

(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
2012 年 11 月 29 日(29.11.2012)



(10) 国際公開番号
WO 2012/161355 A1

- (51) 国際特許分類:
H01F 1/057 (2006.01) C22C 38/00 (2006.01)
B22F 1/00 (2006.01) H01F 1/08 (2006.01)
B22F 3/10 (2006.01) H01F 41/02 (2006.01)
C22C 33/02 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/064254
- (22) 国際出願日: 2012 年 5 月 25 日(25.05.2012)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2011-117447 2011 年 5 月 25 日(25.05.2011) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): T D K 株式会社(TDK Corporation) [JP/JP]; 〒1038272 東京都中央区日本橋一丁目 1 3 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 日▲高▼ 徹也(HIDAKA, Tetsuya) [JP/JP]; 〒1038272 東京都

中央区日本橋一丁目 1 3 番 1 号 T D K 株式会社内 Tokyo (JP). 佐藤 和生(SATO, Kazuo) [JP/JP]; 〒1038272 東京都中央区日本橋一丁目 1 3 番 1 号 T D K 株式会社内 Tokyo (JP). 坂元 一也(SAKAMOTO, Kazuya) [JP/JP]; 〒1038272 東京都中央区日本橋一丁目 1 3 番 1 号 T D K 株式会社内 Tokyo (JP). 藤戸 津哉(FUJITO, Shinya) [JP/JP]; 〒1038272 東京都中央区日本橋一丁目 1 3 番 1 号 T D K 株式会社内 Tokyo (JP). 寶迫 元彰(HOSAKO, Motoaki) [JP/JP]; 〒1038272 東京都中央区日本橋一丁目 1 3 番 1 号 T D K 株式会社内 Tokyo (JP). 村田 素久(MURATA, Motohisa) [JP/JP]; 〒1038272 東京都中央区日本橋一丁目 1 3 番 1 号 T D K 株式会社内 Tokyo (JP). 三竹 晃司(MITAKE, Koji) [JP/JP]; 〒1038272 東京都中央区日本橋一丁目 1 3 番 1 号 T D K 株式会社内 Tokyo (JP).

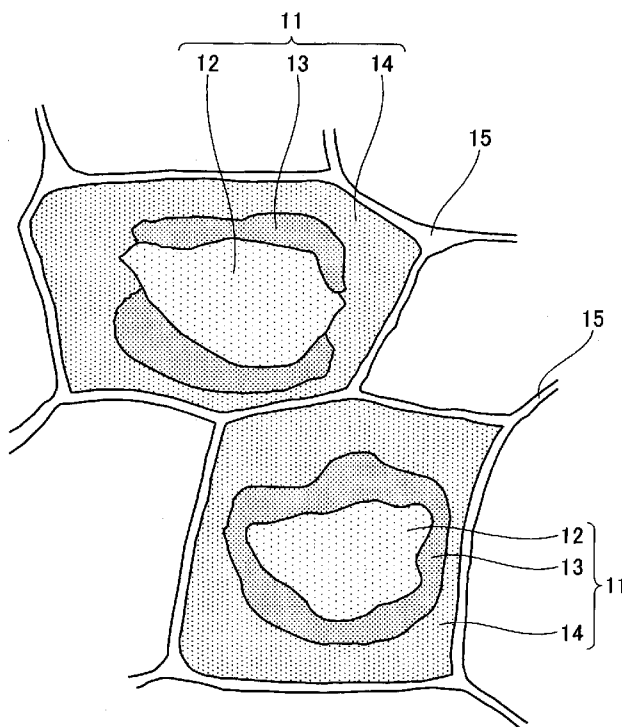
- (74) 代理人: 酒井 宏明(SAKAI, Hiroaki); 〒1006020 東京都千代田区霞が関三丁目 2 番 5 号 霞が関ビルディング 酒井国際特許事務所 Tokyo (JP).

[続葉有]

(54) Title: RARE EARTH SINTERED MAGNET, METHOD FOR MANUFACTURING RARE EARTH SINTERED MAGNET AND ROTARY MACHINE

(54) 発明の名称: 希土類焼結磁石、希土類焼結磁石の製造方法及び回転機

第1図



(57) Abstract: Provided are a rare earth sintered magnet having excellent corrosion resistance and improved temperature characteristics and strength, a method for manufacturing a rare earth sintered magnet, and a rotary machine. A rare earth sintered magnet includes at least a main phase (11) comprising an $R_2T_{14}B$ chemical compound (where R is one or more rare earth element including as the principle component either or both of Nd and Pr, and T indicates one or more transition element including Fe or Fe and Co) and a grain boundary phase (15) containing more R than the main phase (11). The main phase (11) includes a heavy rare earth element (including at least either or both of Dy and Tb). The main phase grains of at least part of the main phase (11) contained in the rare earth sintered magnet include at least three regions, namely, a low concentration region (12), a high concentration region (13) and an intermediate concentration region (14). These three regions are present in the following order: low concentration region (12), high concentration region (13) and intermediate concentration region (14), from the low concentration region (12) going towards the grain boundary phase (15) in a main phase grain.

(57) 要約:

[続葉有]



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

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW,

MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

温度特性と強度とを向上させると共に優れた耐食性を有する希土類焼結磁石、希土類焼結磁石の製造方法及び回転機を提供する。本発明に係る希土類焼結磁石は、 $R_2T_{14}B$ (RはNd、Prの何れか一方又は両方を主成分として含む1種以上の希土類元素であり、TはFe又はFe及びCoを含む1種以上の遷移元素を表す) 化合物からなる主相11と、主相11よりRを多く含む粒界相15とを少なくとも含む希土類焼結磁石であり、主相11は、重希土類元素 (少なくともDy、Tbの何れか一方又は両方を含む) を含み、希土類焼結磁石に含まれる主相11のうちの少なくとも1部の主相粒子は、低濃度領域12、高濃度領域13および中濃度領域14の少なくとも3つの領域を含み、この3つの領域は主相粒子内において低濃度領域12から粒界相15へ向かって、低濃度領域12、高濃度領域13、中濃度領域14の順に存在していることを特徴とする。

明 細 書

発明の名称：

希土類焼結磁石、希土類焼結磁石の製造方法及び回転機

技術分野

[0001] 本発明は、モータなどの回転機や磁気共鳴画像装置 (Magnetic Resonance Imaging system; MRI) などの磁場発生装置に使用される希土類焼結磁石、希土類焼結磁石の製造方法及び回転機に関する。

背景技術

[0002] 希土類焼結磁石として、 $R-T-B$ (R はNd、Prの何れか一方又は両方を主成分として含む1種以上の希土類元素を表し、 T はFe又はFe及びCoを含む1種以上の遷移元素を表し、 B はB又はB及びCを表す) 系の組成を有する希土類焼結磁石 ($R-T-B$ 系希土類焼結磁石) が知られている。 $R-T-B$ 系希土類焼結磁石は、 $R_2T_{14}B$ 化合物からなる主相と、主相より R を多く含む R リッチ相を含む粒界相とを含む組織を有する。 $R-T-B$ 系希土類焼結磁石は、高い保磁力 H_cJ を有するなど優れた磁気特性を発揮する磁石である。そのため、 $R-T-B$ 系希土類焼結磁石は、高性能な永久磁石として、電気自動車やハイブリッドカー、ハードディスクドライブ (Hard disk drive: HDD) のボイスコイルモータ (Voice Coil Motor: VCM)、MRIのような磁場発生装置など高性能が要求されるモータ、発電機などに幅広く使用されており、特に高磁気特性が要求されるような用途に用いられている。

[0003] $R-T-B$ 系希土類焼結磁石は、組成に R を含むため活性は高く、例えば、大気中の酸素により酸化し易いため、素体としての耐食性は高くなく酸化により磁気特性は低下し易い。また、 $R-T-B$ 系希土類焼結磁石をモータ等の各種装置に使用する場合、高温環境下での使用に対応するため、 $R-T-B$ 系希土類焼結磁石は良好な保磁力 H_cJ を維持できる温度特性が要求される。

[0004] また、R-T-B系希土類焼結磁石に表面処理が施される際、前処理としてバレルなどで面取り加工が一般的に行われている。そのため、R-T-B系希土類焼結磁石の強度が低いと、加工によりチップングを含む割れや欠けが発生し、歩留まりが悪くなる。更に、R-T-B系希土類焼結磁石を用いた製品が多様化されるに伴い、より薄くて小さい製品が求められている。このようなより薄くて小さい製品は割れや欠けが比較的生じやすい。そのため、こうした製品を製造する際における歩留まりを向上させるため、より機械的強度が高いR-T-B系希土類焼結磁石が要求される。

[0005] そのため、R-T-B系希土類焼結磁石の温度特性と強度を向上させると共に、R-T-B系希土類焼結磁石の耐食性の改善を図るため、R-T-B系希土類焼結磁石の改良の検討が種々行われている。

[0006] こうしたR-T-B系希土類焼結磁石の特性の向上を図るため、従来では、例えば、 $R_2T_{14}B$ 化合物からなる主相内に重希土類元素としてDyを高濃度にした領域を複数有するようにすることで、保磁力 H_cJ が高く、残留磁束密度 B_r の低下を抑制したR-T-B系希土類焼結磁石が提案されている（例えば、特許文献1参照）。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：特開平07-122413号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] しかしながら、主相粒子内にDyを高濃度にした領域が複数存在するだけでは、希土類焼結磁石の磁気特性を十分に安定して向上させることはできない。

[0009] 特に、近年、R-T-B系希土類焼結磁石は自動車や産業機器など更に幅広い用途で用いられる傾向にあり、従来と比較して高温環境下においてR-T-B系希土類焼結磁石の用途が増加している。このため、高温環境下にお

いても保磁力 $H_c J$ を高く維持できるように $R-T-B$ 系希土類焼結磁石の温度特性を向上させることが求められている。また、 $R-T-B$ 系希土類焼結磁石の強度を向上させると共に耐食性の改善を図ることが求められている。

[0010] 本発明は、上記に鑑みてなされたものであって、温度特性と強度とを向上させると共に優れた耐食性を有する希土類焼結磁石、希土類焼結磁石の製造方法及び回転機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

[0011] 上述した課題を解決し、目的を達成するために、本発明者らは希土類焼結磁石について鋭意研究をした。その結果、希土類焼結磁石に含まれる主相粒子の一部に、重希土類元素（少なくとも Dy 、 Tb の何れか一方又は両方を含む）の濃度に応じて、重希土類元素の濃度が異なる少なくとも3つの領域が形成されることに着目した。3つの領域とは、低濃度領域と高濃度領域と中濃度領域とである。この3つの領域が主相内に低濃度領域から粒界相に向かって、低濃度領域、高濃度領域、中濃度領域の順で3層構造を形成するようにして含まれている。これにより、高温環境下においても保磁力 $H_c J$ を高く維持でき、 $R-T-B$ 系希土類焼結磁石の温度特性を向上させることができることを見出した。また、 $R-T-B$ 系希土類焼結磁石の強度を向上させることができると共に、優れた耐食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] この目的を達成するために、本発明に係る希土類焼結磁石は、 $R_2T_{14}B$ （ R は Nd 、 Pr の何れか一方又は両方を主成分として含む1種以上の希土類元素であり、 T は Fe 又は Fe 及び Co を含む1種以上の遷移元素を表す）化合物からなる主相と、前記主相より R を多く含む粒界相とを少なくとも含む希土類焼結磁石であり、前記主相は、重希土類元素（少なくとも Dy 、 Tb の何れか一方又は両方を含む）を含み、前記希土類焼結磁石に含まれる前記主相のうちの少なくとも1部の主相粒子は、前記重希土類元素の濃度が異なる少なくとも3つの領域を含み、前記重希土類元素の濃度の異なる3つの領

