



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2025년01월31일
(11) 등록번호 10-2761377
(24) 등록일자 2025년01월23일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
H01F 1/057 (2006.01) B22F 3/24 (2006.01)
B22F 9/04 (2006.01) C21D 6/00 (2006.01)
C22C 38/00 (2006.01) H01F 41/02 (2006.01)
(52) CPC특허분류
H01F 1/0577 (2013.01)
B22F 3/24 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2024-7002522
(22) 출원일자(국제) 2021년08월04일
심사청구일자 2024년02월01일
(85) 번역문제출일자 2024년01월23일
(65) 공개번호 10-2024-0028440
(43) 공개일자 2024년03월05일
(86) 국제출원번호 PCT/JP2021/028943
(87) 국제공개번호 WO 2023/012929
국제공개일자 2023년02월09일
(56) 선행기술조사문헌
KR101336744 B1

(73) 특허권자
미쓰비시덴키 가부시카가이샤
일본국 도쿄도 지요다쿠 마루노우치 2초메 7반 3고
(72) 발명자
이와사키 아키토
일본 도쿄도 지요다쿠 마루노우치 2초메 7반 3고
미쓰비시덴키 가부시카가이샤 내
나카무라 야스타카
일본 도쿄도 지요다쿠 마루노우치 2초메 7반 3고
미쓰비시덴키 가부시카가이샤 내
기타노 다쓰야
일본 도쿄도 지요다쿠 마루노우치 2초메 7반 3고
미쓰비시덴키 가부시카가이샤 내
(74) 대리인
제일특허법인(유)

전체 청구항 수 : 총 9 항

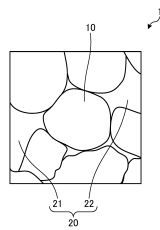
심사관 : 장영주

(54) 발명의 명칭 **희토류 소결 자석 및 희토류 소결 자석의 제조 방법, 회전자, 및 회전기**

(57) 요약

본 개시는, 원소 M은 Cu, Al 및 Ga의 군으로부터 선택되는 1종 이상의 원소로 하고, 일반식 (Nd, La, Sm)-Fe-B-M을 만족시키는 희토류 소결 자석(1)으로서, R₂Fe₁₄B 결정 구조를 기본으로 하는 결정립을 포함하는 주상(10)과, (Nd, La, Sm)-O로 표시되는 산화물상을 주성분으로 하는 결정성의 제 1 부상(21)과, (Nd, La)-O로 표시되는 산화물상을 주성분으로 하는 결정성의 제 2 부상(22)을 갖는다. Sm의 농도는, 제 2 부상(22)에 비해서 제 1 부상(21) 쪽이 높고, 원소 M의 농도는, 제 1 부상(21)에 비해서 제 2 부상(22) 쪽이 높다.

대표도 - 도1



(52) CPC특허분류

B22F 9/04 (2013.01)

C21D 6/00 (2013.01)

C22C 38/005 (2013.01)

H01F 41/0293 (2013.01)

B22F 2003/248 (2013.01)

B22F 2009/041 (2013.01)

B22F 2301/355 (2013.01)

B22F 2301/45 (2013.01)

명세서

청구범위

청구항 1

원소 M은 Cu, Al 및 Ga의 군으로부터 선택되는 1종 이상의 원소로 하고, 일반식 (Nd, La, Sm)-Fe-B-M을 만족시키는 희토류 소결 자석으로서,

$R_2Fe_{14}B$ 결정 구조를 기본으로 하는 결정립을 포함하는 주상(主相)과,

(Nd, La, Sm)-O로 표시되는 산화물상(氧化物相)을 포함하는 결정성의 제 1 부상(副相)과,

(Nd, La)-O로 표시되는 산화물상을 포함하는 결정성의 제 2 부상

을 갖고,

상기 제 1 부상 및 상기 제 2 부상으로 이루어지는 결정성의 부상에 편석된 Sm의 농도는, 상기 주상의 Sm의 농도보다도 높고,

Sm의 농도는, 상기 제 2 부상에 비해서 상기 제 1 부상 쪽이 높으며,

상기 원소 M의 농도는, 상기 제 1 부상에 비해서 상기 제 2 부상 쪽이 높은 것을 특징으로 하는 희토류 소결 자석.

청구항 2

제 1 항에 있어서,

상기 제 1 부상 및 상기 제 2 부상에 있어서의 La의 농도의 합은, 상기 주상에 있어서의 La의 농도 이상이고,

상기 제 1 부상 및 상기 제 2 부상에 있어서의 Sm의 농도의 합은, 상기 주상에 있어서의 Sm의 농도 이상인 것을 특징으로 하는 희토류 소결 자석.

청구항 3

제 1 항 또는 제 2 항에 있어서,

상기 제 1 부상에 있어서의 La의 농도는, 상기 제 2 부상에 있어서의 La의 농도 이상인 것을 특징으로 하는 희토류 소결 자석.

청구항 4

제 1 항 또는 제 2 항에 있어서,

Nd, La 및 Sm의 조성 비율을 각각 a, b 및 c로 했을 때, $a > (b+c)$ 인 것을 특징으로 하는 희토류 소결 자석.

청구항 5

제 1 항 또는 제 2 항에 있어서,

상기 주상에 포함되는 La 농도를 X로 하고, 상기 제 1 부상에 포함되는 La 농도를 X_1 로 하고, 상기 제 2 부상에 포함되는 La 농도를 X_2 로 하고, 상기 주상에 포함되는 Sm 농도를 Y로 하고, 상기 제 1 부상에 포함되는 Sm 농도를 Y_1 로 하며, 상기 제 2 부상에 포함되는 Sm 농도를 Y_2 로 했을 때, $1 < (Y_1+Y_2)/Y < (X_1+X_2)/X$ 인 것을 특징으로 하는 희토류 소결 자석.

청구항 6

제 1 항 또는 제 2 항에 있어서,

Co, Zr, Ti, Pr, Nb, Dy, Tb, Mn, Gd 및 Ho의 군으로부터 선택되는 1종 이상의 첨가 원소 N을 추가로 포함하는

것을 특징으로 하는 희토류 소결 자석.

청구항 7

제 1 항 또는 제 2 항에 기재된 희토류 소결 자석의 제조 방법으로서,
 상기 희토류 소결 자석을 구성하는 원소를 포함하는 희토류 자석 합금의 원료를 용융시키는 용융 공정과,
 상기 용융 공정에서 용융 상태의 원료를 냉각하여 응고 합금을 얻는 제 1 차 냉각 공정과,
 상기 응고 합금을 추가로 냉각하여 희토류 자석 합금을 얻는 제 2 차 냉각 공정과,
 (Nd, La, Sm)-Fe-B-M을 만족시키는 상기 희토류 자석 합금을 분쇄하여, 희토류 자석 합금의 분말을 얻는 분쇄 공정과,
 상기 희토류 자석 합금의 분말을 성형하는 것에 의해 성형체를 조제하는 성형 공정과,
 상기 성형체를 900℃ 이상 1300℃ 이하의 범위 내의 소결 온도에서, 0.1시간 이상 10시간 이하의 범위 내의 시간, 유지하는 것에 의해 소결체를 조제하는 소결 공정과,
 상기 소결체를 상기 소결 온도 미만의 온도인 700℃ 이상 900℃ 미만의 범위 내의 제 1 차 시효 온도에서 0.1시간 이상 10시간 이하의 범위 내에서 유지하는 제 1 차 시효 공정과,
 상기 제 1 차 시효 공정에서 유지된 상기 소결체를 상기 제 1 차 시효 온도 미만의 온도인 450℃ 이상 700℃ 미만의 범위 내의 제 2 차 시효 온도에서 0.1시간 이상 10시간 이하의 범위 내에서 유지하는 제 2 차 시효 공정과,
 상기 제 2 차 시효 공정에서 유지된 상기 소결체를 상기 제 2 차 시효 온도 미만의 온도인 200℃ 이상 450℃ 미만의 범위 내에서 0.1시간 이상 5시간 이하의 범위 내에서 유지하는 냉각 공정을 포함하는 것을 특징으로 하는 희토류 소결 자석의 제조 방법.

청구항 8

회전자 철심과,
 상기 회전자 철심에 마련되는 제 1 항 또는 제 2 항에 기재된 희토류 소결 자석을 구비하는 것을 특징으로 하는 회전자.

청구항 9

제 8 항에 기재된 회전자와,
 상기 회전자가 배치되는 축의 내면에, 상기 회전자를 향해 돌출된 티스에 비치되는 권선을 갖고, 상기 회전자에 대향 배치되는 환상의 고정자를 구비하는 것을 특징으로 하는 회전기.

청구항 10

삭제

청구항 11

삭제

청구항 12

삭제

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 개시는, 희토류 원소를 포함하는 재료를 소결한 영구 자석인 희토류 소결 자석 및 희토류 소결 자석의 제조 방법, 회전자, 및 회전기에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 정방정 $R_2T_{14}B$ 금속간 화합물을 주상(主相)으로 하는 R-T-B계 영구 자석이 알려져 있다. 여기에서, 원소 R이 희토류 원소이고, 원소 T가 Fe(철) 또는 그의 일부가 Co(코발트)에 의해 치환된 Fe 등의 전이 금속 원소이고, B가 붕소이다. R-T-B계 영구 자석은, 산업용 모터를 비롯하여, 여러 가지의 고부가 가치인 부품에 이용되고 있다. 특히, 원소 R이 Nd(네오디뮴)인 Nd-Fe-B계 소결 자석은, 우수한 자기 특성을 갖기 때문에, 여러 가지의 부품에 이용되고 있다. 또한, 산업용 모터는, 100℃를 초과하는 고온 환경에서 사용되는 경우가 많기 때문에, Nd-T-B계 영구 자석에 Dy(디스프로슘) 등의 중(重)희토류 원소를 첨가하여, 보자력을 향상시키는 시도가 행해지고 있다.

[0003] 근년, Nd-Fe-B계 소결 자석의 생산량은 확대되고 있고, Nd, 및 Dy 및 Tb(테르븀) 등의 중희토류 원소의 소비량이 증가하고 있다. 그러나, Nd 및 중희토류 원소는, 고가임과 함께, 지역 편재성이 높아 조달 리스크가 있다. 이 때문에, Nd 및 중희토류 원소의 소비량을 줄이는 대책으로서, 원소 R에, Ce(세륨), La(란타넘), Sm(사마륨), Sc(스칸듐), Gd(가돌리늄), Y(이트륨) 및 Lu(루테튬) 등의 다른 희토류 원소를 사용하는 것이 생각된다. 그런데, Nd의 전부 또는 일부를 이들 원소로 대체한 경우, 자기 특성이 현저하게 저하되어 버리는 것이 알려져 있다. 그래서, 종래에는, 이들 원소를 Nd-Fe-B계 소결 자석의 제조에 사용한 경우에, 온도 상승에 수반하는 자기 특성의 저하를 억제할 수 있는 기술의 개발이 시도되고 있다.

[0004] 예를 들면, 특허문헌 1에는, 정방정 $R_2Fe_{14}B$ 결정 구조를 갖고, Nd, La 및 Sm의 균으로부터 선택되는 1종 이상의 원소와 Fe와 B를 주된 구성 원소로 하는 주상과, Nd, La 및 Sm의 균으로부터 선택되는 1종 이상의 원소와 O(산소)를 주된 구성 원소로 하는 결정성의 부상(副相)을 갖는 희토류 자석 합금이 개시되어 있다. 특허문헌 1에 기재된 희토류 자석 합금에서는, La는, 결정성의 부상에 편석되어 있고, Sm은, 주상 및 결정성의 부상에 편석 없이 분산되어 있다. 특허문헌 1에 기재된 희토류 자석 합금에서는, 상기의 조직 형태로 하는 것에 의해, 온도 상승에 수반하는 자기 특성의 저하를 억제하고 있다.

[0005] 특허문헌 2에는, R_aT_bX 로 나타나는 화합물을 포함하는 제 1 상과, 제 1 상의 결정립계에 존재하고 R_aT_bX 보다도 원소 R의 농도가 높은 입계상과, S_cM_d 로 나타나는 화합물의 단결정으로 이루어지는 제 2 상을 구비하는 희토류 자석이 개시되어 있다. 여기에서, 원소 R은, Nd를 포함하는 1종 이상의 희토류 원소이고, 원소 T는, Fe를 포함하는 1종 이상의 전이 금속 원소이며, 원소 X는, B 및 C(탄소)로부터 선택되는 1종 이상의 원소이다. 원소 S는, Sm을 포함하는 1종 이상의 희토류 원소이고, 원소 M은, Co를 포함하는 1종 이상의 전이 금속 원소이다. 특허문헌 2에 기재된 기술에 의하면, 고온하더라도 충분한 자기 특성을 갖는 희토류 자석이 얻어진다.

[0006] 특허문헌 3에는, 원소 R로서 경(輕)희토류 원소를 포함하는 R-T-B계 합금의 결정립으로 이루어지는 제 1 주상과, 원소 R로서 중희토류 원소를 포함하는 R-T-B계 합금의 결정립으로 이루어지는 제 2 주상과, 제 1 주상 및 제 2 주상을 구성하는 결정립의 표면을 둘러싸는 표면상과, 입계 삼중점에 존재하는 입계 합금상을 갖는 R-T-B계 소결 자석이 개시되어 있다. 여기에서, 원소 T는 Fe 또는 Fe의 일부를 Co로 치환한 것이다. 특허문헌 3에 기재된 R-T-B계 소결 자석에서는, 중희토류 원소의 농도는, 제 1 주상 및 입계 합금상에 있어서, 제 2 주상 및 표면상보다도 낮게 하고 있다. 특허문헌 3에 기재된 기술에 의하면, 높은 보자력을 부여하는 희토류 원소를 이용하여, 보자력을 효과적으로 향상시킬 수 있다.

