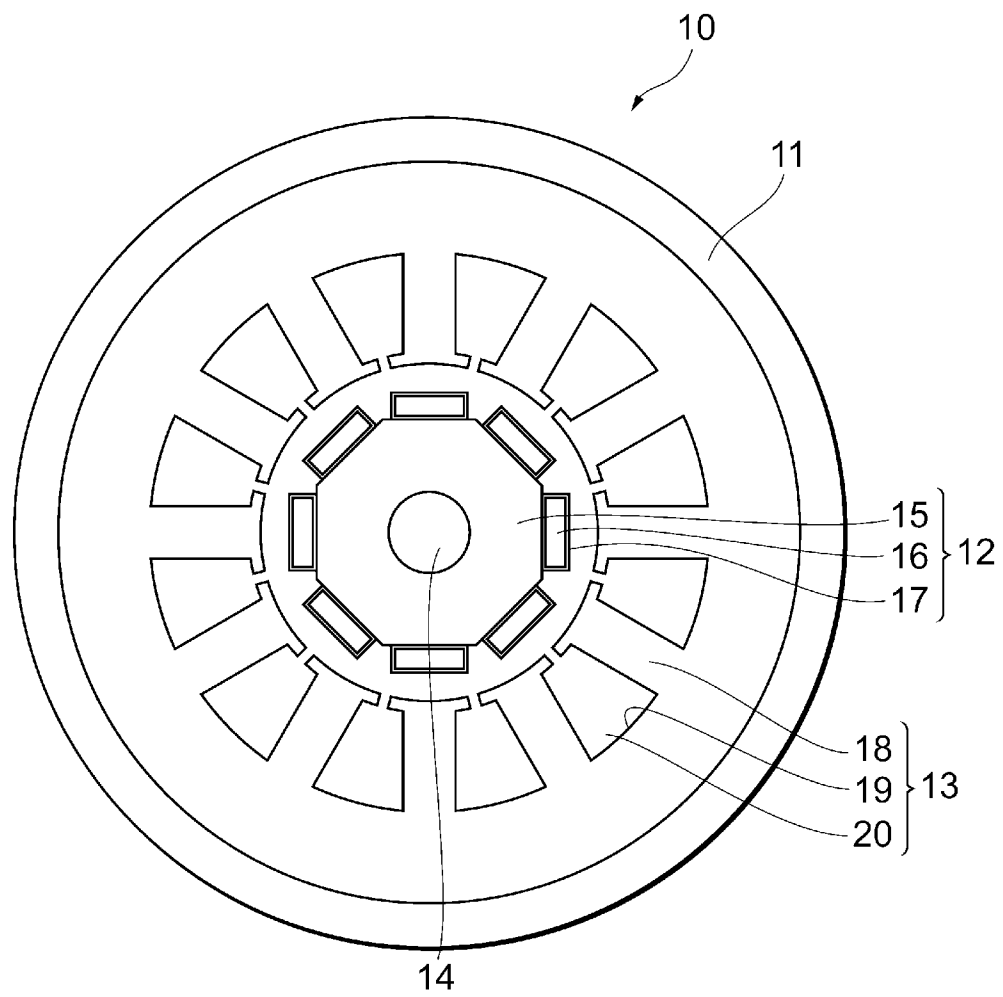
[図1]



[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/070968

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01F1/08(2006.01)i, H01F1/057(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)

H01F1/08, H01F1/057, 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	1996-2014
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2014	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2014

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	JP 7-272914 A (TDK Corp.), 20 October 1995 (20.10.1995), entire text; all drawings & US 5641363 A & US 5834663 A	1-2
Y	JP 2011-258935 A (Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.), 22 December 2011 (22.12.2011), entire text; all drawings & US 2011/0279205 A1 & EP 2387044 A1 & KR 10-2011-0126059 A & CN 102360654 A & TW 201222575 A & RU 2011119505 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
29 September, 2014 (29.09.14)