域は、前記重希土類元素の濃度が3つの領域において最も低い低濃度領域と、前記重希土類元素の濃度が3つの領域において最も高い高濃度領域と、前記重希土類元素の濃度が前記低濃度領域より高く、前記高濃度領域よりも低い中濃度領域とであり、前記3つの領域は、前記主相粒子内において前記低濃度領域から前記粒界相へ向かって、前記低濃度領域、前記高濃度領域、前記中濃度領域の順に存在していることを特徴とする。

[0013] 主相粒子は重希土類元素の濃度に応じて少なくとも3つの領域を含むことで、重希土類元素の濃度の差により逆磁区の磁壁の移動が抑制される。このため、主相の全領域にわたって均一な高濃度領域だけで主相が形成されている場合や低濃度領域の外側に低濃度領域と比較して希土類濃度の高い領域を含む主相が形成されている場合に比べ、高温環境下においても保磁力 $H_c J$ を高く維持できる。すなわち、得られる希土類焼結磁石の温度特性を向上できると考えられる。

[0014] また、一般にNdなどの軽希土類元素と比較して重希土類元素は酸化しやすい傾向にあるが、本発明において、主相粒子の一部は重希土類元素の濃度に応じて3つの領域を含み、粒界相に近い領域に中濃度領域が形成されている。そのため、主相の全領域に高濃度領域だけで主相が形成されている場合や低濃度領域の外側に高濃度領域を含む主相が形成されている場合に比べ、希土類焼結磁石の耐食性を向上できると考えられる。

[0015] また、 $R_2T_{14}B$ 系希土類焼結磁石は、主相と粒界相間で破断して破壊され易いことから、主相と粒界相との界面状態が希土類焼結磁石の全体の強度に影響している。本発明においては、主相粒子の一部は重希土類元素の濃度に応じて少なくとも3つの領域を含んでいる。そして、主相は3つの領域を低濃度領域から粒界相に向かって、低濃度領域、高濃度領域、中濃度領域の順に含んでいる。すなわち、主相と粒界相との界面状態が改善され、希土類焼結磁石の強度を高めることができると考えられる。

[0016] よって、本発明に係る希土類焼結磁石によれば、希土類焼結磁石に含まれる主相のうちの少なくとも1部の主相粒子は重希土類元素の濃度が異なる3

つの領域を含み、3つの領域は、低濃度領域と、高濃度領域と、中濃度領域とである。3つの領域は、主相内の低濃度領域から粒界相に向かって、低濃度領域、高濃度領域、中濃度領域の順に存在している。このため、温度特性と強度とを向上させることができると共に優れた耐食性を有することができる。

[0017] また、本発明に係る希土類焼結磁石は、主相のうちの少なくとも1部の主相粒子は少なくとも3つの領域を含んでいる。そのため、本発明に係る希土類焼結磁石は、主相の全領域に高濃度領域だけで形成されている主相や低濃度領域の外側に高濃度領域を含んで形成されている主相で形成されている磁石に比べ、同等の保磁力 $H_c J$ を有する希土類焼結磁石を少量の重希土類元素を用いて作製することができる。このため、得られる希土類焼結磁石を作製するために要する費用の軽減を図ることができる。

[0018] また、本発明においては、前記低濃度領域の少なくとも一部に前記高濃度領域が隣接し、かつ前記高濃度領域の少なくとも一部に前記中濃度領域が隣接している主相粒子が、前記希土類焼結磁石中に5%以上存在していることが好ましい。主相粒子を所定量含むことで、得られる希土類焼結磁石の特性を安定して得ることができる。

[0019] また、本発明においては、前記主相粒子が、前記希土類焼結磁石中に30%以上存在していることが好ましい。これにより、3つの領域が低濃度領域の少なくとも一部に高濃度領域が隣接し、高濃度領域の少なくとも一部に中濃度領域が隣接した主相粒子が多くなるため、得られる希土類焼結磁石の特性を更に安定して高めることができる。

[0020] また、本発明においては、前記低濃度領域の周囲全てに前記高濃度領域が隣接し、かつ前記高濃度領域の周囲全てに前記中濃度領域が隣接している主相粒子が、前記希土類焼結磁石中に3%以上存在していることが好ましい。これにより、3つの領域が低濃度領域、高濃度領域および中濃度領域の順で低濃度領域から粒界相に向かって円周状に形成されている状態で主相粒子に含まれる。このような主相粒子が希土類焼結磁石内に所定量含まれることで

、得られる希土類焼結磁石の特性を更に安定して高めることができる。

[0021] また、本発明においては、前記主相粒子が前記希土類焼結磁石中に5%以上存在していることが好ましい。3つの領域が低濃度領域、高濃度領域、中濃度領域の順となる3層構造で存在している主相粒子が更に多くなるため、得られる希土類焼結磁石の特性を更に安定して高めることができる。

[0022] また、本発明においては、前記中濃度領域における前記重希土類元素の濃度の平均値を、前記重希土類元素の最大濃度から前記粒界相までの前記重希土類元素の濃度の平均値とする。これにより、高濃度領域から粒界相に形成される中濃度領域の重希土類元素の濃度の平均値が明確となる。

[0023] また、本発明においては、前記主相内における前記重希土類元素の最小濃度を α とし、前記主相内における前記重希土類元素の最大濃度を β とし、前記中濃度領域における前記重希土類元素の濃度の平均値を γ とした時、前記中濃度領域における前記重希土類元素の濃度の平均値は下記数式(A)で表され、下記数式(A)の値が0.2以上0.8以下の範囲内であることが好ましい。最大濃度から粒界相までに形成される中濃度領域の重希土類元素の平均濃度が、所定の範囲内となることで、低濃度領域、高濃度領域および中濃度領域の3層構造がより明確となる。これにより、得られる希土類焼結磁石の温度特性と強度とを向上させつつ優れた耐食性をより安定して得ることができる。

$$(\gamma - \alpha) / (\beta - \alpha) \quad \cdots \text{数式 (A)}$$

[0024] また、本発明においては、前記数式(A)の値が0.3以上0.75以下の範囲内であることが好ましい。高濃度領域から粒界相に形成される中濃度領域の重希土類元素の平均濃度が、所定の範囲内となることで、低濃度領域、高濃度領域および中濃度領域の3層構造が更に明確となり、得られる希土類焼結磁石の特性を更に安定して得ることができる。

[0025] また、本発明においては、前記数式(A)の値が0.35以上0.7以下の範囲内であることが好ましい。これにより、主相内には低濃度領域、高濃度領域および中濃度領域の3層構造が更に明確となり、得られる希土類焼結

磁石の特性を更に安定して得ることができる。

[0026] また、本発明においては、 $R_2T_{14}B$ 化合物を含む主相系合金と、HR（HRはDy、Tbの何れか一方又は両方を少なくとも含む1種以上の希土類元素を表す）及びTを少なくとも含む粒界相系合金とを原料合金として用いることが好ましい。これにより、希土類焼結磁石を安定して製造することができる。

[0027] また、本発明においては、前記希土類焼結磁石の相対密度は99%以上であることが好ましい。これにより、主相粒子内の低濃度領域から粒界相に向かって、重希土類元素の濃度に応じて、順に低濃度領域、高濃度領域、中濃度領域の3層構造を形成するようにして少なくとも3つの領域を含む主相粒子を多く含む希土類焼結磁石を安定して形成することができる。

[0028] また、この目的を達成するために、本発明に係る希土類焼結磁石の製造方法は、 $R_2T_{14}B$ （RはNd、Prの何れか一方又は両方を主成分として含む1種以上の希土類元素であり、TはFe又はFe及びCoを含む1種以上の遷移元素を表す）化合物からなる主相と、前記主相よりRを多く含む粒界相とを少なくとも含む希土類焼結磁石を製造するにあたり、 $R_2T_{14}B$ 化合物を含む主相系合金の合金粉末と、HR（HRはDy、Tbの何れか一方又は両方を少なくとも含む1種以上の希土類元素を表す）及びTを少なくとも含む粒界相系合金の合金粉末とを混合し、混合物を得る混合物作製工程と、前記混合物を成形し、成形体を得る成形工程と、600℃以上焼結温度までにおける平均昇温速度を2℃/min以上10℃/min以下として前記成形体を昇温する昇温工程と、前記成形体を焼結し、焼結体を得る焼結工程と、焼結温度から600℃までの平均冷却速度を3℃/min以上20℃/min未満として前記焼結体を冷却する冷却工程と、を含み、前記主相には重希土類元素（少なくともDy、Tbの何れか一方又は両方を含む）を含み、前記希土類焼結磁石に含まれる前記主相のうちの少なくとも1部の主相粒子は、前記重希土類元素の濃度が異なる少なくとも3つの領域を含み、前記重希土類元素の濃度の異なる3つの領域は、前記重希土類元素の濃度が3つの領域にお

いて最も低い低濃度領域と、前記重希土類元素の濃度が3つの領域において最も高い高濃度領域と、前記重希土類元素の濃度が前記低濃度領域より高く、前記高濃度領域よりも低い中濃度領域とであり、前記3つの領域は、前記主相粒子内において前記低濃度領域から前記粒界相へ向かって、前記低濃度領域、前記高濃度領域、前記中濃度領域の順に存在していることを特徴とする。

[0029] 成形体を焼結する際に、平均昇温速度と平均冷却速度との何れか一方または両方を上記範囲内とすることで、主相内の重希土類元素の濃度差が生じ易くなるため、希土類焼結磁石の主相内に重希土類元素の濃度の異なる少なくとも3つの領域を形成することができる。3つの領域とは、低濃度領域、高濃度領域、中濃度領域である。この3つの領域は、低濃度領域から粒界相に向かって重希土類元素の濃度に応じて、低濃度領域、高濃度領域、中濃度領域の順に含むことができる。このため、主相の全領域に高濃度領域だけで主相が形成されている場合に比べ、より少量の重希土類元素で、同等の保磁力 $H_c J$ を有すると共に、残留磁束密度 B_r を向上させる。そのため、より少量の重希土類元素により効率良く磁気特性の改善された希土類焼結磁石を作製することができると考えられる。

[0030] また、主相粒子は重希土類元素の濃度に応じて少なくとも3つの領域が形成されることで、重希土類元素の濃度差により逆磁区の磁壁の移動が抑制される。このため、主相の全領域にわたって均一な高濃度領域だけで主相が形成されている場合や低濃度領域の外側に低濃度領域と比較して希土類濃度の高い領域を含む主相が形成されている場合に比べ、高温環境下においても保磁力 $H_c J$ を高く維持できる。このため得られる希土類焼結磁石の温度特性をさらに向上できると考えられる。

[0031] また、主相粒子内の粒界相に近い領域に中濃度領域が形成されている。そのため、主相の全領域に高濃度領域だけで主相が形成されている場合や低濃度領域の外側に高濃度領域を含む主相が形成されている場合に比べ、重希土類元素の濃度が比較的低いことから、耐食性を向上できると考えられる。