선행기술문헌

특허문헌

- [0007] (특허문헌 0001) 국제공개 제2021/048916호
- (특허문헌 0002) 일본 특허공개 2021-9862호 공보
- (특허문헌 0003) 일본 특허공개 2018-174205호 공보

발명의 내용

해결하려는 과제

[0008] 그러나, 특허문헌 1에 기재된 희토류 자석 합금은, Sm이, 희토류 자석 합금 내의 주상 및 부상에 균일하게 분산되어 있기 때문에, 온도 상승에 수반하는 자기 특성의 저하를 억제할 수 있더라도, 실온에 있어서의 자기 특성의 향상에는 기여하지 않을 가능성이 있었다. 또한, 특허문헌 2에 기재된 희토류 자석은, 제 2 상은 단결정으로 구성되어 있고, 제 2 상에 존재하는 원소에 농도차는 없다. 즉, 제 2 상은, 희토류 자석에 분포하고 있지만, 어떤 위치에 있어서도 동일한 조성을 갖고, 균일한 농도 분포를 갖는 1종류의 화합물에 의해 형성되어 있다. 이 때문에, 특허문헌 2에 기재된 희토류 자석에 있어서도, 실온에 있어서의 자기 특성의 향상에 관해서 최적인 조직으로 되어 있지 않다. 즉, 자기 특성의 더한층의 개선의 여지가 있다는 문제가 있었다. 또한, 특허문헌 3에 기재된 R-T-B계 소결 자석에서는, 중희토류 원소를 반드시 포함하는 구성으로 되어 있기 때문에, 높은 보자력이 얻어지지만, 산업용 모터 등에 요구되는 잔류 자속 밀도는 얻어지지 않아, 자기 특성이 저하되어 버린다는 문제가 있었다. 이상과 같이, 실온에 있어서의 자기 특성의 향상과 온도 상승에 수반하는 자기 특성의 저하의 억제를 양립시킨 희토류 소결 자석이 요망되고 있었다.

[0009] 본 개시는, 상기를 감안하여 이루어진 것으로서, Nd 및 중희토류 원소의 사용을 억제하면서, 실온에 있어서의 자기 특성의 향상과 온도 상승에 수반하는 자기 특성의 저하의 억제를 실현할 수 있는 희토류 소결 자석을 얻는 것을 목적으로 한다.

과제의 해결 수단

[0010] 전술한 과제를 해결하여, 목적을 달성하기 위해서, 본 개시는, 원소 M은 Cu, Al 및 Ga의 군으로부터 선택되는 1종 이상의 원소로 하고, 일반식 (Nd, La, Sm)-Fe-B-M을 만족시키는 희토류 소결 자석으로서, R₂Fe₁₄B 결정 구조를 기본으로 하는 결정립을 포함하는 주상과, (Nd, La, Sm)-O로 표시되는 산화물상(酸化物相)을 주성분으로 하는 결정성의 제 1 부상과, (Nd, La)-O로 표시되는 산화물상을 주성분으로 하는 결정성의 제 2 부상을 갖는다. Sm의 농도는, 제 2 부상에 비해서 제 1 부상 쪽이 높고, 원소 M의 농도는, 제 1 부상에 비해서 제 2 부상 쪽이 높다.

발명의 효과

[0011] 본 개시에 의하면, Nd 및 중희토류 원소의 사용을 억제하면서, 실온에 있어서의 자기 특성의 향상과 온도 상승에 수반하는 자기 특성의 저하의 억제를 실현할 수 있다는 효과를 발휘한다.

도면의 간단한 설명

- [0012] 도 1은 실시형태 1에 의한 희토류 소결 자석의 소결 상태의 구조의 일례를 모식적으로 나타내는 도면
- 도 2는 정방정 Nd₂Fe₁₄B 결정 구조에 있어서의 원자 사이트를 나타내는 도면
- 도 3은 실시형태 2에 의한 희토류 자석 합금의 제조 방법의 수순의 일례를 나타내는 플로 차트
- 도 4는 실시형태 2에 의한 희토류 자석 합금의 제조 방법의 모습을 모식적으로 나타내는 도면
- 도 5는 실시형태 2에 의한 희토류 소결 자석의 제조 방법의 수순의 일례를 나타내는 플로 차트
- 도 6은 실시형태 3에 의한 희토류 소결 자석을 탑재한 회전자의 구성의 일례를 모식적으로 나타내는 단면도
- 도 7은 실시형태 4에 의한 회전기의 구성의 일례를 모식적으로 나타내는 단면도
- 도 8은 실시예 1 내지 8에 의한 희토류 소결 자석의 단면을 FE-EPMA로 분석하여 얻어진 조성상(像)
- 도 9는 실시예 1 내지 8에 의한 희토류 소결 자석의 단면을 FE-EPMA로 분석하여 얻어진 Nd의 원소 매핑
- 도 10은 실시예 1 내지 8에 의한 희토류 소결 자석의 단면을 FE-EPMA로 분석하여 얻어진 O의 원소 매핑
- 도 11은 실시예 1 내지 8에 의한 희토류 소결 자석의 단면을 FE-EPMA로 분석하여 얻어진 La의 원소 매핑
- 도 12는 실시예 1 내지 8에 의한 희토류 소결 자석의 단면을 FE-EPMA로 분석하여 얻어진 Sm의 원소 매핑
- 도 13은 실시예 1 내지 8에 의한 희토류 소결 자석의 단면을 FE-EPMA로 분석하여 얻어진 Cu의 원소 매핑
- 도 14는 실시예 1 내지 8에 의한 희토류 소결 자석의 단면을 FE-EPMA로 분석하여 얻어진 Al의 원소 매핑

도 15는 실시예 1 내지 8에 의한 희토류 소결 자석의 단면을 FE-EPMA로 분석하여 얻어진 Ga의 원소 매핑

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0013] 이하에, 본 개시의 실시형태에 따른 희토류 소결 자석 및 희토류 소결 자석의 제조 방법, 회전자, 및 회전기를 도면에 기초하여 상세하게 설명한다.
- [0014] 실시형태 1.
- [0015] 도 1은, 실시형태 1에 의한 희토류 소결 자석의 소결 상태의 구조의 일례를 모식적으로 나타내는 도면이다. 실시형태 1에 의한 영구 자석은, 일반식 (Nd, La, Sm)-Fe-B-M을 만족시키는 희토류 소결 자석(1)으로서, $R_2Fe_{14}B$ 결정 구조를 기본으로 하는 결정립을 포함하는 주상(10)과, 부상(20)을 갖는 희토류 소결 자석(1)이다. 부상(20)은, (Nd, La, Sm)-O로 표시되는 산화물상을 주성분으로 하는 결정성의 제 1 부상(21)과, (Nd, La)-O로 표시되는 산화물상을 주성분으로 하는 결정성의 제 2 부상(22)을 갖는다. 한편, 원소 M은, Cu(구리), Al(알루미늄) 및 Ga(갈륨)의 군으로부터 선택되는 1종 이상의 원소를 나타내고 있다.
- [0016] 주상(10)은, 원소 R이 Nd, La 및 Sm인 정방정 $R_2Fe_{14}B$ 결정 구조를 갖는다. 즉, 주상(10)은, (Nd, La, Sm)₂Fe₁₄B의 조성식을 갖는다. 정방정 $R_2Fe_{14}B$ 결정 구조를 갖는 희토류 소결 자석(1)의 원소 R을, Nd, La 및 Sm으로 이루어지는 희토류 원소로 하는 이유는, 분자 궤도법을 이용한 자기적 상호작용 에너지의 계산 결과로부터, Nd에 La와 Sm을 첨가한 조성으로 함으로써, 온도 상승에 수반하는 자기 특성의 저하를 억제할 수 있는 실용적인 희토류 소결 자석(1)이 얻어지기 때문이다. 또한, La와 Sm을 의도적으로 부상(20)의 일례인 입계에도 편석시키는 것에 의해, 상대적으로 Nd를 주상(10)에 확산시켜, 주상(10)의 결정 자기 이방성을 높일 수 있다. 이에 의해, 주상(10) 내에 있어서 자기 이방성이 높은 부분과 낮은 부분이 존재하는 의사적(擬似的)인 코어셸 구조가 형성된다. 이 결과, 온도 상승에 수반하는 자기 특성의 저하를 억제하는 효과가 더 높아진다.
- [0017] 한편, La와 Sm의 첨가량이 지나치게 많으면, 자기 이방성 상수 및 포화 자기 분극이 높은 원소인 Nd의 양이 감소하여, 자기 특성의 저하를 초래해 버리므로, Nd, La 및 Sm의 조성 비율을 각각 a, b 및 c로 했을 때, a>(b+c)로 하는 것이 바람직하다.
- [0018] 주상(10)의 결정립의 평균 입경은, 100 μm 이하로 하는 것이 바람직하고, 자기 특성 향상을 위해서, 0.1 μm 이상 50 μm 이하로 하는 것이 보다 바람직하다.
- [0019] 결정성의 부상(20)은, 결정성의 제 1 부상(21) 및 제 2 부상(22)의 총칭이며, 주상(10) 사이에 존재한다. 결정성의 제 1 부상(21)은, 상기한 바와 같이 (Nd, La, Sm)-O로 표시되고, 결정성의 제 2 부상(22)은, 상기한 바와 같이 (Nd, La)-O로 표시된다. 여기에서 표시되는 (Nd, La, Sm)은, Nd의 일부가 La 및 Sm에 의해 치환되어 있는 것을 의미하고 있다. 한편, 여기에서는 주성분의 원소를 괄호 내에 기재하고 있으므로, 제 1 부상(21) 및 제 2 부상(22)은, 다른 성분을 미량 포함하고 있어도 된다. 일례에서는, (Nd, La)-O로 표시되는 제 2 부상(22)은, 극미량의 Sm을 포함하고 있다.
- [0020] 실시형태 1에 의한 희토류 소결 자석(1)에 있어서, Sm의 농도는, 제 2 부상(22)에 비해서 제 1 부상(21) 쪽이 높고, 원소 M의 농도는, 제 1 부상(21)에 비해서 제 2 부상(22) 쪽이 높다. 바꾸어 말하면, Sm과 원소 M에서는 서로 상이한 부상(20)에 편석되어 있는 것을 의미하고 있다. Sm은, 제 1 부상(21)에 고농도로 존재하기 때문에, Nd 리치상(Nd-rich phase)의 Nd를 상대적으로 주상(10)에 확산시켜, 주상(10)의 결정 자기 이방성을 향상시킨다. 나아가, Sm은, 주상(10)의 결정립 내에도 존재하기 때문에, 강자성체인 Fe와 동일한 자화 방향으로 결합함으로써 잔류 자속 밀도의 향상에 공헌한다. 원소 M은, 제 2 부상(22)에 고농도로 존재하기 때문에, 주상(10)끼리를 자기적으로 분단하는 비자성상(非磁性相)을 형성하여, 자기 특성의 향상에 공헌한다. Sm과 원소 M이 상이한 부상(20)의 각각에 고농도로 존재함으로써, 잔류 자속 밀도와 보자력을 양립시켜 향상시키는 것이 가능해진다.
- [0021] 실시형태 1에 의한 희토류 소결 자석(1)에 있어서, 주상(10)과 부상(20)에서는, La 및 Sm의 농도차가 존재하고, 제 1 부상(21) 및 제 2 부상(22)에 있어서의 La의 농도의 합은, 주상(10)에 있어서의 La의 농도 이상이고, 제 1 부상(21) 및 제 2 부상(22)에 있어서의 Sm의 농도의 합은, 주상(10)에 있어서의 Sm의 농도 이상이다. 구체적으로는, 부상(20)의 La 및 Sm의 농도는, 주상(10)의 La 및 Sm의 농도 이상이다. 나아가, La는 제 1 부상(21) 및 제 2 부상(22)에서도 농도차가 존재하고, 제 1 부상(21)에 있어서의 La의 농도는, 제 2 부상(22)에 있어서의 La의 농도 이상이다.

[0022] 여기에서, 주상(10)에 포함되는 La 농도를 X로 하고, 제 1 부상(21)에 포함되는 La 농도를 X₁로 하고, 제 2 부상(22)에 포함되는 La 농도를 X₂로 하고, 주상(10)에 포함되는 Sm 농도를 Y로 하고, 제 1 부상(21)에 포함되는 Sm 농도를 Y₁로 하며, 제 2 부상(22)에 포함되는 Sm 농도를 Y₂로 했을 때에, 다음 식(1)의 관계가 만족된다.

[0023] $1 < (Y_1 + Y_2) / Y < (X_1 + X_2) / X \cdots (1)$

[0024] La는, 제조 공정, 특히 열처리 과정에서 입계에 고농도로 존재하는 것에 의해, 상대적으로 Nd를 주상(10)에 확산시킨다. 이 결과, 실시형태 1에 있어서의 희토류 소결 자석(1)은, 주상(10)의 Nd가 입계에서 소비되지 않아 결정 자기 이방성이 향상된다. Sm에 있어서도, 주상(10)에 비해서 부상(20), 특히 제 1 부상(21)에 고농도로 존재하기 때문에, La와 마찬가지로 상대적으로 Nd를 주상(10)에 확산시켜, 결정 자기 이방성을 향상시킨다.

[0025] 실시형태 1에 의한 희토류 소결 자석(1)은, 자기 특성을 향상시키는 첨가 원소 N을 함유하고 있어도 된다. 첨가 원소 N은, Co, Zr(지르코늄), Ti(타이타늄), Pr(프라세오디뮴), Nb(나이오븀), Dy, Tb, Mn(망가니즈), Gd 및 Ho(홀뮴)의 군으로부터 선택되는 1종 이상의 원소이다.