Date of mailing of the international search report
07 October, 2014 (07.10.14)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/070968

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2012-28704 A (TDK Corp.), 09 February 2012 (09.02.2012), entire text; all drawings & US 2012/0024429 A1 & EP 2413332 A1 & CN 102376407 A	1-2
A	JP 2011-210823 A (TDK Corp.), 20 October 2011 (20.10.2011), entire text; all drawings (Family: none)	1-2
A	WO 2004/029995 A1 (TDK Corp.), 08 April 2004 (08.04.2004), entire text; all drawings & JP 4076175 B & JP 4076176 B & JP 4076177 B & JP 4076178 B & JP 4076179 B & JP 4763290 B & US 2004/0118484 A1 & US 2004/0166013 A1 & US 2004/0177899 A1 & US 2004/0187969 A1 & EP 1460652 A1 & EP 1460650 A1 & EP 1460651 A1 & EP 1460653 A1 & EP 1465212 A1 & EP 1465213 A1 & WO 2004/029996 A1 & WO 2004/029997 A1 & WO 2004/029998 A1 & WO 2004/029999 A1 & WO 2004/030000 A1 & DE 60311421 D & DE 60311960 D & DE 60311421 T & DE 60311960 T & DE 60317460 D & DE 60317767 D & DE 60319339 D & DE 60319800 D & DE 60317460 T & DE 60317767 T & DE 60319339 T & DE 60319800 T & CN 1572006 A & CN 1557004 A & CN 1557005 A & CN 1557006 A & CN 1572004 A & CN 1572005 A	1-2
A	JP 2006-165008 A (TDK Corp.), 22 June 2006 (22.06.2006), entire text; all drawings (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. H01F1/08(2006.01)i, H01F1/057(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. H01F1/08, H01F1/057, 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 4 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 4 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 4 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	JP 7-272914 A（ティーディーケー株式会社）1995.10.20, 全文、全図 & US 5641363 A & US 5834663 A	1 - 2
Y	JP 2011-258935 A（信越化学工業株式会社）2011.12.22, 全文、全図 & US 2011/0279205 A1 & EP 2387044 A1 & KR 10-2011-0126059 A & CN 102360654 A & TW 201222575 A & RU 2011119505 A	1 - 2
A	JP 2012-28704 A（TDK株式会社）2012.02.09, 全文、全図 & US 2012/0024429 A1 & EP 2413332 A1 & CN 102376407 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

2 9 . 0 9 . 2 0 1 4

国際調査報告の発送日

0 7 . 1 0 . 2 0 1 4

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）

井上 健一

5 D

9 3 7 3

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

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 2011-210823 A (TDK株式会社) 2011. 10. 20, 全文、全図 (ファミリーなし)	1 - 2
A	WO 2004/029995 A1 (TDK株式会社) 2004. 04. 08, 全文、全図 & JP 4076175 B & JP 4076176 B & JP 4076177 B & JP 4076178 B & JP 4076179 B & JP 4763290 B & US 2004/0118484 A1 & US 2004/0166013 A1 & US 2004/0177899 A1 & US 2004/0187969 A1 & EP 1460652 A1 & EP 1460650 A1 & EP 1460651 A1 & EP 1460653 A1 & EP 1465212 A1 & EP 1465213 A1 & WO 2004/029996 A1 & WO 2004/029997 A1 & WO 2004/029998 A1 & WO 2004/029999 A1 & WO 2004/030000 A1 & DE 60311421 D & DE 60311960 D & DE 60311421 T & DE 60311960 T & DE 60317460 D & DE 60317767 D & DE 60319339 D & DE 60319800 D & DE 60317460 T & DE 60317767 T & DE 60319339 T & DE 60319800 T & CN 1572006 A & CN 1557004 A & CN 1557005 A & CN 1557006 A & CN 1572004 A & CN 1572005 A	1 - 2
A	JP 2006-165008 A (TDK株式会社) 2006. 06. 22, 全文、全図 (ファミリーなし)	1 - 2