[0032] また、主相は重希土類元素の濃度に応じて、低濃度領域から粒界相に向かって、低濃度領域、高濃度領域、中濃度領域の順に含む3層構造を含んでいる。これにより、主相と粒界相との界面状態が改善され、希土類焼結磁石の強度を高めると考えられる。

[0033] また、重希土類元素は、主相の全領域に高濃度領域だけで形成されている主相や低濃度領域の外側に高濃度領域を含んで形成されている主相に比べ、同等の保磁力 $H_c J$ を有する希土類焼結磁石を少量の重希土類元素を用いて作製することができ、希土類焼結磁石を作製するために要する費用の軽減を図ることができる。

[0034] よって、本発明によれば、希土類焼結磁石に含まれる主相のうちの少なくとも1部の主相粒子は低濃度領域から粒界相に向かって重希土類元素の濃度に応じて低濃度領域、高濃度領域、中濃度領域の順に3層構造を含んでいる。このため、主相内に重希土類元素を効率よく分布させることができ、温度特性と強度を向上させることができると共に優れた耐食性を有する希土類焼結磁石を得ることができる。

[0035] また、この目的を達成するために、本発明に係る回転機は、上記のいずれかの希土類焼結磁石を含むことを特徴とする。モータなどの回転機やMRIなどの磁場発生装置に用いられる永久磁石に本発明に係る希土類焼結磁石を用いることにより、高温使用環境に対しても高い保磁力 $H_c J$ を有することができる。また、永久磁石をより薄く小さくしても高い強度を有することができる。このため、回転機や磁場発生装置などの性能を更に向上させることができる。

発明の効果

[0036] 本発明によれば、温度特性と強度とを向上させると共に優れた耐食性を有する希土類焼結磁石を得ることができる。

図面の簡単な説明

[0037] [図1]図1は、希土類焼結磁石に含まれる主相の組織を簡略に示す模式図である。

[図2]図2は、希土類焼結磁石のSEMによる組成像である。

[図3]図3は、主相の境界を模式的に示す図である。

[図4]図4は、EPMAによる希土類焼結磁石のDy濃度の観察結果である。

[図5]図5は、PMAによる希土類焼結磁石のNd濃度の観察結果である。

[図6]図6は、EPMAによる希土類焼結磁石のFe濃度の観察結果である。

[図7]図7は、希土類焼結磁石の組成像の一例を示す図である。

[図8]図8は、図7中の組成像におけるDyのEPMAによる観察結果を示す図である。

[図9]図9は、図8のEPMAをライン分析した際のDyの検出強度の結果を示す図である。

[図10]図10は、ライン分析結果の一例を示す説明図である。

[図11]図11は、本発明の実施形態に係る希土類焼結磁石の製造方法の一例を示すフローチャートである。

[図12]図12は、SPMモータの一実施形態の構成を簡略に示す断面図である。

[図13]図13は、3点曲げ強度試験の一例を模式的に示す説明図である。

[図14]図14は、中濃度領域のDy濃度と温度特性（140℃と室温における保磁力の比率）との関係を示す図である。

[図15]図15は、図14と同試料の中濃度領域のDy濃度と耐食性との関係を示す図である。

[図16]図16は、図14と同試料の中濃度領域のDy濃度と強度との関係を示す図である。

[図17]図17は、中濃度領域のDy濃度と温度特性（200℃と室温における保磁力の比率）との関係を示す図である。

[図18]図18は、図17と同試料の中濃度領域のDy濃度と耐食性との関係を示す図である。

[図19]図19は、図17と同試料の中濃度領域のDy濃度と強度との関係を示す図である。

発明を実施するための形態

[0038] 以下、本発明について図面を参照しつつ詳細に説明する。なお、下記の発明を実施するための形態（以下、実施形態という）により本発明が限定されるものではない。また、下記実施形態における構成要素には、当業者が容易に想定できるもの、実質的に同一のもの、いわゆる均等の範囲のものが含まれる。さらに、下記実施形態で開示した構成要素は適宜組み合わせることが可能である。

[0039] <希土類焼結磁石>

本発明に係る希土類焼結磁石の実施形態について説明する。本実施形態に係る希土類焼結磁石は、 $R_2T_{14}B$ （ R は Nd 、 Pr の何れか一方又は両方を主成分として含む1種以上の希土類元素であり、 T は Fe 又は Fe 及び Co を含む1種以上の遷移元素を表す）化合物からなる主相と、前記主相より R を多く含む粒界相とを少なくとも含む。この希土類焼結磁石は、 $R-T-B$ 系合金を用いて作製される焼結体である。なお、希土類焼結磁石には、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ものとの両方を含む。

[0040] 主相は、 $R_2T_{14}B$ 型の正方晶からなる結晶構造を有するものである。主相の粒径は、通常 $1\mu m$ から $30\mu m$ 程度である。

[0041] 粒界相は、主相より R を多く含む R リッチ相を含んでいる。粒界相は、 R リッチ相の他に、主相よりホウ素（ B ）を多く含むホウ素リッチ相が含まれていてもよい。

[0042] R は、 Nd 、 Pr の何れか一方又は両方を主成分として含む1種以上の希土類元素を表す。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。ランタノイド元素としては、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、軽希土類及び重希土類に分類される。重希土類元素 HR とは、 Gd 、 Tb 、 Dy 、 Ho 、 Er 、 Tm 、 Yb 、 Lu をいう。軽希土類元素はそれ以外の希土類元素である。製造コス

ト及び磁気特性の観点から、RはNd、Prの何れか一方又は両方を主成分として含むものであることが好ましい。

[0043] Tは、Fe又はFe及びCoを含む1種以上の遷移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。Tは、Fe、Co以外に、保磁力HcJの向上や製造コストの低減等を図る観点から、上記構成に加え、例えば、Al、Ga、Si、Ti、Bi、Sb、Ge、Sn、Zn、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、Wなどの少なくとも1種の元素を更に含んでいてもよい。

[0044] また、Bは、B単独であってもよく、Bの一部がCで置換されていてもよい。Cは耐食性を有するため、Bの一部をCに置換することで、耐食性を向上させることができる。

[0045] 本実施形態に係る希土類焼結磁石におけるRの含有量は、25質量%以上35質量%未満であるのが好ましく、より好ましくは28質量%以上33質量%以下であり、さらに好ましいRの含有量は28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 α -Feなどが析出し、磁気特性が低下する虞がある。Rの含有量が35質量%以上では、主相の体積比率が低下するため良好な磁気特性が得られない。そのため、Rの含有量が上記範囲内であれば、良好な磁気特性が得られる。

[0046] Bの含有量は、0.5質量%以上1.5質量%以下であるのが好ましく、より好ましくは0.5質量%以上1.3質量%以下、さらに好ましくは0.8質量%以上1.2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HcJが低下する。また、B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。そのため、Bの含有量が上記範囲内であれば、保磁力HcJ及び残留磁束密度Brの低下を抑制することができる。

[0047] また、Feの一部をCoに置換してCoを含める場合、Coの含有量は、Feの含有量の0.3質量%以上10質量%以下に抑えることが好ましく、

より好ましくは0.3質量%以上4質量%以下であり、更に好ましく、0.1質量%以上2質量%以下であり、最も好ましくは0.3質量%以上1.5質量%以下である。Feの含有量が10質量%を超えると、保磁力H_{cJ}が低下するとともに原料コストが上昇する。また、Feの含有量が0.3質量%未満では、耐食性向上の効果が得られない。

[0048] Fe、Co以外に、Al、Ga、Si、Ti、Bi、Sb、Ge、Sn、Zn、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、Wなどの元素を含める場合、これらの含有量も飽和磁化に実質的に影響を及ぼさない範囲とすることが好ましく、それぞれ5質量%以下とすることが好ましい。また、その他、不可避免的に混入する成分としては、酸素(O)、窒素(N)、C、Ca等が考えられる。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。

[0049] 本実施形態に係る希土類焼結磁石においては、磁気特性の観点から、酸素量を6000ppm以下とすることが好ましく、より好ましくは3000ppm以下、特に好ましくは2000ppm以下とする。また、炭素量を2000ppm以下とすることが好ましく、より好ましくは1500ppm以下、特に好ましくは1200ppm以下とする。さらに、窒素量を1000ppm以下とすることが好ましく、より好ましくは800ppm以下、特に好ましくは600ppm以下とする。

[0050] 本実施形態に係る希土類焼結磁石は、原料粉末の成形体を焼結することにより製造された磁石体である。成形体は、例えば金型を用いてプレス成形などにより目的とする任意の所定形状に原料粉末を成形することで得られる。希土類焼結磁石の形状は特に限定されるものではなく、用いる金型の形状に応じて、例えば平板状、四角柱などの柱状、断面形状がリング状やC型の円筒状等、任意の形状とすることができる。四角柱としては、例えば、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。

[0051] 主相は、重希土類元素を含んでいる。本実施形態において、重希土類元素とは、少なくともDy、Tbの何れか一方又は両方を含む希土類元素である

。また、希土類焼結磁石に含まれる主相のうちの少なくとも1部の主相粒子は、重希土類元素の濃度が異なる少なくとも3つの領域を含んでいる。この3つの領域は、低濃度領域と、高濃度領域と、中濃度領域である。

[0052] 図1は、希土類焼結磁石の組織を簡略に示す模式図である。図1に示すように、主相11は、低濃度領域12と高濃度領域13と中濃度領域14の3つの領域を有する。主相11は、低濃度領域12と高濃度領域13と中濃度領域14とをこの順番で3層構造を形成するようにして含んでいる。

[0053] 低濃度領域12は、低濃度領域12と中濃度領域14と高濃度領域13との3つの領域の中で重希土類元素の濃度が最も低い領域である。

[0054] 高濃度領域13は、3つの領域の中で重希土類元素の濃度が最も高い領域である。高濃度領域13は、低濃度領域12の少なくとも一部に隣接して存在している。高濃度領域13は、低濃度領域12の周囲全てに隣接して存在していてもよい。

[0055] 中濃度領域14は、重希土類元素の濃度が低濃度領域12よりも高く高濃度領域13よりも低い領域である。中濃度領域14は、高濃度領域13の少なくとも一部に隣接して存在している。中濃度領域14は、高濃度領域13の周囲全てに隣接して存在していてもよい。

[0056] この3つの領域は、主相11内において低濃度領域12から粒界相15へ向かって、低濃度領域12、高濃度領域13および中濃度領域14の順に存在している。3つの領域が、希土類焼結磁石の主相11内に、低濃度領域12から粒界相15に向かって、低濃度領域12、高濃度領域13、中濃度領域14の順に3層構造を含むことで、温度特性と強度を向上させることができると共に優れた耐食性を有することができる。

なお、本実施形態において、温度特性とは、高温環境下においても保磁力 $H_c J$ を高く維持することができることをいう。

[0057] また、3つの領域は、低濃度領域12の少なくとも一部に高濃度領域13が隣接し、かつ高濃度領域13の少なくとも一部に中濃度領域14が隣接して主相11内に含まれていてもよい。また、3つの領域は、低濃度領域12

の周囲全てに高濃度領域 1 3 が隣接し、高濃度領域 1 3 の周囲全てに中濃度領域 1 4 が隣接して主相 1 1 内に含まれていてもよい。得られる希土類焼結磁石の磁気特性、耐食性、強度の向上を図る観点から、3つの領域は、低濃度領域 1 2 の周囲全てに高濃度領域 1 3 が隣接し、かつ高濃度領域 1 3 の周囲全てに中濃度領域 1 4 が隣接して主相 1 1 内に含まれていることが好ましい。