[0026] 따라서, 실시형태 1에 의한 희토류 소결 자석(1)은, 일반식이 (Nd_aLa_bSm_c)Fe_dB_eM_fN_g로 표현되고, 첨가 원소 N은 Co, Zr, Ti, Pr, Nb, Dy, Tb, Mn, Gd 및 Ho의 군으로부터 선택되는 1종 이상의 원소이다. a, b, c, d, e, f, 및 g는, 이하의 관계식을 만족하는 것이 바람직하다.

[0027] $5 \leq a \leq 20$

[0028] $0 < b + c < a$

[0029] $70 \leq d \leq 90$

[0030] $0.5 \leq e \leq 10$

[0031] $0 \leq f \leq 5$

[0032] $0 \leq g \leq 5$

[0033] $a + b + c + d + e + f + g = 100$ 원자%

[0034] 다음으로, La 및 Sm이 정방정 R₂Fe₁₄B 결정 구조의, 어떤 원자 사이트에 있어서 치환되어 있는지에 대하여 설명한다. 도 2는, 정방정 Nd₂Fe₁₄B 결정 구조에 있어서의 원자 사이트를 나타내는 도면이다. 한편, 도 2에 나타나는 결정 구조는, 예를 들면, 하기에 나타내는 참고문헌 1의 FIG. 1에 기재되어 있다. 치환되는 사이트는, 밴드 계산 및 하이젠베르크 모델의 분자장 근사에 의해, 치환에 의한 안정화 에너지를 구하고, 그 에너지의 수치에 의해 판단된다.

[0035] (참고문헌 1) J. F. Herbst et al. "Relationships between crystal structure and magnetic properties in Nd₂Fe₁₄B". PHYSICAL REVIEW B. 1984, Vol. 29, No. 7, p. 4176-4178.

[0036] 우선, La에 있어서의 안정화 에너지의 계산 방법에 대하여 설명한다. La에 있어서의 안정화 에너지는, Nd₈Fe₅₆B₄ 결정 셀을 이용하여, (Nd₇La₁)Fe₅₆B₄+Nd와, Nd₈(Fe₅₅La₁)B₄+Fe의 에너지차에 의해 구할 수 있다. 에너지의 값이 작을수록, 그 사이트에 원자가 치환된 경우에, 보다 안정적이다. 즉, La는, 원자 사이트 중에서, 에너지가 가장 작아지는 원자 사이트에 치환되기 쉽다. 이 계산에서는, La가 원래의 원자와 치환된 경우에, 정방정 R₂Fe₁₄B 결정 구조에 있어서의 격자 상수는, 원자 반경의 차이에 따라 달라지지 않는다고 하고 있다. 표 1은, 환경 온도를 변경한 경우의 각 치환 사이트에 있어서의 La의 안정화 에너지를 나타내는 표이다.

표 1

(표 1)

La의 치환 사이트	온도					
	293K	500K	1000K	1300K	1400K	1500K
Nd(f)	-136.372	-84.943	-48.524	-40.132	-38.132	-35.451
Nd(g)	-132.613	-82.740	-47.442	-38.211	-36.358	-34.753
Fe(k1)	-135.939	-80.596	-41.428	-32.390	-30.237	-17.095
Fe(k2)	-127.480	-75.638	-38.948	-30.482	-28.466	-26.719
Fe(j1)	-124.248	-73.076	-38.003	-29.754	-27.791	-26.089
Fe(j2)	-117.148	-71.400	-35.923	-28.816	-26.917	-25.271
Fe(e)	-130.814	-77.593	-39.926	-31.235	-29.164	-27.371
Fe(c)	-148.317	-87.850	-45.055	-35.179	-32.828	-30.789

단위: eV

[0037]

[0038]

표 1에 의하면, La의 안정된 치환 사이트는, 1000K 이상의 온도에서는, Nd(f) 사이트이고, 온도 293K 및 500K에서는, Fe(c) 사이트이다. 실시형태 1에 의한 희토류 소결 자석(1)은, 후술하는 바와 같이, 희토류 소결 자석(1)의 원료를 1000K 이상의 온도로 가열하여 용융시킨 후, 급랭된다. 이 때문에, 희토류 소결 자석(1)의 원료는, 1000K 이상, 즉 727℃ 이상, 바람직하게는 1300K 정도, 즉 1027℃의 상태가 유지되고 있다고 생각된다. 그때, La는 Nd(f) 사이트 또는 Nd(g) 사이트에 치환되어 있다고 생각된다. 여기에서, 에너지적으로 안정된 Nd(f) 사이트에 우선적으로 La가 치환된다고 생각되지만, La의 치환 사이트 중에서 에너지차가 작은 Nd(g) 사이트로의 치환도 있을 수 있다. 이 때문에, Nd(g) 사이트도 La의 치환 사이트의 후보로서 언급되고 있다.

[0039]

나아가, 후술하는 제조 방법에 의해 희토류 소결 자석(1)을 제조한 경우에는, 소결 시에는 1000K 이상이지만, 제 1 차 시효 공정, 제 2 차 시효 공정 및 냉각 공정을 거침으로써, 표 1에 기재된 Fe(c) 사이트가 에너지적으로 안정된 온도대에서 유지된다. 바꾸어 말하면, 주상(10)의 Nd 사이트에 있어서의 La의 치환은 불안정한 에너지 상태로 유지되어 있게 된다. 즉, 희토류 소결 자석(1)의 원료 단계에 있어서는, La는 주상(10)의 Nd 사이트에 주로 치환되어 있었지만, 후술하는 제조 방법으로 제작된 희토류 소결 자석(1)에서는, 주상(10)의 Nd 사이트에 대해서, 굳이 불안정한 에너지 상태의 온도역에서 유지하는 것에 의해, 주상(10)의 Nd 사이트로부터 어느 정도의 La가 방출된 결과, La는 부상(20)에 편석되어 있다고 말할 수 있다.

[0040]

다음으로, Sm에 있어서의 안정화 에너지의 계산 방법에 대하여 설명한다. Sm의 안정화 에너지에 대해서는, $(Nd_7Sm_1)Fe_{56}B_4+Nd$ 와, $Nd_8(Fe_{55}Sm_1)B_4+Fe$ 의 에너지차에 의해 구할 수 있다. 원자가 치환되는 것에 의해, 정방정 $R_2Fe_{14}B$ 결정 구조에 있어서의 격자 상수가 변화하지 않는다고 한 점에 대해서는, La의 경우와 마찬가지로이다. 표 2는, 환경 온도를 변경한 경우의, 각 치환 사이트에 있어서의 Sm의 안정화 에너지를 나타내는 표이다.

표 2

(표 2)

Sm의 치환 사이트	온도					
	293K	500K	1000K	1300K	1400K	1500K
Nd(f)	-164.960	-101.695	-56.921	-46.589	-44.128	-41.976
Nd(g)	-168.180	-103.583	-57.865	-47.315	-44.803	-42.626
Fe(k1)	-136.797	-81.098	-41.679	-32.583	-17.350	-16.343
Fe(k2)	-127.769	-75.808	-38.482	-29.603	-28.528	-25.696
Fe(j1)	-122.726	-73.304	-37.783	-28.392	-26.525	-24.681
Fe(j2)	-124.483	-73.883	-38.072	-28.483	-26.610	-24.985
Fe(e)	125.937	72.525	35.301	26.633	24.450	22.782
Fe(c)	-155.804	-94.457	-48.359	-37.720	-35.187	-32.992

단위: eV

[0041]

표 2에 의하면, Sm의 안정된 치환 사이트는, La와는 상이하게, 어느 온도에 있어서도, Nd(g) 사이트이다. Sm에 있어서도, 에너지적으로 안정된 Nd(g) 사이트에 우선적으로 치환된다고 생각되지만, Sm의 치환 사이트 중에서 에너지차가 작은 Nd(f) 사이트로의 치환도 있을 수 있다.

[0043]

후술하는 제조 방법에 의해 희토류 소결 자석(1)을 제조한 경우에는, 에너지적으로는 주상(10)의 Nd(g) 사이트로의 치환이 가장 안정적이다. 그러나, 전술에서 기술한 대로, La에 있어서 주상(10)의 Nd 사이트로의 치환이 불안정하게 되는 온도역에서 유지함으로써, 일부의 Sm도 La와 함께 주상(10)의 Nd 사이트로부터 방출되어, 부상(20)에 편석된다. 이 결과, La 및 Sm의 농도는 주상(10)과 부상(20)에서 농도차가 존재하고, 제 1 부상(21) 및 제 2 부상(22)에 있어서의 La의 농도의 합은, 주상(10)에 있어서의 La의 농도 이상이고, 제 1 부상(21) 및 제 2 부상(22)에 있어서의 Sm의 농도의 합은, 주상(10)에 있어서의 Sm의 농도 이상이다. 즉, La 및 Sm은, 부상(20)에 편석된다고 말할 수 있다. 나아가, La는 Sm과 함께 부상(20)에 편석된다고 하는 점에서, La의 농도는 Sm의 농도와 마찬가지로, 제 1 부상(21)에 있어서의 La의 농도는, 제 2 부상(22)에 있어서의 La의 농도 이상이라고 말할 수 있다.

[0044]

또한, La 및 Sm에서 비교하면, 에너지적인 관점에서, 불안정한 에너지 상태의 온도역에서 유지되는 La 쪽이, 압도적으로 부상(20)에 편석되기 쉬운 것을 알 수 있다. 이에 의해, La 및 Sm의 농도를 동일한 정도로 조절된 희토류 소결 자석(1)의 경우, 희토류 소결 자석(1)에 존재하는 La와 Sm에서는, La 쪽이 부상(20)으로의 편석 비율이 큰 것, 즉 상기 (1)식의 관계가 만족되는 것을 의미하고 있다.

[0045]

나아가, 원소 M, 즉 Cu, Al 및 Ga와 같은, 입계에서 비자성상을 형성하여 고(高)보자력화에 기여하는 원소도 부상(20)에 원래 존재한다. 그러나, 상기한 대로, 시효 공정 및 냉각 공정을 거침으로써, La 및 Sm이 마찬가지로의 부상(20)에 편석된 결과, 원소 M은 La 및 Sm과는 상이한 부상(20)에 주로 존재하게 된다. 즉, 각각의 원소가 균일하게 존재하는 것은 아니어서, Cu, Al, Ga를 포함하는 원소 M의 농도는, 제 1 부상(21)에 비해서 제 2 부상(22) 쪽이 높아진다. 이 결과, 제 1 부상(21)에서는, 제 2 부상(22)에 비해서 Sm의 농도가 높아져, 제 2 부상(22)에서는, 제 1 부상(21)에 비해서 원소 M의 농도가 높아지며, Sm과 원소 M에서는, 서로 상이한 종류의 부상(20)에서 농도가 높아진다는 특징을 갖는 희토류 소결 자석(1)이 얻어진다.

[0046]

이상과 같이, 실시형태 1의 희토류 소결 자석(1)에서는, 원소 M을 Cu, Al 및 Ga의 군으로부터 선택되는 1종 이상의 원소로 하고, 일반식 (Nd, La, Sm)-Fe-B-M을 만족시키는 희토류 소결 자석(1)으로서, R₂Fe₁₄B 결정 구조를 기본으로 하는 결정립을 포함하는 주상(10)과, (Nd, La, Sm)-O로 표시되는 산화물상을 주성분으로 하는 결정성의 제 1 부상(21)과, (Nd, La)-O로 표시되는 산화물상을 주성분으로 하는 결정성의 제 2 부상(22)을 갖는다. 또한, 실시형태 1의 희토류 소결 자석(1)에서는, Sm의 농도는, 제 2 부상(22)에 비해서 제 1 부상(21) 쪽이 높아

지도록 하고, 원소 M의 농도는, 제 1 부상(21)에 비해서 제 2 부상(22) 쪽이 높아지도록 했다. 즉, 부상(20)에 있어서의 Sm의 농도 및 원소 M의 농도에 차이를 가지도록 했다. 이에 의해, Sm은, 제 1 부상(21)에 고농도로 존재하기 때문에, 상대적으로 Nd를 주상(10)에 확산시켜, 주상(10)의 결정 자기 이방성을 향상시킨다. 나아가, Sm은, 주상(10)의 결정립 내에도 존재하기 때문에, 강자성체인 Fe와 동일한 자화 방향으로 결합함으로써 잔류 자속 밀도의 향상에 공헌한다. 원소 M은, 제 2 부상(22)에 고농도로 존재하기 때문에, 주상(10)끼리를 자기적으로 분단하는 비자성상을 형성하여, 자기 특성의 향상에 공헌한다. Sm과 원소 M이, 각각 상이한 부상(20)에 고농도로 존재함으로써, 잔류 자속 밀도와 보자력을 양립시켜 향상시키는 것이 가능해진다.

[0047] 나아가, 주상(10)은, 원소 R이 Nd, La 및 Sm인 정방정 $R_2Fe_{14}B$ 결정 구조를 갖기 때문에, 온도 상승에 수반하는 자기 특성의 저하를 억제할 수 있는 희토류 소결 자석(1)이 된다. 이 결과, Nd-Fe-B를 만족시키는 희토류 소결 자석과 비교하여, Nd 및 중희토류 원소의 사용을 억제하면서, 실온에 있어서의 자기 특성의 향상과 온도 상승에 수반하는 자기 특성의 저하의 억제를 실현하는 희토류 소결 자석(1)을 얻을 수 있다.

[0048] 실시형태 2.

[0049] 실시형태 2에서는, 실시형태 1에서 설명한 희토류 소결 자석(1)을 제조하는 방법에 대하여, 희토류 소결 자석(1)의 원료가 되는 희토류 자석 합금의 제조 방법과, 희토류 자석 합금을 이용한 희토류 소결 자석(1)의 제조 방법으로 나누어 설명한다.

[0050] 도 3은, 실시형태 2에 의한 희토류 자석 합금의 제조 방법의 수순의 일례를 나타내는 플로 차트이다. 도 4는, 실시형태 2에 의한 희토류 자석 합금의 제조 방법의 모습을 모식적으로 나타내는 도면이다.