[0058] 主相 1 1 に含まれる D y、N d、C o 及び F e の分布状態を確認するため、希土類焼結磁石の主相 1 1 の走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope : S E M) の組成像 (C o m p o 像) と、希土類焼結磁石の主相 1 1 の組織を E P M A (Electron Probe Micro Analyzer) により観察した際の E P M A による元素マッピングの一例を図 2、図 4 ~ 図 6 に示す。なお、図 2 ~ 図 6 は同一視野の図である。図 2 は、希土類焼結磁石の組成像であり、図 3 は、主相の境界を模式的に示す図であり、図 4 は、E P M A による希土類焼結磁石の D y 濃度の観察結果であり、図 5 は、E P M A による希土類焼結磁石の N d 濃度の観察結果であり、図 6 は、E P M A による希土類焼結磁石の F e 濃度の観察結果である。なお、図 4 ~ 6 中、白色の部分ほど当該元素の濃度が高いことを示している。また、前記濃度とは E P M A による各元素の検出値であり、必ずしも各元素の濃度の絶対値とは一致しない。これは後述する線分析に付いても同様である。また、図 3 に示す黒線は、図 2 の S E M で観察した組成像を基に作成した粒界相である。

[0059] 図 4 に示すように、主相内の D y 濃度は低濃度領域と高濃度領域と中濃度領域との 3 つの領域が形成されている。主相内に低濃度領域 (図 4 中、青色部分) が形成されている。その低濃度領域の少なくとも一部又は周囲全てに高濃度領域 (図 4 中、赤色部分) が隣接して存在している。また、低濃度領域 (図 4 中、青色部分) の少なくとも一部又は周囲全て、又は高濃度領域 (図 4 中、赤色部分) の少なくとも一部又は周囲全てに中濃度領域 (図 4 中、黄緑部分) が隣接して存在している。図 4 に図 3 に示す粒界相を組み合わせると、図 1 に示すように、各主相 1 1 は、低濃度領域 1 2 から粒界相 1 5 に

向かって、3つの領域を低濃度領域12、高濃度領域13、中濃度領域14の順に3層構造を形成した状態で含んでいる。

[0060] なお、TbのEPMaによる元素マッピングを示していないが、Dyと同様の元素マッピングを示す。

[0061] よって、希土類焼結磁石のEPMaの観察結果から本実施形態に係る希土類焼結磁石の主相11の状態を図1に模式的に示す。図1に示すように、希土類焼結磁石の主相11は、重希土類元素の濃度が異なる3つの領域を含んでいる。また、3つの領域が、低濃度領域12から粒界相15に向かって、低濃度領域12、高濃度領域13、中濃度領域14の順に3層構造を含んでいる。本実施形態においては、主相11内に形成された低濃度領域12の外側の少なくとも一部又は周囲全てに高濃度領域13、中濃度領域14が隣接して存在している。このため、主相11の全領域に高濃度領域13だけで主相が形成されている場合に比べ、少ない重希土類元素で同等の保磁力HcJを有することができると共に、残留磁束密度Brを向上させることができる。これにより、磁気特性の改善された希土類焼結磁石をより少量の重希土類元素により効率良く達成することができると考えられる。

[0062] 本実施形態においては、主相11に含まれる主相粒子の一部は重希土類元素の濃度に応じて少なくとも3つの領域を含むことで、主相を形成するR₂T₁₄B化合物内の重希土類元素の濃度差により逆磁区の磁壁の移動が抑制される。このため、主相11の全領域に高濃度領域13だけで主相が形成されている場合や低濃度領域12の外側に高濃度領域13が形成されている場合に比べ、高温環境下においても保磁力HcJを高く維持できる。すなわち、希土類焼結磁石の温度特性をさらに向上できると考えられる。

[0063] また、一般にNdなどの軽希土類元素と比較して重希土類元素は酸化しやすい傾向にある。本実施形態では、主相11に含まれる主相粒子の一部は重希土類元素の濃度に応じて少なくとも3つの領域を含み、主相11の粒界相15に近い領域に中濃度領域14が形成されている。そのため、主相11の全領域に高濃度領域13だけで主相11が形成されている場合や低濃度領域

12の外側に高濃度領域13を含む主相が形成されている場合に比べ、主相11内の重希土類元素の濃度が比較的低い。すなわち、希土類焼結磁石の耐食性を向上できると考えられる。

[0064] また、 $R_2T_{14}B$ 化合物からなる主相11を有する希土類焼結磁石は、主に粒界相15と主相11の界面で破断して破壊され易い。よって、主相11と粒界相15との間の界面状態が希土類焼結磁石の全体の強度に影響しているといえる。本実施形態においては、主相11には重希土類元素の濃度に応じて3つの領域を含んでいる。そして、主相11は3つの領域を低濃度領域12から粒界相15に向かって、低濃度領域12、高濃度領域13、中濃度領域14の順に3層構造を形成した状態で存在している。すなわち、主相11と粒界相15との界面状態が改善しているため、希土類焼結磁石の強度を高めることができると考えられる。

[0065] よって、本実施形態に係る希土類焼結磁石によれば、主相11に含まれる主相粒子の一部は3つの領域を低濃度領域12から粒界相15に向かって低濃度領域12、高濃度領域13、中濃度領域14の順に3層構造を形成した状態で含んでいる。このため、主相11内に重希土類元素を効率よく分布させることができ、高温環境下においても保磁力 $H_c J$ を高く維持できる。この結果、本実施形態に係る希土類焼結磁石は、温度特性と強度とを向上させることができると共に優れた耐食性を有することができる。

[0066] また、本実施形態に係る希土類焼結磁石は、主相11のうちの少なくとも1部の主相粒子は少なくとも3つの領域を含んでいる。そのため、本実施形態に係る希土類焼結磁石は、主相11の全領域に高濃度領域13だけで形成されている主相や低濃度領域12の外側に高濃度領域13を含んで形成されている主相で形成されている磁石に比べ、同等の保磁力 $H_c J$ を有する希土類焼結磁石を少量の重希土類元素を用いて作製することができる。このため、希土類焼結磁石を作製するために要する費用の軽減を図ることができる。

[0067] また、主相11に含まれる主相粒子の一部は、3つの領域を含み、少なくとも低濃度領域12の少なくとも一部に高濃度領域13が隣接し、かつ高濃

度領域 13 の少なくとも一部に中濃度領域 14 が隣接している 3 層構造を形成している状態で含んでいる。この場合、このような 3 層構造を形成している主相は、希土類焼結磁石中に 5 % 以上存在していることが好ましく、より好ましくは 30 % 以上である。3 つの領域がこのような 3 層構造を形成している主相粒子を希土類焼結磁石中に所定量含むことで、得られる希土類焼結磁石の特性を安定して得ることができる。

[0068] また、主相 11 に含まれる主相粒子の一部は、3 つの領域を含み、低濃度領域 12 の周囲全てに高濃度領域 13 が隣接し、かつ高濃度領域 13 の周囲全てに中濃度領域 14 が隣接している 3 層構造を形成している状態で含んでいるのが好ましい。この場合、このような 3 層構造を形成している主相粒子は、希土類焼結磁石中に 3 % 以上存在していることが好ましく、より好ましくは 5 % 以上である。3 つの領域は低濃度領域 12、高濃度領域 13 および中濃度領域 14 の順で低濃度領域 12 から粒界相 15 に向かって円周状に形成されている状態で主相粒子内に含まれる。3 つの領域がこのような 3 層構造を形成している主相粒子が希土類焼結磁石内に所定量含まれることで、得られる希土類焼結磁石の特性を更に安定して高めることができる。

[0069] また、本実施形態においては、希土類焼結磁石の相対密度は 99 % 以上であることが好ましい。希土類焼結磁石の相対密度が高いほど、重希土類元素の濃度差が生じ易くなる。そのため、主相粒子内の低濃度領域 12 から粒界相 15 に向かって、重希土類元素の濃度に応じて、順に低濃度領域 12、高濃度領域 13、中濃度領域 14 の 3 層構造を形成するように 3 つの領域を含む主相粒子を多く含む希土類焼結磁石を安定して形成することができる。なお、希土類焼結磁石の相対密度は、希土類焼結磁石の実測密度をその理論密度で除した値である。

[0070] また、本実施形態においては、中濃度領域 14 における重希土類元素の濃度の平均値を、重希土類元素の最大濃度から粒界相 15 までの重希土類元素の濃度の平均値とする。高濃度領域 13 から粒界相 15 に形成される中濃度領域 14 の重希土類元素の濃度の平均値が明確となる。

[0071] また、このとき、中濃度領域 1 4 における重希土類元素の濃度の平均値は、主相粒子内の低濃度領域内の重希土類元素の最小濃度と、主相粒子内の高濃度領域 1 3 内の重希土類元素の最大濃度との関係において、所定の範囲内にあることが好ましい。

[0072] すなわち、主相粒子内に低濃度領域 1 2 と高濃度領域 1 3 と中濃度領域 1 4 が存在する領域を E P M A で線分析（ライン分析）した際に、図 1 0 に示すように、主相粒子内における重希土類元素の最小濃度を α とし、主相粒子内における重希土類元素の最大濃度を β とし、中濃度領域 1 4 における重希土類元素の濃度の平均値を γ とする。このとき、中濃度領域 1 4 における重希土類元素の濃度の平均値は下記数式（A）で表される。

$$(\gamma - \alpha) / (\beta - \alpha) \quad \cdots \text{数式 (A)}$$

[0073] この上記数式（A）の値は、0.2 以上 0.8 以下の範囲内であることが好ましく、より好ましくは 0.3 以上 0.75 以下の範囲内であり、更に好ましくは 0.35 以上 0.7 以下の範囲内である。中濃度領域 1 4 の重希土類元素の濃度の平均値が 0.8 よりも高いと、主相粒子は低濃度領域の外側に低濃度領域と比較して希土類濃度の高い領域を含む主相が形成されている場合の構造に近くなるため、得られる希土類焼結磁石の温度特性と強度との向上を図りつつ耐食性の改善を図ることはできない。また、中濃度領域 1 4 の重希土類元素の濃度の平均値が 0.2 よりも低いと、主相粒子中の重希土類元素量が少なくなる。そのため、得られる希土類焼結磁石は良好な保磁力 $H_c J$ を有することはできない。よって、得られる希土類焼結磁石は良好な温度特性を有することできない。

[0074] そのため、中濃度領域 1 4 の重希土類元素の濃度の平均値が上記範囲内であれば、主相粒子の低濃度領域 1 2 から粒界相 1 5 に向かって、重希土類元素の濃度に応じて、順に低濃度領域 1 2、高濃度領域 1 3、中濃度領域 1 4 の 3 層構造がより明確となる。これにより、得られる希土類焼結磁石の温度特性と強度とを向上させつつ優れた耐食性をより安定して得ることができる。

[0075] 希土類焼結磁石の組成像の一例を図7に示し、その同一視野におけるDyのEPMAによる観察結果を図8に示し、そのEPMAをライン分析した際のDyの検出強度の結果を図9に示す。なお、図9は、Dyの検出強度を相対的に表したものであり、図8に示すラインの長さ20 μ mを256分割した大きさで点の組成を分析したものである。図7に示すような組成像において、図8に示すようなDyのEPMAのラインをライン分析すると、図9に示すように、Dy濃度に応じた高濃度領域、中濃度領域、低濃度領域の3層構造に応じた検出強度を得た。なお、図9には、図7、図8を参照し、粒界相と、低濃度領域と中濃度領域と高濃度領域とを明示した。

[0076] 主相粒子をEPMAでライン分析した際に、主相内における重希土類元素の最小濃度を α とし、主相内における重希土類元素の最大濃度を β とし、中濃度領域における重希土類元素の濃度の平均値を γ とする。このとき、上記数式(A)の値が所定の範囲内であれば、重希土類元素の濃度に応じた3層構造が明確に形成されるため、本発明の効果を更に高めることができる。

[0077] なお、図8、図9においては、重希土類元素がDyの場合について説明したが、Tbなど他の重希土類元素の場合についても同様である。

[0078] また、中濃度領域の重希土類元素の平均値は0.2以下0.8以下の範囲内であることが好ましく、より好ましくは0.3以上0.75以下の範囲内であり、更に好ましくは0.35以上0.7以下の範囲内である。中濃度領域の重希土類元素の平均値が、上記範囲内であれば、上述のように、主相内の低濃度領域から粒界相に向かって、重希土類元素の濃度に応じて、順に低濃度領域、高濃度領域、中濃度領域の3層構造がより明確に形成される。そのため、高温環境下においても保磁力H_{cJ}を高く維持できる。この結果、得られる希土類焼結磁石の温度特性の更なる向上を図ることができる。また、得られる希土類焼結磁石の強度の更なる向上を図りつつ耐食性の改善を更に図ることができ、本発明の効果を更に高めることができる。

[0079] <希土類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希土類焼結磁石の製造方法

の好適な製造方法について図面を用いて説明する。本実施形態に係る希土類焼結磁石は、希土類焼結磁石における主に主相を構成する組成の合金（主相系合金）と主に粒界相を構成する組成の合金（粒界相系合金）とを用いて製造される。図11は、本発明の実施形態に係る希土類焼結磁石の製造方法の一例を示すフローチャートである。

[0080] <合金準備工程：ステップS11>

図11に示すように、まず、希土類焼結磁石における主に主相を構成する組成の合金（主相系合金）と主に粒界相を構成する組成の合金（粒界相系合金）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、希土類焼結磁石の組成に対応する原料金属を、真空又はArガスなどの不活性ガス雰囲気中で溶解した後、鑄造を行うことによって所望の組成を有する主相系合金及び粒界相系合金を作製する。

[0081] 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。主相系合金は、 $R_2T_{14}B$ 化合物及び不可避不純物を含むものである。 $R_2T_{14}B$ 化合物については、上述の通りである。また、粒界相系合金は、HR（HRはDy、Tbの何れか一方又は両方を少なくとも含む1種以上の希土類元素を表す）及びT及び不可避不純物を含むものである。また、粒界相系合金として、HRの酸化物、フッ化物、水素化物などを用いてもよい。

[0082] 原料金属を鑄造する鑄造方法は、例えば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、真空又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、希土類磁石用合金の一部が融解されて均質化される。

[0083] <粉碎工程：ステップS12>

主相系合金及び粒界相系合金が作製された後、主相系合金及び粒界相系合金を粉碎する（粉碎工程（ステップS12））。粉碎工程（ステップS12

）では、主相系合金及び粒界相系合金が作製された後、これらの主相系合金及び粒界相系合金を別々に粉砕して粉末とする。なお、主相系合金及び粒界相系合金を混合し粉砕してもよい。

[0084] 粉砕工程（ステップS 1 2）は、粒径が数百 μm 程度になるまで粗粉砕する粗粉砕工程（ステップS 1 2-1）と、粒径が数 μm 程度になるまで微粉砕する微粉砕工程（ステップS 1 2-2）とがある。

[0085] （粗粉砕工程：ステップS 1 2-1）

主相系合金及び粒界相系合金を各々粒径が数百 μm 以上数 mm 以下になるまで粗粉砕する（粗粉砕工程（ステップS 1 2-1））。これにより、主相系合金及び粒界相系合金の粗粉砕粉末を得る。粗粉砕は、例えば、主相系合金及び粒界相系合金に水素を吸蔵させた後、原料合金を不活性ガス雰囲気下で加熱し、異なる相間の水素吸蔵量の相違に基づく自己崩壊によって原料合金を粗粉砕することができる。

[0086] また、粗粉砕を行なう際は、スタンプミル、ジョークラッシャー、ブラウンミル等を用い、不活性ガス雰囲気中にて行うようにしてもよいが、本実施形態に係る希土類焼結磁石の効果を十分に得るためには合金への水素吸蔵及び放出による粗粉砕を併用することが望ましい。

[0087] また、高い磁気特性を得るために、粉砕工程（ステップS 1 2）から後述する焼結工程（ステップS 1 6）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。酸素含有量は、各製造工程における雰囲気の制御、原料に含有される酸素量の制御等により調節される。例えば、後述する焼結工程（ステップS 1 6）で得られる焼結体の酸素含有量を5000ppm以下とする場合には、各工程の酸素の濃度を3000ppm以下とし、焼結体の酸素含有量を3000ppm以下とする場合には、各工程の酸素の濃度を100ppm以下とすることが好ましい。

[0088] （微粉砕工程：ステップS 1 2-2）

主相系合金及び粒界相系合金を粗粉砕した後、得られた主相系合金及び粒界相系合金の粗粉砕粉末を平均粒子径が数 μm 程度になるまで微粉砕する（

微粉碎工程（ステップS 1 2 - 2））。これにより、主相系合金及び粒界相系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 $1\ \mu\text{m}$ 以上 $10\ \mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $3\ \mu\text{m}$ 以上 $5\ \mu\text{m}$ 以下の粒径を有する希土類磁石体の混合粉末（以下、単に「混合粉末」という）を得ることができる。

[0089] 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（例えば、 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主相系合金及び粒界相系合金の粗粉碎粉末を加速して主相系合金及び粒界相系合金の粗粉碎粉末同士の衝突やターゲット又は容器壁との衝突を発生させて粉碎する方法である。

[0090] 主相系合金及び粒界相系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。

[0091] <混合工程：ステップS 1 3>

主相系合金及び粒界相系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S 1 3））。これにより、混合粉末が得られる。低酸素雰囲気は、例えば、 N_2 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。主相系合金粉末及び粒界相系合金粉末の混合比率は、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以下であり、更に好ましくは質量比で95対5程度である。

[0092] また、粉碎工程（ステップS 1 2）において、主相系合金及び粒界相系合金を混合し粉碎する場合の配合比率も、主相系合金及び粒界相系合金を別々に粉碎する場合と同様に、主相系合金粉末及び粒界相系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以下であり、更に好ましくは質量比で

95対5程度である。

[0093] <成形工程：ステップS14>

主相系合金粉末と粒界相系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、主相系合金粉末及び粒界相系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うことで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成形する。これにより成形体が得られる。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希土類焼結磁石が得られる。なお、磁場の印加は加圧前に行うことが好ましく、加圧中も継続することがより好ましい。

[0094] 成形時の加圧は、50MPa以上200MPa以下で行うことが好ましい。印加する磁場は、950kA/m以上1600kA/m以下で行なうことが好ましい。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。

[0095] 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。

[0096] 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、用いる金型の形状に応じて、例えば直方体、平板状、柱状、断面形状がリング状等、所望とする希土類磁石体の形状に応じて任意の形状とすることができる。

[0097] <昇温工程：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又は不活性ガス雰囲気中で昇温し、600℃以上焼結温度までにおける平均昇温速度は2℃/min以上10℃/min以下として昇温する（昇温工程（ステップS15））。本実施形態においては、成形体を昇温する際、600℃以上焼結温度までにおける平均昇温速度は、好ましくは3℃/min以上9℃/m

in以下であり、より好ましくは $4^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 以上 $7^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 以下であり、さらに好ましくは $6^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 前後である。成形体を昇温する際、 600°C 以上焼結温度までにおける平均昇温速度を上記範囲内とすることで、得られる希土類焼結磁石の主相内に含まれる重希土類元素の濃度差が生じ易くなるため、希土類焼結磁石の主相内に3層構造を形成できる。

[0098] <焼結工程：ステップS16>

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又は不活性ガス雰囲気中で焼結する（焼結工程（ステップS16））。焼結温度は、組成、粉碎方法、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、真空中又は不活性ガスの存在下、 1000°C 以上 1200°C 以下で1時間以上10時間以下で加熱する処理を行うことにより焼成する。これにより、密度が向上し、焼結体（希土類磁石体の焼結体）が得られる。

[0099] <冷却工程：ステップS17>

成形体を焼結した後、焼結体を不活性ガス、好ましくはArガスを用いて冷却を行う（冷却工程（ステップS17））。本実施形態においては、 600°C 未満までの平均冷却速度は、 $3^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 以上 $20^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 以下とし、好ましくは $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 以上 $15^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 以下であり、より好ましくは $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 以上 $15^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 以下である。焼結体を冷却する際、 600°C 未満までにおける平均冷却速度を上記範囲内とすることで、得られる希土類焼結磁石の主相内に含まれる重希土類元素の濃度差が生じ易くなるため、希土類焼結磁石の主相内に3層構造を形成できると考えられる。これにより、本実施形態に係る希土類焼結磁石を得ることができる。

[0100] <時効処理工程：ステップS18>

冷却工程（ステップS17）で得られた希土類焼結磁石を時効処理する（時効処理工程（ステップS18））。焼成後、得られた焼結体を 200°C 以下まで冷却し、その後焼成時よりも低い温度で保持することなどによって、焼結体に時効処理を施す。時効処理は、非酸化雰囲気で行い、例えば、 70

0℃以上900℃以下の温度で1時間から3時間加熱し、200℃以下まで冷却し、更に500℃以上700℃以下の温度で1時間から3時間加熱する2段階加熱や、600℃付近の温度で1時間から3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、希土類焼結磁石の磁気特性を向上させることができる。

[0101] <加工工程：ステップS19>

次いで、希土類焼結磁石に時効処理（ステップS18）を施した後、例えば、打ち抜き、切削、研削などにより、所望のサイズに切断したり、表面を平滑化して、更に任意の形状の希土類焼結磁石に加工する（加工工程：ステップS19）。

[0102] <面取り工程：ステップS20>

次いで、加工工程（ステップS19）で得られた希土類焼結磁石はバレルを用いて2時間程度バレル研磨を行い、面取りを行なう（面取り工程（ステップS20））。

[0103] また、本実施形態においては、希土類焼結磁石を更に任意の形状に加工した後、面取りを行なうようにしているが、これに限定されるものではなく、時効処理工程（ステップS18）で得られた希土類焼結磁石の面取りを行なった後、所望のサイズに切断したり、表面を平滑化して所定形状の希土類焼結磁石を得るようにしてもよい。

[0104] <表面処理工程：ステップS21>

次いで、面取り工程（ステップS20）で希土類焼結磁石を研磨した後、硝酸を用いて所定時間、実施形態に係る希土類焼結磁石の表面を酸洗浄する。その後、Niめっきを行い、実施形態に係る希土類焼結磁石の表面にNiめっき膜を形成する（表面処理工程（ステップS21））。希土類焼結磁石の表面の酸洗浄に用いる酸溶液としては、硝酸、塩酸等の水溶液と、アルコールとの混合溶液が好適である。この表面処理は、例えば、希土類焼結磁石を酸溶液に浸漬したり、希土類焼結磁石に酸溶液を噴霧したりすることによって行うことができる。