[0051] 우선, 도 3에 나타나는 바와 같이, 희토류 자석 합금의 제조 방법은, 희토류 소결 자석(1)을 구성하는 원소를 포함하는 희토류 자석 합금의 원료를 1000K 이상의 온도로 가열하여 용융시키는 용융 공정(스텝 S1)과, 용융 상태의 원료를 회전하는 회전체 상에서 냉각하여 응고 합금을 얻는 제 1 차 냉각 공정(스텝 S2)과, 응고 합금을 용기 중에서 추가로 냉각하는 제 2 차 냉각 공정(스텝 S3)을 포함한다. 이하, 각 공정에 대하여 설명한다.

[0052] 스텝 S1의 용융 공정에서는, 도 4에 나타나는 바와 같이, Ar(아르곤) 등의 불활성 가스를 포함하는 분위기 중 또는 진공 중에서, 희토류 자석 합금의 원료를 감과(31) 중에서 1000K 이상의 온도로 가열하여 용융시킨다. 이에 의해, 희토류 자석 합금이 용융된 합금 용탕(32)이 조제된다. 원료로서는, Nd와, La와, Sm과, Fe와, B와, Al, Cu 및 Ga의 군으로부터 선택되는 1종 이상의 원소 M을 조합한 것을 이용할 수 있다. 이때, 첨가 원소 N으로서 Co, Zr, Ti, Pr, Nb, Dy, Tb, Mn, Gd 및 Ho의 군으로부터 선택되는 1종 이상의 원소를, 원료에 포함시켜도 된다.

[0053] 이어서, 스텝 S2의 제 1 차 냉각 공정에서는, 도 4에 나타나는 바와 같이, 용융 공정에서 조제된 합금 용탕(32)을, 턴디시(33)에 흘리고, 계속해서 화살표의 방향으로 회전하는 회전체인 단(單)롤(34) 상에 흘린다. 이에 의해, 합금 용탕(32)은 단롤(34) 상에서 급속히 냉각되어, 합금 용탕(32)으로부터 잉곳 합금보다도 두께가 얇은 응고 합금(35)이 단롤(34) 상에서 조제된다. 여기에서는, 회전하는 회전체로서, 단롤(34)을 이용했지만, 이것으로 한정되는 것은 아니고, 쌍롤, 회전 디스크, 회전 원통 주형 등에 접촉시켜 급속히 냉각시켜도 된다. 두께가 얇은 응고 합금(35)을 효율 좋게 얻는 관점에서, 제 1 차 냉각 공정에 있어서의 냉각 속도는, $10^{\circ}\text{C}/\text{초}$ 이상 $10^7 \text{ }^{\circ}\text{C}/\text{초}$ 이하로 하는 것이 바람직하고, $10^3 \text{ }^{\circ}\text{C}/\text{초}$ 이상 $10^4 \text{ }^{\circ}\text{C}/\text{초}$ 이하로 하는 것이 보다 바람직하다. 응고 합금(35)의 두께는, 0.03mm 이상 10mm 이하의 범위에 있다. 합금 용탕(32)은, 단롤(34)과 접촉한 부분으로부터 응고기 시작되어, 단롤(34)과의 접촉면으로부터 두께 방향으로 결정이 주상(柱狀) 또는 침상으로 성장한다.

[0054] 그 후, 스텝 S3의 제 2 차 냉각 공정에서는, 도 4에 나타나는 바와 같이, 제 1 차 냉각 공정에서 조제된 두께가 얇은 응고 합금(35)을 트레이 용기(36) 중에 넣어 냉각한다. 두께가 얇은 응고 합금(35)은, 트레이 용기(36)에 들어갈 때에 부서져 인편상(鱗片狀)의 희토류 자석 합금(37)이 되어 냉각된다. 냉각 속도에 따라서는, 리본상의 희토류 자석 합금(37)이 얻어지는 경우도 있어, 인편상으로 한정되는 것은 아니다. 자기 특성의 온도 특성이 양호한 조직 구조를 갖는 희토류 자석 합금(37)을 얻는 관점에서, 제 2 차 냉각 공정에 있어서의 냉각 속도는, $10^{-2} \text{ }^{\circ}\text{C}/\text{초}$ 이상 $10^5 \text{ }^{\circ}\text{C}/\text{초}$ 이하로 하는 것이 바람직하고, $10^{-1} \text{ }^{\circ}\text{C}/\text{초}$ 이상 $10^2 \text{ }^{\circ}\text{C}/\text{초}$ 이하로 하는 것이 보다 바람직하다.

[0055] 이들 공정을 거쳐 얻어지는 희토류 자석 합금(37)은, 단축 방향 사이즈가 $3 \mu\text{m}$ 이상 $10 \mu\text{m}$ 이하이고, 또한 장축 방향 사이즈가 $10 \mu\text{m}$ 이상 $300 \mu\text{m}$ 이하인 (Nd, La, Sm)-Fe-B 결정상(結晶相)과, (Nd, La, Sm)-O로 나타나는 산화물의 결정성의 부상(20)을 함유하는 미세 결정 조직을 갖는다. 이하에서는, (Nd, La, Sm)-O로 나타나는 산화

물의 결정성의 부상(20)은, (Nd, La, Sm)-0상이라고 칭해진다. (Nd, La, Sm)-0상은, 희토류 원소의 농도가 비교적 높은 산화물로 이루어지는 비자성상이다. (Nd, La, Sm)-0상의 두께는, 입계의 폭에 상당하고, 10 μm 이하이다. 이상의 제조 방법에 의해 제조된 희토류 자석 합금(37)은, 급속히 냉각되는 공정을 거치고 있기 때문에, 주형 구조법에 의해 얻어지는 희토류 자석 합금과 비교하여, 조직이 미세화되어 있어, 결정 입경이 작다.

[0056] 도 5는, 실시형태 2에 의한 희토류 소결 자석의 제조 방법의 수순의 일례를 나타내는 플로 차트이다. 도 5에 나타나는 바와 같이, 희토류 소결 자석(1)의 제조 방법은, (Nd, La, Sm)-Fe-B-M을 만족시키는 희토류 자석 합금(37)을 분쇄하는 분쇄 공정(스텝 S21)과, 분쇄된 희토류 자석 합금(37)의 분말을 성형하는 것에 의해 성형체를 조제하는 성형 공정(스텝 S22)과, 성형체를 소결하는 것에 의해 소결체를 얻는 소결 공정(스텝 S23)과, 소결체를 시효하는 시효 공정(스텝 S24)과, 시효한 소결체를 냉각하는 냉각 공정(스텝 S25)을 포함한다.

[0057] 스텝 S21의 분쇄 공정에서는, 도 3의 희토류 자석 합금(37)의 제조 방법에 따라 제조된 희토류 자석 합금(37), 즉 (Nd, La, Sm)-Fe-B 결정상과 (Nd, La, Sm)-0상을 갖는 희토류 자석 합금(37)을 분쇄하여, 입경이 200 μm 이하, 바람직하게는 0.5 μm 이상 100 μm 이하인 희토류 자석 합금 분말을 얻는다. 한편, 여기에서 분쇄되는 희토류 자석 합금(37)에는, 상기한 바와 같이, Al, Cu 및 Ga의 균으로부터 선택되는 1종 이상의 원소 M이 포함되어 있다. 희토류 자석 합금(37)의 분쇄는, 예를 들면, 마노 유발, 스탬프 밀, 조 크러셔, 또는 제트 밀을 이용하여 행해진다. 특히, 분말의 입경을 작게 하는 경우에는, 희토류 자석 합금(37)의 분쇄를, 불활성 가스를 포함하는 분위기 중에서 행하는 것이 바람직하다. 희토류 자석 합금(37)의 분쇄를, 불활성 가스를 포함하는 분위기 중에서 행하는 것에 의해, 분말 중으로의 산소의 혼입을 억제할 수 있다. 단, 분쇄를 행할 때의 분위기가 자석의 자기 특성에 영향을 주지 않는 경우에는, 희토류 자석 합금(37)의 분쇄를 대기 중에서 행해도 된다.

[0058] 스텝 S22의 성형 공정에서는, 희토류 자석 합금(37)의 분말을, 자장(磁場)을 건 금형 중에서 압축 성형하여, 성형체를 조제한다. 여기에서, 인가하는 자장은, 일례에서는 2T로 할 수 있다. 한편, 성형은, 자장 중은 아니어서, 자장을 인가하지 않고 행해도 된다.

[0059] 스텝 S23의 소결 공정에서는, 압축 성형된 성형체를 900℃ 이상 1300℃ 이하의 범위 내의 소결 온도에서 0.1시간 이상 10시간 이하의 범위 내의 시간, 유지함으로써, 소결체를 조제한다. 소결은, 산화 억제를 위해서, 불활성 가스를 포함하는 분위기 중 또는 진공 중에서 행해지는 것이 바람직하다. 소결은, 자장을 인가하면서 행해도 된다. 또한, 소결 공정에는, 자기 특성 개선, 즉 자장의 이방성화 또는 보자력 개선을 위해서, 열간 가공 또는 시효 처리의 공정을 추가해도 된다. 또, Cu, Al, 중희토류 원소 등을 포함하는 화합물을 주상(10)간의 경계인 결정립계에 침투시키는 공정을 추가해도 된다.

[0060] 스텝 S24의 시효 공정은, 스텝 S24-1의 제 1 차 시효 공정과 스텝 S24-2의 제 2 차 시효 공정을 포함한다. 스텝 S24-1의 제 1 차 시효 공정의 조건은, 소결체를 소결 온도 미만의 온도인 제 1 차 시효 온도에서, 구체적으로는 700℃ 이상 900℃ 미만의 범위 내의 온도에서, 0.1시간 이상 10시간 이하의 범위 내에서 소결체를 유지한다.

[0061] 스텝 S24-2의 제 2 차 시효 공정의 조건은, 제 1 차 시효 공정 후, 제 1 차 시효 온도 미만의 온도인 제 2 차 시효 온도에서, 구체적으로는 450℃ 이상 700℃ 미만의 범위 내의 온도에서, 0.1시간 이상 10시간 이하의 범위 내에서 소결체를 유지한다.

[0062] 스텝 S25의 냉각 공정에서는, 제 2 차 시효 온도 미만의 온도에서, 구체적으로는 200℃ 이상 450℃ 미만의 범위 내의 온도에서, 0.1시간 이상 5시간 이하의 범위 내에서 소결체를 유지한다. 그 후, 실온까지 냉각하는 것에 의해, 희토류 소결 자석(1)이 완성된다.

[0063] 이상의 소결 공정, 시효 공정 및 냉각 공정에 있어서, 온도와 시간을 상기한 바와 같이 제어하는 것에 의해, Sm의 농도는, 제 2 부상(22)에 비해서 제 1 부상(21) 쪽이 높아지고, Cu, Al 및 Ga의 균으로부터 선택되는 1종 이상의 원소 M의 농도는, 제 1 부상(21)에 비해서 제 2 부상(22) 쪽이 높아지는 희토류 소결 자석(1)을 제조할 수 있다. 즉, 시효 공정 및 냉각 공정에서, (Nd, La, Sm)-0상으로부터, 일례에서는 원소 M의 농도에 따라서, (Nd, La, Sm)-0로 표시되는 산화물상을 주성분으로 하는 결정성의 제 1 부상(21)과, (Nd, La)-0로 표시되는 산화물상을 주성분으로 하는 결정성의 제 2 부상(22)이 생성된다. 한편, 제 2 부상(22)에는, 미량의 Sm이 포함되어 있어도 된다.

[0064] 실시형태 2에서는, (Nd, La, Sm)-Fe-B 결정상과 (Nd, La, Sm)-0상을 갖는 희토류 자석 합금(37)을 분쇄한 희토류 자석 합금 분말을 성형하고, 성형한 성형체를 소결하여 소결체를 형성한 후에, 소결체를 시효 및 냉각하여, 희토류 소결 자석(1)을 제조한다. 이에 의해, 실시형태 1에 의한 희토류 소결 자석(1)을 제조할 수 있다. 또한, 제 1 차 시효 공정에서, 소결체를 소결 온도 미만의 온도에서, 구체적으로는 700℃ 이상 900℃ 미만의 범위 내

의 제 1 차 시효 온도에서 0.1시간 이상 10시간 이하의 범위 내에서 소결체를 유지하고, 제 2 차 시효 공정에서, 제 1 차 시효 공정 후, 제 1 차 시효 온도 미만의 제 2 차 시효 온도에서, 구체적으로는 450℃ 이상 700℃ 미만의 범위 내의 온도에서 0.1시간 이상 10시간 이하의 범위 내의 온도에서 소결체를 유지하고, 냉각 공정에서는, 제 2 차 시효 온도 미만의 온도에서, 구체적으로는 200℃ 이상 450℃ 미만의 범위 내의 온도에서 0.1 시간 이상 5시간 이하의 범위 내에서 소결체를 유지하며, 실온까지 냉각한다. 이에 의해, Sm의 농도는, 제 2 부상(22)에 비해서 제 1 부상(21) 쪽이 높아지고, Cu, Al 및 Ga의 균으로부터 선택되는 1종 이상의 원소 M의 농도는, 제 1 부상(21)에 비해서 제 2 부상(22) 쪽이 높아지는 희토류 소결 자석(1)을 제조할 수 있다.

[0065] 나아가, 상기의 제조 공정에 의해, 제 1 부상(21) 및 제 2 부상(22)에 있어서의 La의 농도의 합은, 주상(10)에 있어서의 La의 농도 이상이 되고, 제 1 부상(21) 및 제 2 부상(22)에 있어서의 Sm의 농도의 합은, 주상(10)에 있어서의 Sm의 농도 이상이 되며, 제 1 부상(21)에 있어서의 La의 농도는, 제 2 부상(22)에 있어서의 La의 농도 이상이 되는 희토류 소결 자석(1)을 제조할 수 있다. 또한, 주상(10)에 포함되는 La 농도 및 Sm 농도, 제 1 부상(21)에 포함되는 La 농도 및 Sm 농도, 및 제 2 부상(22)에 포함되는 La 농도 및 Sm 농도가 상기 (1)식을 만족시키는 희토류 소결 자석(1)을 제조할 수 있다.