- [0105] かかる表面処理によって、希土類焼結磁石に付着していた汚れや酸化層等を除去して清浄な表面を得ることができる。汚れや酸化層等の除去を更に良好に行う観点からは、酸溶液に超音波を印加しながら表面処理を行ってもよい。
- [0106] また、本実施形態においては、希土類焼結磁石の表面にNiめっき膜を形成し、表面処理するようにしているが、これに限定されるものではなく、Niめっきの他に、酸化、窒化、化成処理による表面改質法、樹脂コートなどを施し、耐食性を向上させるようにしてもよい。
- [0107] なお、本実施形態では、加工工程（ステップS19）、面取り工程（ステップS20）、表面処理工程（ステップS21）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。
- [0108] このようにして希土類焼結磁石を製造し、処理を終了する。また、得られた希土類焼結磁石を着磁させることで、磁石製品が得られる。
- [0109] また、希土類焼結磁石に含有されるCの量は、製造工程で用いられる粉砕助剤の種類及び添加量等により調節する。さらに、希土類焼結磁石に含有されるNの量は、原料合金の種類及び量や、原料合金を窒素雰囲気中で粉砕する場合の粉砕条件等により調節する。
- [0110] このようにして得られた希土類焼結磁石は、 $R_2T_{14}B$ （RはNd、Prの何れか一方又は両方を主成分として含む1種以上の希土類元素であり、TはFe又はFe及びCoを含む1種以上の遷移元素を表す）化合物からなる主相を含む。希土類焼結磁石に含まれる主相のうちの少なくとも1部の主相粒子は、Dy、Tbの何れか一方又は両方を含み、Dy、Tbの何れか一方又は両方の濃度の異なる領域を3つ含み、低濃度領域から粒界相に向かって、Dy、Tbの何れか一方又は両方の濃度に応じて、順に低濃度領域、高濃度領域、中濃度領域を含んでいる。
- [0111] 以上のように、得られる本実施形態に係る希土類焼結磁石は、主相に含まれる少なくとも一部の主相粒子が重希土類元素の濃度に応じて少なくとも3つの領域を、低濃度領域から粒界相に向かって低濃度領域、高濃度領域、中

濃度領域の順に含むため、高温環境下においても保磁力 $H_c J$ を高く維持できる。この結果、得られる希土類焼結磁石の温度特性を向上させることができる。また、得られる希土類焼結磁石の強度を向上させることができると共に優れた耐食性を有することができる。従って、本発明の実施形態に係る希土類焼結磁石の製造方法を用いれば、高温使用環境に対応することができると共に、より薄くて小さい製品に対しても安定して用いることができる信頼性の高い希土類焼結磁石を製造することができる。

[0112] このようにして得られる本実施形態に係る希土類焼結磁石は、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) モータ、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) モータ、PRM (Permanent magnet Reluctance Motor) などの磁石として好適に用いられる。特に、IPMモータはコギングトルクが小さい等の利点を有することから、電気自動車やハイブリッドカー用のモータ、自動車の電動パワーステアリング用モータ、磁気共鳴画像装置 (MRI) などの磁場発生装置用のモータ、ハードディスクドライブのハードディスク回転駆動用スピンドルモータやボイスコイルモータ、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、プリンタ用モータ等の用途として好適に用いられる。

[0113] なお、本実施形態においては、主相粒子が、低濃度領域、高濃度領域および中濃度領域の3つの領域を含んでいる場合について説明したが、主相粒子は少なくとも3つの領域を含んでいればよく、これに限定されるものではない。主相粒子は高濃度領域や低濃度領域の他にそれぞれ濃度の異なる複数の種類の中濃度領域を含んでいてもよい。

[0114] 以上、本実施形態に係る希土類焼結磁石の好適な実施形態について説明したが、本実施形態に係る希土類焼結磁石はこれに制限されるものではない。本実施形態に係る希土類焼結磁石は、その要旨を逸脱しない範囲で様々な変形、種々の組み合わせが可能であり、永久磁石以外についても同様に適用することができる。

[0115] <モータ>

本実施形態に係る希土類焼結磁石をモータに用いた好適な実施形態について説明する。ここでは、本実施形態に係る希土類焼結磁石をSPMモータに適用した一例について説明する。図12は、SPMモータの一実施形態の構成を簡略に示す断面図であり、図12に示すように、SPMモータ20は、ハウジング21内に、円柱状のロータ22と、円筒状のステータ23と、回転軸24とを有する。回転軸24はロータ22の横断面の中心を貫通している。ロータ22は、鉄材等からなる円柱状のロータコア（鉄芯）25と、そのロータコア25の外周面に所定間隔で設けられた複数の永久磁石26と、永久磁石26を収容する複数の磁石挿入スロット27とを有する。永久磁石26には本実施形態に係る希土類焼結磁石が用いられる。この永久磁石26は、ロータ22の円周方向に沿って各々の磁石挿入スロット27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26は、ロータ22の径方向に沿って互いに逆の方向の磁力線を発生する。ステータ23は、その筒壁（周壁）の内部の周方向にロータ22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28とスロットル29とを有している。この複数のステータコア28はステータ23の中心に向けてロータ22に対向するように設けられる。また、各々のスロットル29内にはコイル30が巻装されている。永久磁石26とステータコア28とは互に対向するように設けられている。ロータ22は、回転軸24とともにステータ23内の空間内で回転可能に設けられている。ステータ23は電磁気的作用によってロータ22にトルクを与え、ロータ22は円周方向に回転する。

[0116] SPMモータ20は、永久磁石26として本実施形態に係る希土類焼結磁石を用いているため、SPMモータ20の回転に伴い、ハウジング21内が高温環境下となっても希土類焼結磁石の保磁力 $H_c J$ は高く維持でき、永久磁石26の温度特性および強度を向上させることができる。そのため、SPMモータ20は、モータのトルク特性などモータの性能を向上させることが

でき、長期間に亘って安定して高出力を維持することができ、信頼性に優れるモータとすることができる。

実施例

[0117] 以下、本発明を実施例及び比較例を挙げてさらに具体的に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

[0118] <1. 合金（A～F、a～e、a2）、希土類化合物の作製>

まず、主に磁石の主相を形成する主相系合金（合金A～合金F）と、主に粒界相を形成する粒界相系合金（合金a～合金e、a2）を、ストリップキャスト（SC）法で鑄造した。また、粒界相系合金として、更に希土類化合物（ Dy_2O_3 、 DyF_3 、 DyH_2 ）を準備した。主相系合金（合金A～合金F）、粒界相系合金（合金a～合金e、合金a2）の磁石組成と、主相系合金（合金A～合金F）、粒界相系合金（合金a～合金e、合金a2）および希土類化合物（ Dy_2O_3 、 DyF_3 、 DyH_2 ）の微粉粒子径D50を表1に示す。なお、表1中に示すTRE（Total Rare-Earth）は希土類の合計量を示す。

[0119]

[表1]

表1)

	成分(質量%)													微粉粒子径D50(μ m)	
	Nd	Pr	Dy	Tb	Co	Al	Cu	B	Ga	Zr	Dy+Tb	TRE	(Dy+Tb)/TRE		
主相系合金	合金A	30.0	0.0	0.0	0.0	0.5	0.2	0.1	1.05	-	0.2	0.0	30.0	0.00	4.3
	合金B	24.0	6.0	0.0	0.0	0.0	0.2	0.0	1.05	0.1	0.2	0.0	30.0	0.00	4.4
	合金C	26.5	0.0	4.0	0.0	0.0	0.2	0.0	1.10	-	0.2	4.0	30.5	0.13	4.2
	合金D	30.0	0.0	0.0	2.0	1.0	0.0	0.0	1.05	-	0.2	2.0	32.0	0.06	4.4
	合金E	23.5	5.5	2.5	0.0	2.0	0.0	0.1	1.00	0.1	0.1	2.5	31.5	0.08	4.2
	合金F	26.0	0.0	5.0	0.0	0.0	0.1	0.0	1.25	-	0.1	5.0	31.0	0.16	4.4
粒界系合金	合金a	10.0	0.0	30.0	0.0	0.0	0.5	1.0	0.00	-	0.0	30.0	40.0	0.75	4.5
	合金b	0.0	0.0	36.0	0.0	10.0	0.5	1.5	0.00	-	0.0	36.0	36.0	1.00	4.6
	合金c	0.0	0.0	0.0	36.0	10.0	0.5	1.5	0.00	-	0.0	36.0	36.0	1.00	4.5
	合金d	10.0	0.0	30.0	0.0	5.0	0.2	1.0	0.00	-	0.0	30.0	40.0	0.75	4.4
	合金e	10.0	0.0	30.0	0.0	2.5	0.1	0.5	0.00	-	0.0	30.0	40.0	0.75	4.5
	合金a2	10.0	0.0	25.0	0.0	0.0	0.5	1.0	0.00	-	0.0	25.0	35.0	0.71	1.5
希土類化合物	Dy ₂ O ₃	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.6
	DyF ₃	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1.5
	DyH ₂	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1.0

[0120] <2. 希土類焼結磁石の作製>

[実施例 1～33、比較例 1～6、8～12]

次いで、表 3 に示す通りに希土類焼結磁石を作製した。これらの原料合金（合金 A～合金 F、合金 a～合金 e）に室温で水素吸蔵処理を施した後に、Ar 雰囲気中で 600℃で 1 時間、脱水素処理を行って主相系合金（合金 A～合金 F）及び粒界相系合金（合金 a～合金 e）を粗粉碎した。それぞれ水素粉碎により粗粉碎した後、粗粉碎した主相系合金（合金 A～合金 F）及び粒界相系合金（合金 a～合金 e）に、粉碎助剤としてオレイン酸アミドを 0.1 wt % 程度添加し、高圧 N₂ ガスによるジェットミル粉碎を行い、それぞれ平均粒子径が 4.2 μm～4.6 μm 程度の微粉末とした。また、水素粉碎以降焼結処理するまでは酸素雰囲気は 200 ppm 程度として行った。次いで、得られた主相系合金（合金 A～合金 F）の微粉末と、粒界相系合金（合金 a～合金 e、a2）の微粉末又は希土類化合物（Dy₂O₃、DyF₃、DyH₂）の微粉末とを、質量比が表 2 に示す配合比となるように低酸素雰囲気で混合し、希土類焼結磁石の原料粉末である混合粉末を得た。次いで、得られた混合粉末を、成形圧力が 118 MPa、配向磁場が 1200 kA/m の条件で磁場中で成形を行い、成形体を得た。

[0121] 得られた成形体を、真空中において、600℃以上焼結温度までにおける平均昇温速度を 2℃/min 以上 10℃/min 以下として昇温し、焼結温度 T_s を 1000℃～1080℃として 4 時間保持し、焼結した。

[0122] 焼結後、Ar 雰囲気中で焼結体を 600℃未満までの平均冷却速度は、3℃/min 以上 20℃/min 以下として 200℃以下まで冷却した。これにより、上記の組成を有する希土類焼結磁石を製造した。

[0123] その後、Ar 雰囲気中で時効処理（熱処理）を行った。時効処理は 2 段階で行った。第 1 時効処理温度 T₁ を 750℃～900℃として 1 時間保持した後、200℃以下まで冷却し、第 2 時効処理温度 T₂ を 510℃～570℃として 1 時間保持して行った。時効処理する際、600℃以上第 1 時効処理温度 T₁ までにおける平均昇温速度および第 1 時効処理温度 T₁ から 600℃までの平均冷却速度は、上述の焼結時の平均昇温速度および平均冷却速

度と同様としてもよい。

[0124] なお、実施例 23～33、比較例 8～12 における微粉碎時の酸素濃度は 2500 ppm とした。

[0125] [比較例 7]

また、比較例 7 では、合金 E のみを用いたこと以外は、実施例 1 と同様の条件で行い、希土類焼結磁石を作製した。

[0126] 表 1 に示す主相系合金（合金 A～合金 F）、粒界相系合金（合金 a～合金 f、合金 a2）及び希土類化合物（ Dy_2O_3 、 DyF_3 、 DyH_2 ）を用いて、表 2 に示す配合比で所定の磁石組成を有する Nd-Fe-B 系焼結磁石を作製した。主相系合金（合金 A～合金 F）、粒界相系合金（合金 a～合金 f、合金 a2）及び希土類化合物（ Dy_2O_3 、 DyF_3 、 DyH_2 ）の配合比と、作製した Nd-Fe-B 系希土類焼結磁石の磁石組成と、O、C、N のガス量を表 2 に示す。

[0127]

[表2]

表2)

試料			配合比		磁石組成(質量%)										ガス量		
			Nd	Pr	Dy	Tb	Co	Al	Cu	B	Ga	Zr	Dy+Tb	TRE	O(ppm)	C(ppm)	N(ppm)
実施例	1	1	合金A(95)+合金a(5)	0.00	1.50	0.00	0.48	0.22	0.15	1.00	0.00	0.19	1.50	30.30	600~1000	800~1200	400~700
	2	2															
	3	3															
比較例	1	4															
	2	5															
	4	6															
実施例	5	7															
	6	8															
	7	9															
比較例	3	12	合金B(95)+合金b(5)	5.60	1.80	0.00	0.50	0.20	0.08	1.00	0.10	0.19	1.80	30.00	600~1000	800~1200	400~700
	4	13															
	10	14															
比較例	11	15	合金C(95)+合金a(5)	0.00	5.30	0.00	0.00	0.22	0.05	1.05	0.00	0.19	5.30	30.80	600~1000	800~1200	400~700
	5	16															
	12	17															
実施例	13	18	合金A(95)+合金a2(5)	0.00	1.50	0.00	0.48	0.22	0.15	1.00	0.00	0.19	1.50	30.30	600~1000	800~1200	400~700
	14	19															
	15	21															
比較例	16	22	合金C(90)+合金d(10)	0.00	6.60	0.00	0.50	0.20	0.10	0.99	0.00	0.18	6.60	31.30	4650	600~1000	400~700
	17	23															
	18	24															
比較例	7	26	合金E(100)	23.30	5.40	2.50	0.00	2.00	0.10	1.00	0.10	0.10	2.50	31.20	4650	600~1000	400~700
	20	27															
	21	28															
実施例	22	29	合金A(97)+Dy ₂ O ₃ (3)	29.00	0.00	2.60	0.00	0.49	0.19	1.02	0.00	0.19	2.60	31.60	600~1000	800~1200	400~700
	23	30															
	24	31															
比較例	8	31	合金F(80)+合金e(20)	0.00	9.10	0.00	0.00	0.10	0.10	1.00	0.00	0.08	9.10	31.60	3500~4700	900~1200	150~300
	24	32															
	25	33															
比較例	9	35	合金D(95)+合金c(5)	0.00	0.00	3.70	1.40	0.03	0.08	1.00	0.00	0.19	3.70	32.10	3500~4700	900~1200	150~300
	26	34															
	27	36															
比較例	10	37	合金A(97)+Dy ₂ O ₃ (3)	29.00	0.00	3.00	0.00	0.49	0.19	1.02	0.00	0.19	3.00	32.00	600~1000	800~1200	400~700
	11	38															
	11	38															

[0128] <3. 評価>

製造した希土類焼結磁石の相対密度、一部で3層構造が形成されている主相粒子（低濃度領域の少なくとも一部に高濃度領域が隣接し、かつ高濃度領域の少なくとも一部に中濃度領域が隣接している主相粒子）の割合、完全に

3層構造が形成されている主相粒子（低濃度領域の周囲全てに高濃度領域が隣接し、かつ高濃度領域の周囲全てに中濃度領域が隣接している主相粒子）の割合、磁気特性、強度、温度特性、耐食性および中濃度領域内のDy又はTbの濃度の平均値を以下の方法で測定し、評価した。

[0129]（相対密度）

作製した希土類焼結磁石の相対密度は、希土類焼結磁石の実測密度をその理論密度で除した値である。本実施例においては、希土類焼結磁石の理論密度は $R_2Fe_{14}B$ の密度とし、 $Nd_2Fe_{14}B$ は 7.58 Mg/m^3 とし、 $Dy_2Fe_{14}B$ は 8.07 Mg/m^3 とした。また、元素Rを2種類以上用いる場合には、各元素の比率に応じ直線近似する。具体的には、元素RとしてNdおよびDyを用い、これらのモル比が $Nd:Dy = x:y$ である場合、希土類焼結磁石の理論密度は $(7.58x + 8.07y) / (x + y)$ とする。

[0130]（一部で3層構造が形成されている主相粒子の割合、完全に3層構造が形成されている主相粒子の割合）

希土類焼結磁石の試料を準備して70個以上の主相粒子をEPMAで観察した。希土類焼結磁石の主相に含まれる重希土類元素の濃度を確認し、一部で3層構造が形成されている主相粒子の割合、完全に3層構造が形成されている主相粒子の割合を求めた。一部で3層構造が形成されている主相粒子の割合と完全に3層構造が形成されている主相粒子の割合とは、試料ごとに所定の数的主相粒子を観察して、その中に含まれる一部で3層構造が形成されている主相粒子又は完全に3層構造が形成されている主相粒子の数から求めた。

[0131]（磁気特性）

製造した希土類焼結磁石の磁石特性は、BHトレーサーにより測定して保磁力 H_cJ 、残留磁束密度 B_r を求めた。

[0132]（強度）

製造した希土類焼結磁石を $40\text{ mm} \times 10\text{ mm} \times 2\text{ mm}$ の試験片に加工し、3点曲げ強度試験を行った。3点曲げ強度試験は、JIS R1601に

準拠し、万能試験機（商品名「AGS-1000A」、島津製作所社製）で評価した。図13に3点曲げ強度試験の一例を模式的に示す。図13に示すように、基板41上に一对の支点42を設置し、支点間距離を30mmとした。一对の支点42上に試験片Sを設置して試験片Sに荷重を加えて行った。

[0133]（温度特性）

温度可変型の磁気測定装置を使用し、室温RT（22℃前後）における保磁力 $H_c J$ と、所定温度として140℃、180℃、200℃における保磁力 $H_c J$ を比較し比率（%）を計算した。

[0134]（耐食性）

製造した希土類焼結磁石を内周スライサーで10mm×10mm×2mmに加工し、洗浄した試験片を試料とした。この試料を、温度を60℃とし、湿度を90%RHとした恒温恒湿槽に2000時間入れた後、試験片の外観の変化を確認し、錆の有無を評価した。試験片は100個（ $n=100$ ）用意し、各試験片について行った。なお、表4中、分母は、錆の有無を観察した試験片の数を示し、分子は、錆が観察された試験片の数を示す。

[0135] 各実施例および比較例で製造した希土類焼結磁石の相対密度、一部で3層構造が形成されている主相粒子の割合、完全に3層構造が形成されている主相粒子の割合のそれぞれの測定結果を表3に示す。なお、表3中、一部で3層構造が形成されている主相粒子の割合、完全に3層構造が形成されている主相粒子の割合のそれぞれの数の分母は、試料の主相粒子を観察した数を示し、分子は、一部で3層構造が形成されている主相粒子の数、完全に3層構造が形成されている主相粒子の数を示す。また、表3に示す各実施例および比較例のうち、各配合比から抜粋した希土類焼結磁石の磁気特性、強度、温度特性および耐食性の測定結果を表4に示す。

[0136]（中濃度領域内の D_y 又は T_b の濃度の平均値）

また、表4に示す希土類焼結磁石の主相をEPMAでライン分析した際に、主相粒子内の低濃度領域内の D_y 又は T_b の最小濃度を α とし、高濃度領

域内のD y又はT bの最大濃度を β とし、中濃度領域におけるD y又はT bの濃度の平均値を、D y又はT bの最大濃度から粒界相までの重希土類元素の濃度の平均値を γ とした時、下記の数式(A)の値を求めた。そして、それぞれの主相粒子の下記の数式(A)から、それぞれの希土類焼結磁石の主相粒子内の中濃度領域のD y又はT bの濃度の平均値を求めた。希土類焼結磁石の主相内の中濃度領域内のD y又はT bの濃度の平均値と、表3、4に示す希土類焼結磁石の温度特性、強度および耐食性との関係を図14～図19に示す。

$$(\gamma - \alpha) / (\beta - \alpha) \quad \cdots \text{数式 (A)}$$

[0137]

[表3]

(表3)	試料	配合比[O(質量%)]	焼結温度 (°C)	平均昇温速度(°C/min)		平均冷却速度(°C/min)		第1降ゆT1/ 第2降ゆT2	相対密度 (Mg/m³)	一部で層構造が形成され ている主相粒子の割合		完全に層構造が形成され ている主相粒子の割合	
				600°C ~600°C	600°C~Ts	Ts~600°C	600°C未満			測定結果	(%)	測定結果	(%)
実施例	1	合金A(95)+合金a(5)	1040	20	4	20	30	800/550	99.5	12/87	13.8	3/87	3.4
	2			20	7	20	30		99.5	10/84	11.9	3/84	3.6
	3			20	9	20	30		99.5	8/90	8.9	3/90	3.3
	4			20	13	20	30		99.5	4/82	4.9	2/82	2.4
	5			10	6	20	30		99.5	0/73	0.0	0/73	0
比較例	1			20	20	20	30		99.5	13/90	14.4	4/90	4.4
	2			15	6	20	30		99.5	12/71	12.9	3/71	4.2
	3			40	6	20	30		99.5	12/76	15.8	3/76	3.9
	4			50	6	20	30		99.5	15/94	17.0	4/94	4.3
	5			100	6	20	30		99.5	11/74	14.9	3/74	4.1
実施例	6	合金B(95)+合金b(5)	1000	6	6	15	30	850/570	99.5	35/92	38.0	8/92	8.7
	7			6	6	30	30		99.5	4/88	4.5	1/88	2.3
	8			6	6	40	30		99.5	21/84	25.0	3/84	3.6
	9			6	6	20	10		99.5	25/96	26.0	3/96	3.1
	10			6	6	20	50		99.6	4/83	4.8	1/83	1.2
比較例	1			20	6	15	30		99.4	28/76	30.8	4/76	5.3
	2			10	6	15	40		99.4	20/84	23.8	3/84	3.6
	3			10	6	15	40		99.6	22/79	27.3	3/79	3.8
	4			10	6	15	80		99.5	3/75	4.0	1/75	2.7
	5			10	6	40	40		99.6	23/86	26.7	4/86	4.7
実施例	6	合金C(95)+合金c(5)	1060	20	4	15	30	900/530	99.6	19/87	21.8	4/87	4.6
	7			20	4	15	40		99.6	18/80	22.5	3/80	3.8
	8			20	4	20	30		99.3	23/84	27.4	4/84	4.8
	9			20	4	15	30		99.6	0/72	0.0	0/72	0.0
	10			15	6	15	30		99.6	24/89	27.0	4/89	4.5
比較例	1			15	6	15	30		99.1	16/93	17.2	4/93	4.3
	2			15	6	15	30		99.6	25/88	29.1	4/88	4.7
	3			15	5	15	30		99.4	22/76	28.9	3/76	3.9
	4			15	5	30	30		99.4	4/83	4.8	1/83	2.6
	5			10	3	10	25		99.6	34/91	37.4	9/91	9.9
実施例	6	合金D(95)+合金d(5)	1070	10	6	15	30	850/550	99.5	27/8	27.6	4/87	4.6
	7			10	9	15	30		99.5	25/87	28.7	4/90	4.4
	8			10	12	15	30		99.5	5/110	4.5	2/110	2.7
	9			10	3	5	30		99.6	37/87	42.5	10/87	11.5
	10			10	3	30	30		99.6	4/94	4.3	1/94	2.1
比較例	1			20	8	15	30		99.5	4/88	4.5	1/88	1.1
	2			20	3	8	30		99.5	20/96	20.8	4/96	4.2
	3			20	3	4	30		99.5	32/112	28.6	5/112	4.5
	4			20	10	40	40		99.5	4/87	4.6	1/87	1.1
	5			20	6	10	40		99.5	15/72	20.8	3/72	4.2
実施例	6	合金E(100)	1040	20	3	2	30	750/570	99.5	28/108	25.9	5/108	4.6
	7			20	3	2	30		99.4	31/120	25.8	5/120	4.2
	8			20	2	5	30		99.4	26/96	27.1	4/96	4.2
	9			20	4	10	30		99.4	26/96	27.1	4/96	4.2
	10			20	4	10	30		99.4	26/96	27.1	4/96	4.2
比較例	1			20	4	10	30		99.4	26/96	27.1	4/96	4.2
	2			20	4	10	30		99.4	26/96	27.1	4/96	4.2
	3			20	4	10	30		99.4	26/96	27.1	4/96	4.2
	4			20	4	10	30		99.4	26/96	27.1	4/96	4.2
	5			20	4	10	30		99.4	26/96	27.1	4/96	4.2