[0066] 실시형태 3.

[0067] 다음으로, 실시형태 1에 의한 희토류 소결 자석(1)을 탑재한 회전자에 대하여 설명한다. 도 6은, 실시형태 3에 의한 희토류 소결 자석을 탑재한 회전자의 구성의 일례를 모식적으로 나타내는 단면도이다. 도 6에서는, 회전자(100)의 회전축(RA)에 수직인 방향의 단면을 나타내고 있다.

[0068] 회전자(100)는, 회전축(RA)을 중심으로 회전 가능하다. 회전자(100)는, 회전자 철심(101)과, 회전자(100)의 둘레 방향을 따라 회전자 철심(101)에 마련되는 자석 삽입 구멍(102)에 삽입되는 희토류 소결 자석(1)을 구비한다. 도 6에서는, 4개의 희토류 소결 자석(1)이 이용되고 있지만, 희토류 소결 자석(1)의 수는 이것으로 한정되지 않고, 회전자(100)의 설계에 따라서 변경해도 된다. 또한, 도 6에서는, 4개의 자석 삽입 구멍(102)을 회전자 철심(101)에 마련하고, 4개의 희토류 소결 자석(1)을 자석 삽입 구멍(102)에 삽입하는 예를 나타냈지만, 자석 삽입 구멍(102) 및 희토류 소결 자석(1)의 수는 회전자(100)의 설계에 따라서 변경해도 된다. 회전자 철심(101)은, 원반 형상의 전자(電磁) 강관이, 회전축(RA)의 축선 방향으로 복수 적층하여 형성되어 있다.

[0069] 희토류 소결 자석(1)은, 실시형태 1에서 설명한 구조를 갖고, 실시형태 2에서 설명한 제조 방법에 따라 제조된 것이다. 4개의 희토류 소결 자석(1)은, 각각 대응하는 자석 삽입 구멍(102)에 삽입되어 있다. 4개의 희토류 소결 자석(1)은, 회전자(100)의 직경 방향의 외측에 있어서의 희토류 소결 자석(1)의 자극(磁極)이, 이웃하는 희토류 소결 자석(1)과의 사이에서 상이하도록, 각각 착자(着磁)되어 있다.

[0070] 이와 같이, 실시형태 3에 의한 회전자(100)는, 실온에 있어서의 자기 특성의 향상과 온도 상승에 수반하는 자기 특성의 저하의 억제를 실현할 수 있는 실시형태 1에 의한 희토류 소결 자석(1)을 구비한다. 이와 같이, 높은 잔류 자속 밀도와 보자력을 유지하면서, 온도 상승에 수반하는 자기 특성의 저하를 억제할 수 있는 희토류 소결 자석(1)이기 때문에, 100℃를 초과하는 고온 환경하에 있어서도, 자기 특성의 저하가 억제된다. 이 결과, 100℃를 초과하는 고온 환경하에 있어서도, 회전자(100)의 동작을 안정화시킬 수 있다.

[0071] 실시형태 4.

[0072] 다음으로, 실시형태 4에 의한 회전자(100)를 탑재한 회전기에 대하여 설명한다. 도 7은, 실시형태 4에 의한 회전기의 구성의 일례를 모식적으로 나타내는 단면도이다. 도 7에서는, 회전자(100)의 회전축(RA)에 수직인 방향의 단면을 나타내고 있다.

[0073] 회전기(120)는, 회전축(RA)을 중심으로 회전 가능한, 실시형태 3에서 설명한 회전자(100)와, 회전자(100)와 동축으로 마련되고, 회전자(100)에 대향 배치되는 환상의 고정자(130)를 구비한다. 고정자(130)는, 전자 강관이, 회전축(RA)의 축선 방향으로 복수 적층하여 형성되어 있다. 고정자(130)의 구성은 이것으로 한정되는 것은 아니고, 기존의 구성을 채용할 수 있다. 고정자(130)는, 회전자(100) 측으로 돌출된 티스(131)가, 고정자(130)의 내면을 따라 마련된다. 티스(131)에는 권선(132)이 비치되어 있다. 권선(132)의 감기 방식은 집중(集中) 감기에 한정되는 것은 아니고, 분포(分布) 감기여도 된다. 회전기(120) 중에 있는 회전자(100)의 자극수는 2극 이상, 즉, 희토류 소결 자석(1)은, 2개 이상이면 된다. 또한, 도 7에서는, 자석 매립형의 회전자(100)를 채용하고 있지만, 희토류 소결 자석(1)을 외주부에 접착제로 고정된 표면 자석형을 채용해도 된다.

[0074] 이와 같이, 실시형태 4에 의한 회전기(120)는, 실온에 있어서의 자기 특성의 향상과 온도 상승에 수반하는 자기 특성의 저하의 억제를 실현할 수 있는 실시형태 1에 의한 희토류 소결 자석(1)을 구비한다. 이와 같이, 높은 잔

류 자속 밀도와 보자력을 유지하면서, 온도 상승에 수반하는 자기 특성의 저하를 억제할 수 있는 희토류 소결 자석(1)이기 때문에, 100℃를 초과하는 고온 환경하에 있어서도, 자기 특성의 저하가 억제된다. 이 결과, 100℃를 초과하는 고온 환경하에 있어서도, 회전자(100)를 안정적으로 구동시켜, 회전기(120)의 동작을 안정화시킬 수 있다.

[0075] 실시예

[0076] 이하에, 실시예 및 비교예에 의해 본 개시의 희토류 소결 자석(1)의 상세를 설명한다.

[0077] 실시예 1 내지 8 및 비교예 1 내지 6에서는, 주상(10)의 조성이 상이한 복수의 희토류 자석 합금(37)의 R-Fe-B-M-N으로 나타나는 시료를 이용하여, 실시형태 2에 나타나는 방법에 의해 희토류 소결 자석(1)을 제조한다. 실시예 1 내지 8 및 비교예 1 내지 6에 의한 시료에서는, 원소 R의 부분을 변경하고 있다.

[0078] 실시예 1 내지 8 및 비교예 5, 6에서는, 원소 R에 있어서의 Nd, La 및 Sm의 함유량을 변경한 희토류 자석 합금(37)을 이용하여, 희토류 소결 자석(1)을 제조한다. 단, 실시예 1 내지 7에서는, 첨가 원소 N은 포함하지 않고, Cu, Al 및 Ga의 군으로부터 선택되는 1종 이상의 원소 M을 첨가한 희토류 자석 합금(37)을 이용하고 있다. 또한, 실시예 8에서는, 원소 M과, Co, Zr, Ti, Pr, Nb, Dy, Tb, Mn, Gd 및 Ho의 군으로부터 선택되는 1종류 이상의 첨가 원소 N을 첨가한 희토류 자석 합금(37)을 이용하고 있다.

[0079] 비교예 1, 3에서는, 원소 R이 Nd인 희토류 자석 합금(37)을 이용하고 있다. 단, 비교예 1에서는, 원소 M 및 첨가 원소 N을 포함하지 않고, 비교예 3에서는, 첨가 원소 N을 포함하지 않는다.

[0080] 비교예 2, 4에서는, 원소 R이 Nd와 중희토류 원소인 Dy를 포함하는 희토류 자석 합금(37)을 이용하고 있다. 단, 비교예 2에서는, 원소 M 및 첨가 원소 N을 포함하지 않고, 비교예 4에서는, 첨가 원소 N을 포함하지 않는다.

[0081] 표 3은, 실시예 및 비교예에 의한 희토류 소결 자석의 일반식, 원소 R을 구성하는 원소의 함유량, 조직 형태의 분석 결과 및 자기 특성의 관정 결과를 나타내는 표이다. 표 3에는, 실시예 1 내지 8 및 비교예 1 내지 6의 희토류 소결 자석(1)인 각 시료의 주상(10)의 일반식이 나타나 있다. 또한, 표 3에서는, 원소 M 및 첨가 원소 N에 대해서는, 첨가의 유무만을 나타내고 있다. 한편, 실시예 1 내지 8 및 비교예 3, 4에서는, 원소 M으로서, Cu, Al 및 Ga를 모두 포함하는 경우를 예로 든다.

표 3

비교예 1 비교예 2 비교예 3 비교예 4 비교예 5 비교예 6 실시예 1 실시예 2 실시예 3 실시예 4 실시예 5 실시예 6 실시예 7 실시예 8	일반식	함유량(at%)				원소 M 첨가 유무	원소 N 첨가 유무	조직 형태		편정			
		Nd	La	Sm	Dy			Sm 농도 제 1 부상 > 제 2 부상	원소 M 농도 제 1 부상 < 제 2 부상	진류 지속 밀도	보자력	진류 지속 밀도	보자력
비교예 1	Nd-Fe-B	11.23	-	-	-	무	무	X	X	-	-	-	-
비교예 2	(Nd,Dy)-Fe-B	10.01	-	-	1.12	무	무	X	X	양	양	양	양
비교예 3	Nd-Fe-B-M	11.23	-	-	-	유	무	X	X	양	양	양	양
비교예 4	(Nd,Dy)-Fe-B-M	10.01	-	-	1.12	유	무	X	X	양	양	양	양
비교예 5	(Nd,La,Sm)-Fe-B	9.64	1.06	1.05	-	무	무	X	X	양	양	양	양
비교예 6	(Nd,La,Sm)-Fe-B-N	9.74	1.01	1.01	-	무	유	X	X	양	양	양	양
실시예 1	(Nd,La,Sm)-Fe-B-M	9.66	1.03	1.07	-	유	무	O	O	양	양	양	양
실시예 2	(Nd,La,Sm)-Fe-B-M	11.64	0.51	0.45	-	유	무	O	O	양	양	양	양
실시예 3	(Nd,La,Sm)-Fe-B-M	12.01	0.23	0.21	-	유	무	O	O	양	양	양	양
실시예 4	(Nd,La,Sm)-Fe-B-M	13.30	0.05	0.04	-	유	무	O	O	양	양	양	양
실시예 5	(Nd,La,Sm)-Fe-B-M	11.70	0.53	0.21	-	유	무	O	O	양	양	양	양
실시예 6	(Nd,La,Sm)-Fe-B-M	11.74	0.23	0.52	-	유	무	O	O	양	양	양	양
실시예 7	(Nd,La,Sm)-Fe-B-M	14.35	0.05	0.05	-	유	무	O	O	양	양	양	양
실시예 8	(Nd,La,Sm)-Fe-B-M-N	14.20	0.11	0.12	-	유	유	O	O	양	양	양	양

(표 3)

[0082]

[0083]

다음으로, 실시예 1 내지 8 및 비교예 1 내지 6의 희토류 소결 자석(1)의 조직을 분석하는 방법에 대하여 설명한다. 희토류 소결 자석(1)의 조직 형태는, 주사형 전자 현미경(Scanning Electron Microscope: SEM) 및 전자 프로브 마이크로 애널리저(Electron Probe Micro Analyzer: EPMA)를 이용한 원소 분석에 의해 결정된다. 여기에서는, SEM 및 EPMA로서, 전계 방출형 전자 프로브 마이크로 애널리저(니혼 전자 주식회사제, 제품명: JXA-8530F)를 이용한다. 원소 분석의 조건은, 가속 전압이 15.0kV이고, 조사 전류가 22.71nA이고, 조사 시간이 130ms이고, 화소수가 512픽셀×512픽셀이고, 배율이 5000배이며, 적산 횟수가 1회이다.

[0084]

다음으로, 실시예 1 내지 8 및 비교예 1 내지 6에 의한 희토류 소결 자석(1)의 자기 특성의 평가 방법에 대하여 설명한다. 자기 특성의 평가는, 펄스 여자식의 BH 트레이서를 이용하여, 복수의 시료의보자력을 측정하는 것에 의해 행해진다. BH 트레이서에 의한 최대 인가 자장은, 희토류 소결 자석(1)이 완전히 착자된 상태가 되는 6T 이상이다. 펄스 여자식의 BH 트레이서 외에, 6T 이상의 최대 인가 자장을 발생시킬 수 있으면, 직류식의 BH 트레이서라고도 불리는 직류 자기 자속계, 진동 시료형 자력계(Vibrating Sample Magnetometer: VSM), 자기 특성 측정 장치(Magnetic Property Measurement System: MPMS), 물리 특성 측정 장치(Physical Property

Measurement System: PPMS) 등을 이용해도 된다. 측정은, 질소 등의 불활성 가스를 포함하는 분위기 중에서 행해진다. 각 시료의 자기 특성은, 서로 상이한 제 1 측정 온도 T1 및 제 2 측정 온도 T2의 각각의 온도에서 측정된다. 잔류 자속 밀도의 온도 계수 α [%/°C)는, 제 1 측정 온도 T1에서의 잔류 자속 밀도와 제 2 측정 온도 T2에서의 잔류 자속 밀도의 차와, 제 1 측정 온도 T1에서의 잔류 자속 밀도의 비를, 온도의 차(T2-T1)로 나눈 값이다. 또한, 보자력의 온도 계수 β [%/°C)는, 제 1 측정 온도 T1에서의 보자력과 제 2 측정 온도 T2에서의 보자력의 차와, 제 1 측정 온도 T1에서의 보자력의 비를, 온도의 차(T2-T1)로 나눈 값이다. 따라서, 자기 특성의 온도 계수의 절대치 $|\alpha|$ 및 $|\beta|$ 가 작아질수록, 온도 상승에 대한 자석의 자기 특성의 저하가 억제되게 된다.

[0085] 우선, 실시예 1 내지 8 및 비교예 1 내지 6에 의한 각 시료에 있어서의 분석 결과에 대하여 설명한다. 도 8은, 실시예 1 내지 8에 의한 희토류 소결 자석의 단면을 전계 방출형 전자 프로브 마이크로 애널라이저(Field Emission-Electron Probe Micro Analyzer: FE-EPMA)로 분석하여 얻어진 조성상이다. 도 9 내지 도 15는, 실시예 1 내지 8에 의한 희토류 소결 자석의 단면을 FE-EPMA로 분석하여 얻어진 원소 매핑이다. 도 9는, Nd의 원소 매핑이고, 도 10은, O의 원소 매핑이고, 도 11은, La의 원소 매핑이고, 도 12는, Sm의 원소 매핑이고, 도 13은, Cu의 원소 매핑이고, 도 14는, Al의 원소 매핑이며, 도 15는, Ga의 원소 매핑이다. 한편, 도 9 내지 도 15는, 도 8에 나타나는 영역을 원소 매핑한 것이다. 또한, 실시예 1 내지 8에 의한 희토류 소결 자석(1)은, 모두 마찬가지로의 결과를 나타내고 있으므로, 도 8 내지 도 15에서는, 실시예 1 내지 8 중 대표의 실시예에 대하여 나타내고 있다. 나아가, 도 1과 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 붙이고 있다.

[0086] 도 8 내지 도 12에 나타나는 바와 같이, 실시예 1 내지 8의 각 시료에 있어서, R₂Fe₁₄B 결정 구조를 기본으로 하는 결정립인 주상(10)과, (Nd, La, Sm)-O로 표시되는 산화물상을 주성분으로 하는 결정성의 제 1 부상(21)과, (Nd, La)-O로 표시되는 산화물상을 주성분으로 하는 결정성의 제 2 부상(22)이 존재하는 것을 확인할 수 있다. 또한, 실시예 1 내지 8의 각 시료에 있어서, 도 12에 나타나는 바와 같이, Sm의 농도는, 제 2 부상(22)에 비해서 제 1 부상(21) 쪽이 높은 것을 확인할 수 있다. 도 13 내지 도 15에 나타나는 바와 같이, Cu, Al 및 Ga의 균으로부터 선택되는 1종 이상의 원소 M의 농도는, 제 1 부상(21)에 비해서 제 2 부상(22) 쪽이 높은 것을 확인할 수 있다.

[0087] 표 3에는, Sm의 농도가, 제 2 부상(22)에 비해서 제 1 부상(21) 쪽이 높은 것에 대해서는, 조직 형태의 「Sm 농도 제 1 부상>제 2 부상」의 항목에서 나타내고, 원소 M의 농도가, 제 1 부상(21)에 비해서 제 2 부상(22) 쪽이 높은 것에 대해서는, 조직 형태의 「원소 M 농도 제 1 부상<제 2 부상」의 항목에서 나타내고 있다. 실시예 1 내지 8 및 비교예 1 내지 6에 대해서는, 이들의 상태를 확인할 수 있었던 시료에 대해서는, 「○」로 나타내고, 확인할 수 없었던 시료에 대해서는, 「×」로 나타내고 있다.

[0088] 또한, FE-EPMA로 분석하여 얻어진 원소 매핑의 강도비로부터, 제 1 부상(21) 및 제 2 부상(22)에 있어서의 La의 농도의 합은, 주상(10)에 있어서의 La의 농도 이상이고, 제 1 부상(21) 및 제 2 부상(22)에 있어서의 Sm의 농도의 합은, 주상(10)에 있어서의 Sm의 농도 이상인 것을 확인할 수 있다. 나아가, 제 1 부상(21)에 있어서의 La의 농도는, 제 2 부상(22)에 있어서의 La의 농도 이상인 것도 확인할 수 있다.

[0089] 여기에서, 주상(10), 제 1 부상(21) 및 제 2 부상(22)에 포함되는 La 농도와, 주상(10), 제 1 부상(21) 및 제 2 부상(22)에 포함되는 Sm 농도를 FE-EPMA로 분석하여 얻어진 원소 매핑의 강도비로부터, 주상(10), 제 1 부상(21) 및 제 2 부상(22)에 포함되는 La 농도와, 주상(10), 제 1 부상(21) 및 제 2 부상(22)에 포함되는 Sm 농도의 관계는, 상기 (1)식을 만족시키는 것인 것을 확인할 수 있다.

[0090] 다음으로, 실시예 1 내지 8 및 비교예 1 내지 6에 의한 각 시료에 있어서의 자기 특성의 측정 결과에 대하여 설명한다. 자기 측정을 행하는 각 시료의 형상은, 세로, 가로 및 높이가 모두 7mm인 블록 형상이다. 제 1 측정 온도 T1은 23°C이고, 제 2 측정 온도 T2는 200°C이다. 23°C는, 실온이다. 200°C는, 자동차용 모터 및 산업용 모터의 동작 시의 환경으로서, 일어날 수 있는 온도이다.

[0091] 우선, 실시예 1 내지 8 및 비교예 2 내지 6에 의한 각 시료에 있어서의 잔류 자속 밀도 및 보자력의 판정은, 비교예 1과 비교하여 행한다. 각 시료의 23°C에 있어서의 잔류 자속 밀도 및 보자력의 값이, 비교예 1에서의 값과 비교하여 측정 오차라고 생각되는 1% 이내의 값을 나타낸 경우에는, 「동등」이라고 판정하고, 1% 이상 높은 값을 나타낸 경우에는, 「양」이라고 판정하며, 1% 이하의 낮은 값을 나타낸 경우에는, 「불량」이라고 판정한다.

[0092] 다음으로, 잔류 자속 밀도의 온도 계수 α 는, 제 1 측정 온도 T1의 23°C에 있어서의 잔류 자속 밀도 및 제 2 측정 온도 T2의 200°C에 있어서의 잔류 자속 밀도를 이용하여 산출된다. 또한, 보자력의 온도 계수 β 는, 제 1 측정 온도 T1의 23°C에 있어서의 보자력 및 제 2 측정 온도 T2의 200°C에 있어서의 보자력을 이용하여 산출된다.

실시에 1 내지 8 및 비교예 2 내지 6에 의한 각 시료에 있어서의 잔류 자속 밀도의 온도 계수 및 보자력의 온도 계수는, 비교예 1과 비교하여 판정된다. 각 시료에 대하여, 비교예 1에 의한 시료에 있어서의 잔류 자속 밀도의 온도 계수의 절대치 $|\alpha|$ 및 보자력의 온도 계수의 절대치 $|\beta|$ 와 비교하여, 측정 오차라고 생각되는 $\pm 1\%$ 이내의 값을 나타낸 경우에는, 「동등」이라고 판정하고, -1% 보다 낮은 값을 나타낸 경우에는, 「양」이라고 판정하며, $+1\%$ 보다 높은 값을 나타낸 경우에는, 「불량」이라고 판정한다. 「양」이라고 판정된 시료에 대해서는, 온도 계수가 보다 작기 때문에, 온도 상승에 수반하는 자기 특성의 저하가 억제되어, 고온 환경하에 있어서도, 안정적인 자기 특성을 갖는 희토류 소결 자석(1)을 제공할 수 있다.

[0093] 이상의 잔류 자속 밀도, 보자력, 잔류 자속 밀도의 온도 계수 및 보자력의 온도 계수의 판정 결과는, 표 3에 나타나 있다.

[0094] 비교예 1은, Nd-Fe-B가 되도록, Nd, Fe 및 FeB를 원료로서 이용하여 실시형태 2의 제조 방법에 따라 제작한 희토류 소결 자석(1)의 시료이다. 이 시료의 조직 형태를 전술한 방법에 따라 관찰하면, Sm은 첨가되어 있지 않기 때문에, Sm의 농도는, 제 2 부상(22)에 비해서 제 1 부상(21) 쪽이 높은 것을 확인할 수 없다. 더욱이, 원소 M도 첨가되어 있지 않기 때문에, 원소 M의 농도는, 제 1 부상(21)에 비해서 제 2 부상(22) 쪽이 높은 것도 확인할 수 없다. 또한, 이 시료의 자기 특성을 전술한 방법에 따라 평가하면, 잔류 자속 밀도는 1.3T이며, 보자력은 1000kA/m이다. 잔류 자속 밀도 및 보자력의 온도 계수는, 각각 $|\alpha|=0.191\%/^{\circ}\text{C}$, $|\beta|=0.460\%/^{\circ}\text{C}$ 이다. 비교예 1의 이들 값이 레퍼런스로서 이용된다.

[0095] 비교예 2는, (Nd, Dy)-Fe-B가 되도록, Nd, Dy, Fe 및 FeB를 원료로서 이용하여 실시형태 2의 제조 방법에 따라 제작한 희토류 소결 자석(1)의 시료이다. 이 시료의 조직 형태를 전술한 방법에 따라 관찰하면, Sm은 첨가되어 있지 않기 때문에, Sm의 농도는, 제 2 부상(22)에 비해서 제 1 부상(21) 쪽이 높은 것을 확인할 수 없다. 더욱이, 원소 M도 첨가되어 있지 않기 때문에, 원소 M의 농도는, 제 1 부상(21)에 비해서 제 2 부상(22) 쪽이 높은 것도 확인할 수 없다. 또한, 이 시료의 자기 특성을 전술한 방법에 따라 평가하면, 잔류 자속 밀도는 「불량」이 되고, 보자력은 「양」이 되고, 잔류 자속 밀도의 온도 계수는 「동등」이 되며, 보자력의 온도 계수는 「동등」이 된다. 이것은, 결정 자기 이방성이 높은 Dy가 Nd의 일부와 치환된 것에 의해, 보자력이 향상된 것을 반영한 결과가 되고 있다.

[0096] 비교예 3은, Nd-Fe-B-M이 되도록, Nd, Fe 및 FeB, 추가로 원소 M을 원료로서 이용하여 실시형태 2의 제조 방법에 따라 제작한 희토류 소결 자석(1)의 시료이다. 이 시료의 조직 형태를 전술한 방법에 따라 관찰하면, Sm이 첨가되어 있지 않기 때문에, Sm의 농도는, 제 2 부상(22)에 비해서 제 1 부상(21) 쪽이 높은 것을 확인할 수 없다. 또한, 원소 M은 첨가되어 있지만, Sm이 존재하지 않는 것에 의해, 제 1 부상(21) 및 제 2 부상(22)이 형성되지 않고, 원소 M의 농도는, 제 1 부상(21)에 비해서 제 2 부상(22) 쪽이 높은 것도 확인할 수 없다. 이 시료의 자기 특성을 전술한 방법에 따라 평가하면, 잔류 자속 밀도는 「동등」이 되고, 보자력은 「양」이 되고, 잔류 자속 밀도의 온도 계수는 「동등」이 되며, 보자력의 온도 계수는 「동등」이 된다. 이것은, 원소 M에 의해 결정립계가 비자성화되어, 보자력은 향상되지만, La 및 Sm이 존재하지 않는 것에 의해, 부상(20)에 있어서의 Sm의 농도 및 원소 M의 농도가 적절한 조직 형태가 아닌 것을 반영한 결과가 되고 있다.

[0097] 비교예 4는, (Nd, Dy)-Fe-B-M이 되도록, Nd, Dy, Fe 및 FeB, 추가로 원소 M을 원료로서 이용하여 실시형태 2의 제조 방법에 따라 제작한 희토류 소결 자석(1)의 시료이다. 이 시료의 조직 형태를 전술한 방법에 따라 관찰하면, Sm이 첨가되어 있지 않기 때문에, Sm의 농도는, 제 2 부상(22)에 비해서 제 1 부상(21) 쪽이 높은 것을 확인할 수 없다. 또한, 원소 M은 첨가되어 있지만, Sm이 존재하지 않는 것에 의해, 제 1 부상(21) 및 제 2 부상(22)이 형성되지 않고, 원소 M의 농도는, 제 1 부상(21)에 비해서 제 2 부상(22) 쪽이 높은 것도 확인할 수 없다. 또한, 이 시료의 자기 특성을 전술한 방법에 따라 평가하면, 잔류 자속 밀도는 「불량」이 되고, 보자력은 「양」이 되고, 잔류 자속 밀도의 온도 계수는 「동등」이 되며, 보자력의 온도 계수는 「동등」이 된다. 이것은, 결정 자기 이방성이 높은 Dy가 Nd의 일부와 치환되고, M에 의해 결정립계가 비자성화된 것에 의해, 보자력은 향상되지만, La 및 Sm이 존재하지 않는 것에 의해, 부상(20)에 있어서의 Sm의 농도 및 원소 M의 농도가 적절한 조직 형태가 아닌 것을 반영한 결과가 되고 있다.

[0098] 비교예 5는, (Nd, La, Sm)-Fe-B가 되도록, Nd, La, Sm, Fe 및 FeB를 원료로서 이용하여 실시형태 2의 제조 방법에 따라 제작한 희토류 소결 자석(1)의 시료이다. 이 시료의 조직 형태를 전술한 방법에 따라 관찰하면, Sm은 첨가되어 있지만, M은 첨가되어 있지 않기 때문에, 제 1 부상(21) 및 제 2 부상(22)의 2종류의 부상(20)을 확인할 수 없을 뿐 아니라, Sm 농도는 주상(10) 및 부상(20)에 균일하게 분산되어 있다. 더욱이, 2종류의 부상(20)이 존재하지 않기 때문에, Sm 농도는, 제 2 부상(22)에 비해서 제 1 부상(21) 쪽이 높은 것도 확인할 수 없다.

더욱이, 원소 M도 첨가되어 있지 않기 때문에, 원소 M의 농도는, 제 1 부상(21)에 비해서 제 2 부상(22) 쪽이 높은 것도 확인할 수 없다. 또한, 이 시료의 자기 특성을 전술한 방법에 따라 평가하면, 잔류 자속 밀도는 「불량」이 되고, 보자력은 「불량」이 되고, 잔류 자속 밀도의 온도 계수는 「양」이 되며, 보자력의 온도 계수는 「양」이 된다. 이것은, La, Sm이 주상(10) 또는 부상(20)에 존재하는 것에 의해, 자기 특성의 온도 계수는 양호한 결과를 나타내고 있지만, 2종류의 부상(20)이 존재하지 않는 것, 및 이들 부상(20)에 있어서의 Sm의 농도 및 원소 M의 농도가 적절한 조직 형태가 아닌 것을 반영한 결과가 되고 있다.

[0099] 비교예 6은, (Nd, La, Sm)-Fe-B-N이 되도록, Nd, La, Sm, Fe 및 FeB, 추가로 Co, Zr, Ti, Pr, Nb, Dy, Tb, Mn, Gd 및 Ho의 군으로부터 선택되는 1종 이상의 첨가 원소 N을 원료로서 이용하여 실시형태 2의 제조 방법에 따라 제작한 희토류 소결 자석(1)의 시료이다. 이 시료의 조직 형태를 전술한 방법에 따라 관찰하면, Sm은 첨가되어 있지만, 원소 M은 첨가되어 있지 않기 때문에, 제 1 부상(21) 및 제 2 부상(22)의 2종류의 부상(20)을 확인할 수 없을 뿐 아니라, Sm 농도는 주상(10) 및 부상(20)에 균일하게 분산되어 있다. 더욱이, 2종류의 부상(20)이 존재하지 않기 때문에, Sm 농도는, 제 2 부상(22)에 비해서 제 1 부상(21) 쪽이 높은 것도 확인할 수 없다. 더욱이, 원소 M도 첨가되어 있지 않기 때문에, 원소 M의 농도는, 제 1 부상(21)에 비해서 제 2 부상(22) 쪽이 높은 것도 확인할 수 없다. 또한, 이 시료의 자기 특성을 전술한 방법에 따라 평가하면, 잔류 자속 밀도는 「양」이 되고, 보자력은 「불량」이 되고, 잔류 자속 밀도의 온도 계수는 「양」이 되며, 보자력의 온도 계수는 「양」이 된다. La, Sm이 주상(10) 또는 부상(20)에 존재하는 것에 의해, 자기 특성의 온도 계수는 양호한 결과를 나타내고 있다. 또한, 자성체인 Co 등의 첨가 원소 N의 효과에 의해, 자속 밀도는 향상되고 있다. 그러나, 2종류의 부상(20)이 존재하지 않는 것, 및 이들 부상(20)에 있어서의 Sm의 농도 및 원소 M의 농도가 적절한 조직 형태가 아닌 것을 반영한 결과가 되고 있다.

[0100] 실시예 1 내지 7은, (Nd, La, Sm)-Fe-B-M이 되도록, Nd, La, Sm, Fe 및 FeB, 추가로 원소 M을 원료로서 이용하여 실시형태 2의 제조 방법에 따라 제작한 희토류 소결 자석(1)의 시료이다. 이들 시료의 조직 형태를 전술한 방법에 따라 관찰하면, Sm의 농도는, 제 2 부상(22)에 비해서 제 1 부상(21) 쪽이 높은 것을 확인할 수 있다. 나아가, 원소 M의 농도는, 제 1 부상(21)에 비해서 제 2 부상(22) 쪽이 높은 것을 확인할 수 있다. 또한, 이들 시료의 자기 특성을 전술한 방법에 따라 평가하면, 잔류 자속 밀도는 「양」이 되고, 보자력은 「양」이 되고, 잔류 자속 밀도의 온도 계수는 「양」이 되며, 보자력의 온도 계수는 「양」이 된다.

[0101] 실시예 8은, (Nd, La, Sm)-Fe-B-M-N이 되도록, Nd, La, Sm, Fe 및 FeB, 원소 M, 추가로 첨가 원소 N을 원료로서 이용하여 실시형태 2의 제조 방법에 따라 제작한 희토류 소결 자석(1)의 시료이다. 이 시료의 조직 형태를 전술한 방법에 따라 관찰하면, Sm의 농도는, 제 2 부상(22)에 비해서 제 1 부상(21) 쪽이 높은 것을 확인할 수 있다. 나아가, 원소 M의 농도는, 제 1 부상(21)에 비해서 제 2 부상(22) 쪽이 높은 것을 확인할 수 있다. 또한, 이들 시료의 자기 특성을 전술한 방법에 따라 평가하면, 잔류 자속 밀도는 「양」이 되고, 보자력은 「양」이 되고, 잔류 자속 밀도의 온도 계수는 「양」이 되며, 보자력의 온도 특성 평가는 「양」이 된다. 이것은, 적당한 조직 형태가 형성될 수 있으면, 첨가 원소 N을 첨가하고 있더라도 얻어지는 효과는 달라지지 않는 것을 나타내고 있다.

[0102] 실시예 1 내지 8의 시료는, 일반식 (Nd, La, Sm)-Fe-B-M을 만족시키는 희토류 소결 자석(1)으로서, $R_2Fe_{14}B$ 결정 구조를 기본으로 하는 결정립을 포함하는 주상(10)과, (Nd, La, Sm)-O로 표시되는 산화물상을 주성분으로 하는 결정성의 제 1 부상(21)과, (Nd, La)-O로 표시되는 산화물상을 주성분으로 하는 결정성의 제 2 부상(22)을 갖는 희토류 소결 자석(1)이다. 상기한 바와 같이, 실시예 1 내지 8의 희토류 소결 자석(1)에서는, Sm의 농도는, 제 2 부상(22)에 비해서 제 1 부상(21) 쪽이 높고, 원소 M의 농도는, 제 1 부상(21)에 비해서 제 2 부상(22) 쪽이 높은 것을 특징으로 한다. 이 결과, 이들 희토류 소결 자석(1)은, Nd-Fe-B를 만족시키는 희토류 소결 자석과 비교하여, 고가이고 지역 편재성이 높아 조달 리스크가 있는 Nd 및 중희토류 원소의 사용을 억제하면서, 실온에 있어서의 자기 특성의 향상과 온도 상승에 수반하는 자기 특성의 저하의 억제를 실현할 수 있다.

[0103] 이상의 실시형태에 나타난 구성은, 일례를 나타내는 것이고, 다른 공지의 기술과 조합하는 것도 가능하고, 실시 형태끼리를 조합하는 것도 가능하며, 요지를 일탈하지 않는 범위에서, 구성의 일부를 생략, 변경하는 것도 가능하다.

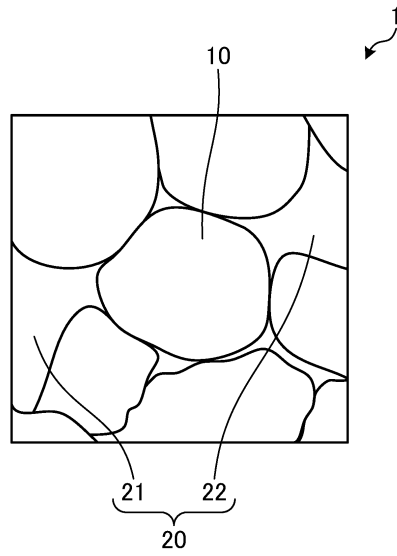
부호의 설명

[0104] 1 희토류 소결 자석, 10 주상, 20 부상, 21 제 1 부상, 22 제 2 부상, 31 감과, 32 합금 용탕, 33 턴디시, 34 단롤, 35 응고 합금, 36 트레이 용기, 37 희토류 자석 합금, 100 회전자, 101 회전자 철심, 102 자석 삽입

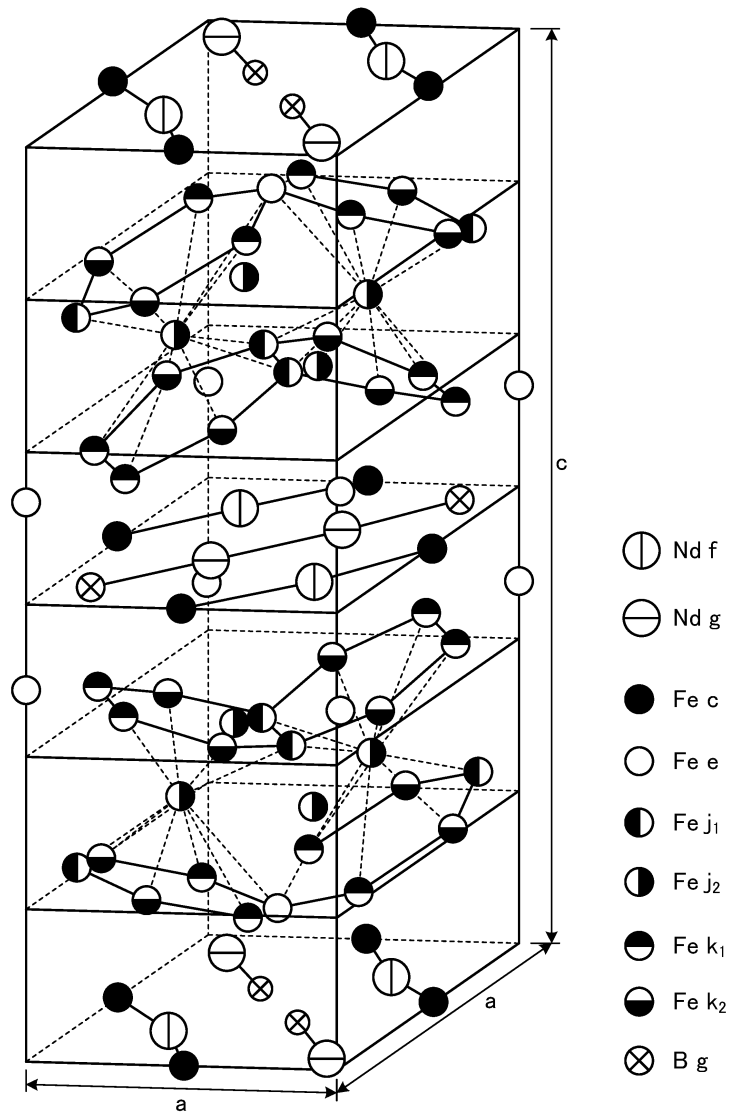
구멍, 120 회전기, 130 고정자, 131 티스, 132 권선.

도면

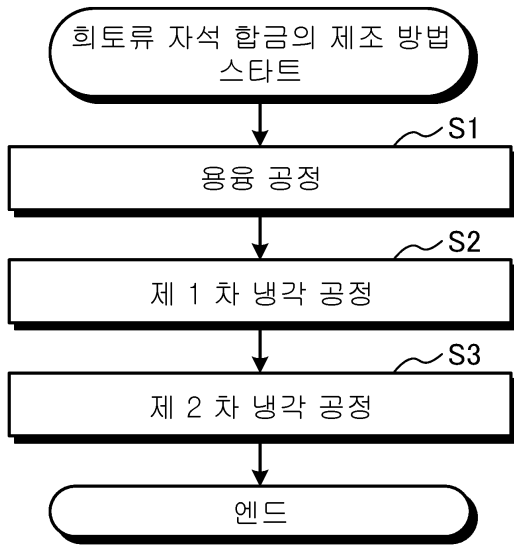
도면1



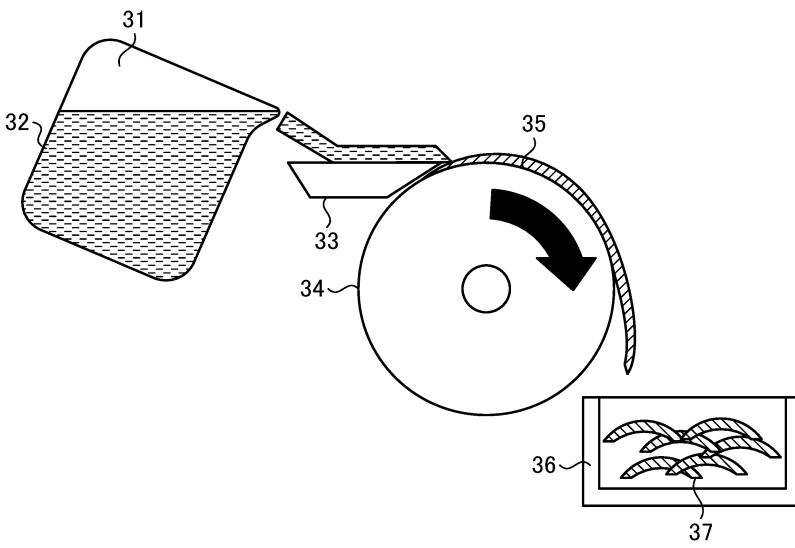
도면2



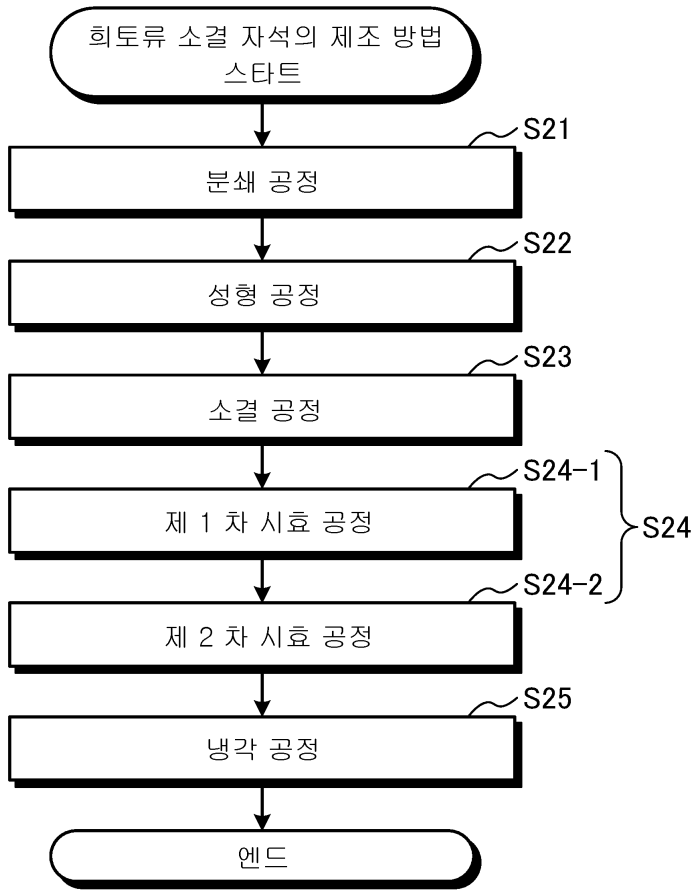
도면3



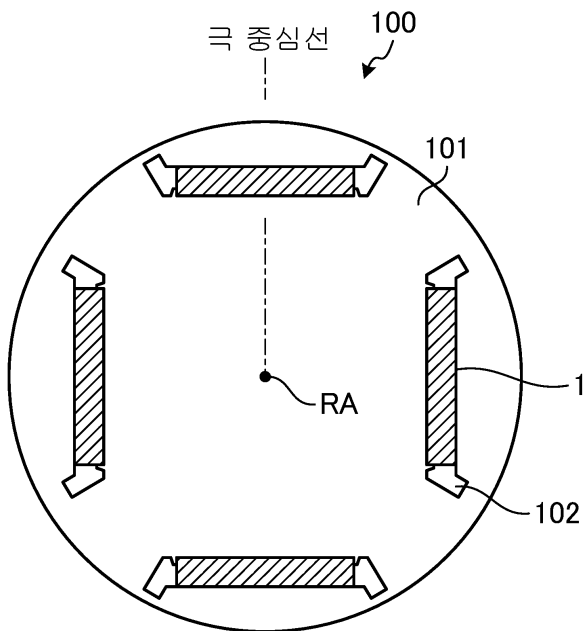
도면4



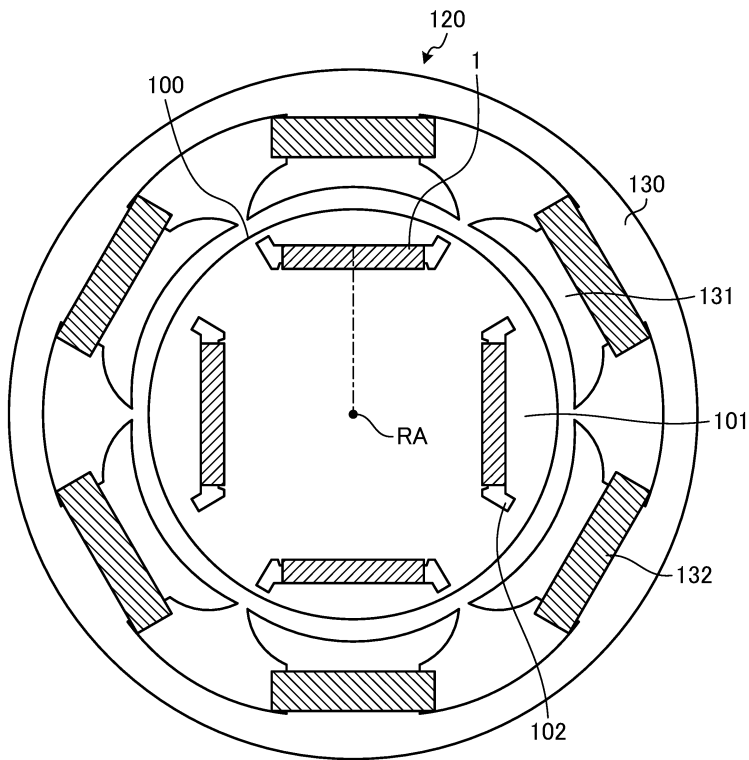
도면5



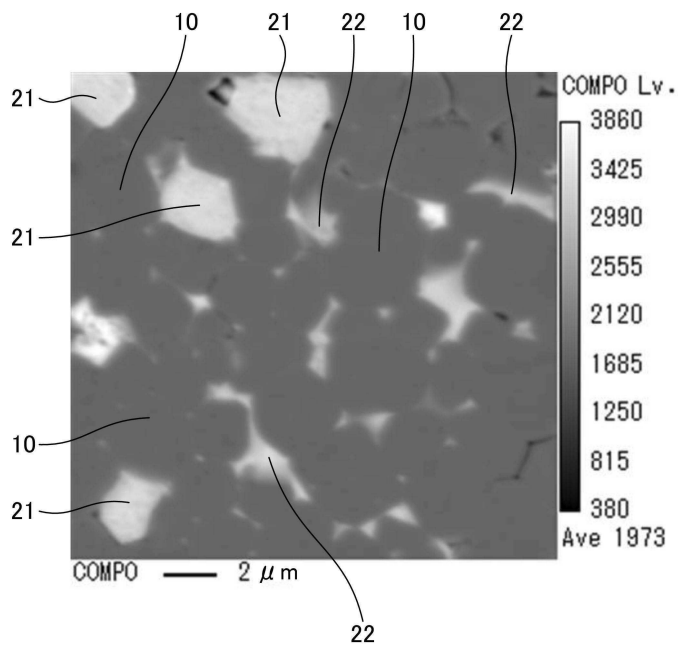
도면6



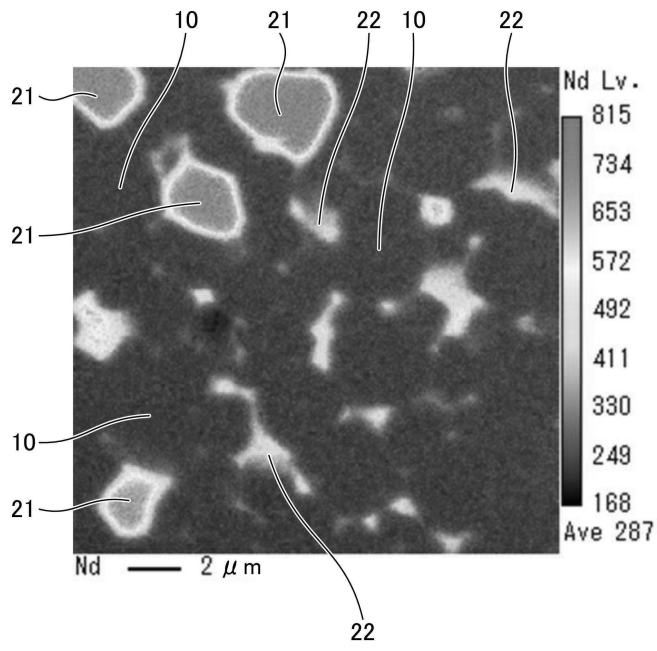
도면7



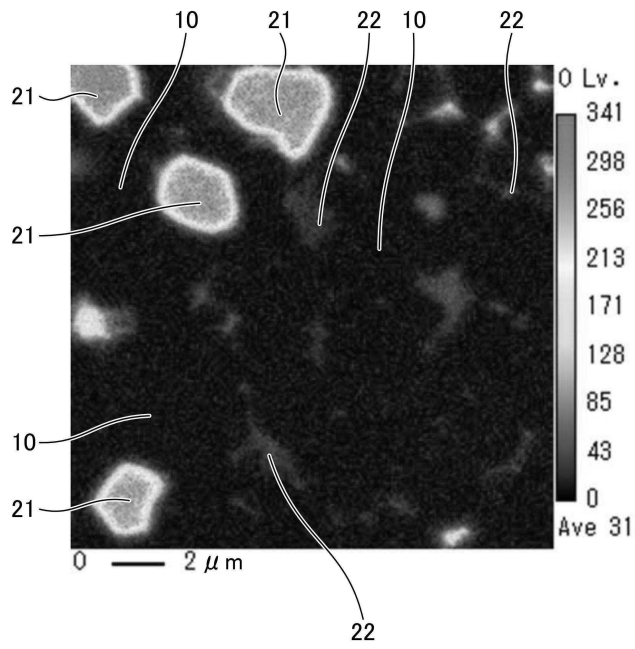
도면8



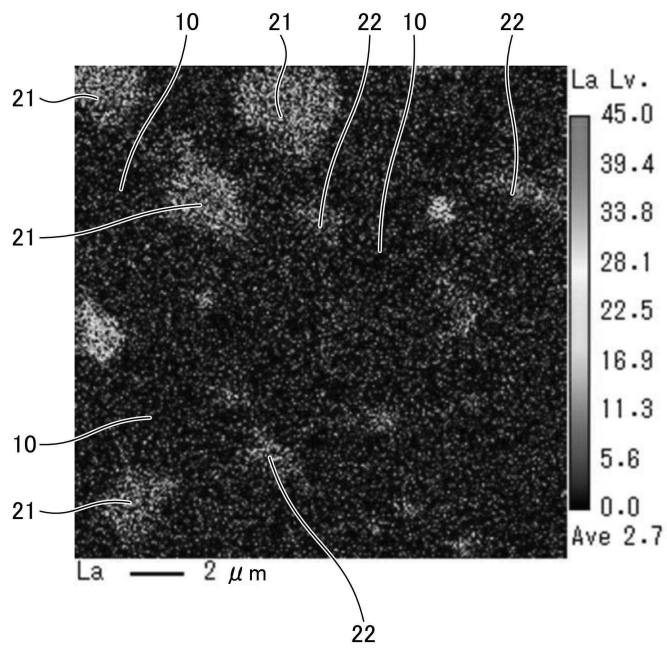
도면9



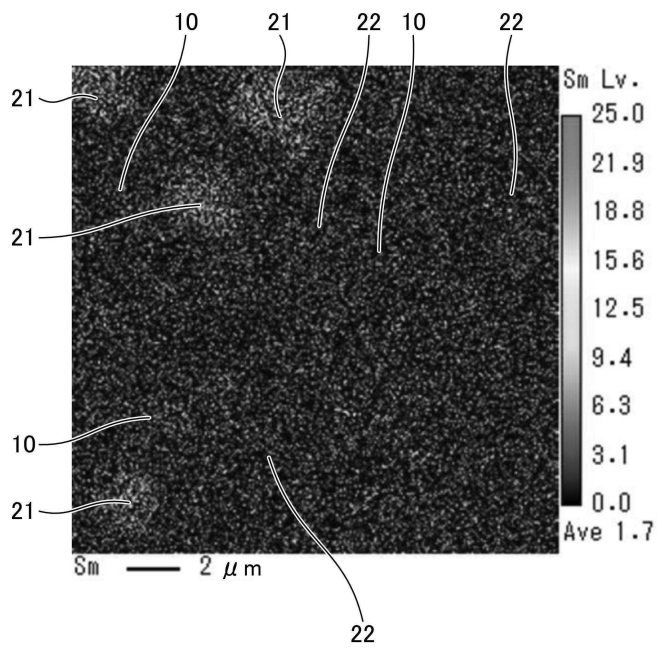
도면10



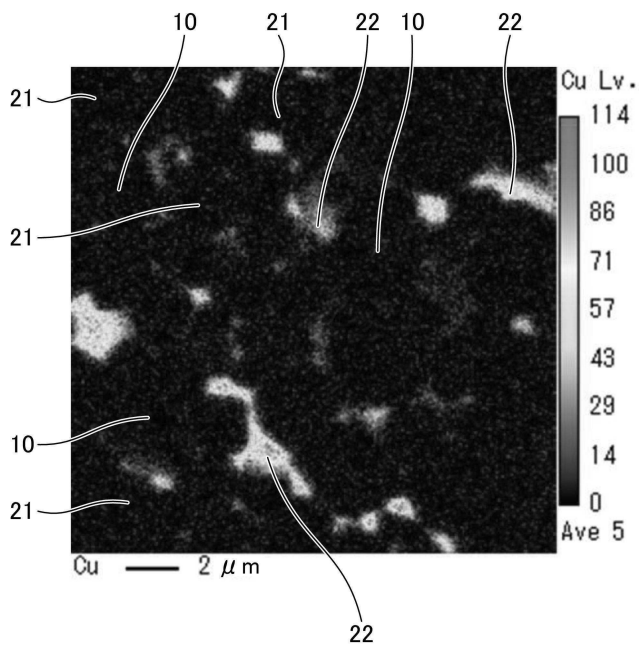
도면11



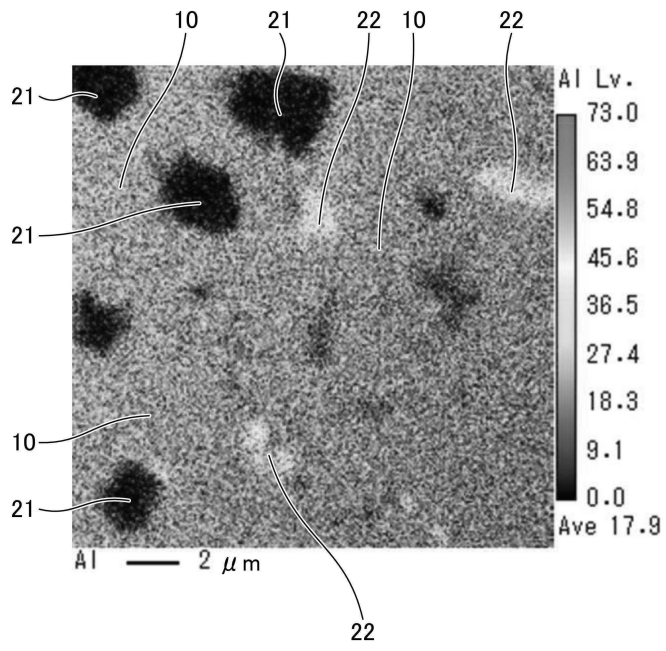
도면12



도면13



도면14



도면15