[0138]

[表4]

(表4)

	試料	配合比[C:質量%]	一相に3層構造が形成されている主相粒子の割合(%)	完全に3層構造が形成されている主相粒子の割合(%)	磁気特性 [B(kmT)/HcJ(kA/m)]	強度 (MPa)	温度特性(%)	耐食性 [80°C-90%RH-2000h] (n=100で錆の有無観察)	中濃度領域 内のDy又は Tbの濃度の 平均値
実施例	1	合金A(95)+合金a(5)	13.8	3.4	1435/1432	262	HcJ(140°C)/HcJ(RT)=42.3	1/100	0.51
比較例	1		4.9	2.4	1433/1409	220	HcJ(140°C)/HcJ(RT)=40.5	4/100	0.66
	2		0.0	0.0	1434/1412	208	HcJ(140°C)/HcJ(RT)=39.1	13/100	-
実施例	4		14.4	4.4	1434/1435	253	HcJ(140°C)/HcJ(RT)=41.9	1/100	0.52
	9		38.0	8.7	1433/1440	267	HcJ(140°C)/HcJ(RT)=42.7	0/100	0.49
比較例	3	合金B(95)+合金b(5)	3.9	2.6	1433/1417	190	HcJ(140°C)/HcJ(RT)=38.4	24/100	0.69
	4		4.5	2.3	1435/1402	195	HcJ(140°C)/HcJ(RT)=38.2	28/100	0.72
	5		4.8	1.2	1420/1450	190	HcJ(140°C)/HcJ(RT)=40.2	16/100	0.68
実施例	12		36.8	5.3	1430/1554	255	HcJ(140°C)/HcJ(RT)=43.4	5/100	0.52
比較例	6		4.0	2.7	1430/1522	205	HcJ(140°C)/HcJ(RT)=39.2	16/100	0.73
実施例	15	合金C(95)+合金a(5)	26.7	4.7	1352/2017	248	HcJ(180°C)/HcJ(RT)=34.5	0/100	0.59
	18		22.5	3.8	1430/1563	285	HcJ(140°C)/HcJ(RT)=42.3	0/100	0.53
	19		27.4	4.8	1325/2120	231	HcJ(180°C)/HcJ(RT)=35.9	0/100	0.60
比較例	7		0.0	0.0	1405/1525	236	HcJ(140°C)/HcJ(RT)=39.8	1/100	-
	20		27.0	4.5	1384/1583	220	HcJ(140°C)/HcJ(RT)=41.9	0/100	0.61
実施例	21	合金A(97)+Dy ₂ O ₃ (3)	17.2	4.3	1392/1554	234	HcJ(140°C)/HcJ(RT)=41.5	2/100	0.57
	22		29.1	4.7	1371/1682	240	HcJ(140°C)/HcJ(RT)=42.2	1/100	0.51
	23		28.9	3.9	1274/2722	236	HcJ(200°C)/HcJ(RT)=29.4	6/100	0.62
比較例	8		4.8	2.6	1275/2687	194	HcJ(200°C)/HcJ(RT)=28.2	23/100	0.75
実施例	24		37.4	9.9	1381/2708	254	HcJ(200°C)/HcJ(RT)=29.6	2/100	0.45
比較例	9	合金D(95)+合金c(5)	4.5	2.7	1380/2680	220	HcJ(200°C)/HcJ(RT)=28.6	10/100	0.69
	10		4.3	2.1	1382/2667	202	HcJ(200°C)/HcJ(RT)=28.3	13/100	0.71
	11		4.5	1.1	1375/2715	198	HcJ(200°C)/HcJ(RT)=28.0	26/100	0.79
実施例	28		20.8	4.2	1434/1435	208	HcJ(140°C)/HcJ(RT)=42.7	2/100	0.40
比較例	12		4.6	4.5	1435/1408	192	HcJ(140°C)/HcJ(RT)=42.1	1/100	0.35
実施例	30	合金A(95)+合金a(5)	20.8	4.2	1433/1420	178	HcJ(140°C)/HcJ(RT)=38.7	34/100	0.80
	31		25.9	4.6	1435/1429	227	HcJ(140°C)/HcJ(RT)=42.9	1/100	0.45
	32		25.8	4.2	1434/1426	179	HcJ(140°C)/HcJ(RT)=40.8	1/100	0.31
比較例	33		27.1	4.2	1276/2669	190	HcJ(200°C)/HcJ(RT)=28.5	3/100	0.33
実施例	34		27.1	4.2	1276/2706	214	HcJ(200°C)/HcJ(RT)=28.9	3/100	0.41

[0139] 表3、4より、成形体を焼成する際の600°Cから焼結温度 T_s までにおける平均昇温速度を所定の範囲内とすることで、希土類焼結磁石の主相内に

は3層構造を形成するようにしてDy、Tbの何れか一方又は両方を含んでいたことが確認された（実施例1～3、24～26、比較例1、2、9参照）。成形体を焼結する際、成形体を焼成する際の600℃から焼結温度Tsまでにおける平均昇温速度を所定の範囲内とすることにより、主相中の重希土類元素の濃度差が生じ易くなるため、希土類焼結磁石の主相内に3層構造を形成するようにしてDy、Tbの何れか一方又は両方を含むことができるといえる。

[0140] また、焼結体を冷却する際の焼結温度Tsから600℃までにおける平均冷却速度を所定の範囲内とすることで、希土類焼結磁石の主相内には3層構造を形成するようにしてDy、Tbの何れか一方又は両方を含んでいたことが確認された（実施例4～9、12～23、27、比較例3、4、6、8、10参照）。焼結体を冷却する際、焼結温度Tsから600℃までにおける平均冷却速度を所定の範囲内とすることにより、重希土類元素の濃度差が生じ易くなるため、希土類焼結磁石の主相内に3層構造を形成するようにしてDy、Tbの何れか一方又は両方を含むことができるといえる。

[0141] また、希土類焼結磁石の相対密度は99%を下回ると、希土類焼結磁石の主相内には3層構造を形成するようにしてDy、Tbの何れか一方又は両方を含んでいないことが確認された（比較例5、11参照）。よって、希土類焼結磁石の相対密度を99%以上とすることは、希土類焼結磁石の主相内に3層構造を形成するようにしてDy、Tbの何れか一方又は両方を含むことに寄与しているといえる。

[0142] また、希土類焼結磁石を作製する際に、原料合金が1種類の場合には、希土類焼結磁石の主相内には3層構造を形成するようにしてDy、Tbの何れか一方又は両方を含んでいないことが確認された（比較例7参照）。よって、希土類焼結磁石は原料合金を2種類用いて作製することにより、希土類焼結磁石の主相内に3層構造を形成するようにしてDy、Tbの何れか一方又は両方を含むことができるといえる。

[0143] なお、図14、図17に示すように、中濃度領域のDy又はTbの濃度が

高くなるほど希土類焼結磁石の温度特性は低下するが、基準は十分満たすものであった。また、図15、図16に示すように、中濃度領域のDy又はTbの濃度が高くなるほど希土類焼結磁石の耐食性は向上した。図16、図19に示すように、中濃度領域のDy又はTbの濃度が高くなるほど希土類焼結磁石の強度は低下するが、基準は十分満たすものであった。よって、希土類焼結磁石の主相をEPMAでライン分析した際に、主相内の低濃度領域内のDy又はTbの最小濃度を α とし、高濃度領域内のDy又はTbの最大濃度を β とした時、中濃度領域内のDy又はTbの濃度の平均値 γ が所定の範囲内であれば、Dy又はTbの濃度に応じた3層構造が形成され、得られる希土類焼結磁石は、140℃～200℃のような高温環境下においても保磁力 $H_c J$ を高く維持することができる。なお、中濃度領域内のDy又はTbの濃度の平均値 γ は、図10に示すように、中濃度領域14における重希土類元素の濃度の平均値を示す。この結果、得られる希土類焼結磁石の温度特性を向上させることができる。また、得られる希土類焼結磁石の強度を向上させつつ耐食性も向上できるといえる。

- [0144] このように、成形体を焼結する際の600℃から焼結温度 T_s までにおける平均昇温速度、焼結体を冷却する際の焼結温度 T_s から600℃までにおける平均冷却速度を所定範囲として希土類焼結磁石を作製することで、希土類焼結磁石の主相内には3層構造を形成するようにして重希土類元素を含むことができる。そして、得られた希土類焼結磁石は主相内に3層構造を形成するようにして重希土類元素を含むため、温度特性、強度はさらに向上し、磁気特性、耐食性の改善された希土類焼結磁石を作製することができることが判明した。このため、本実施形態に係る希土類焼結磁石をモータなどの回転機やMRIなどの磁場発生装置に用いられる永久磁石として用いることで、温度特性および強度を有することができるため、回転機や磁場発生装置などの性能を更に向上させることができ、信頼性の高い回転機や磁場発生装置などを製造することができる。

符号の説明

- [0145]
- 1 1 主相
 - 1 2 低濃度領域
 - 1 3 高濃度領域
 - 1 4 中濃度領域
 - 1 5 粒界相
 - 2 0 SPMモータ
 - 2 1 ハウジング
 - 2 2 ロータ
 - 2 3 ステータ
 - 2 4 回転軸
 - 2 5 ロータコア（鉄芯）
 - 2 6 永久磁石
 - 2 7 磁石挿入スロット
 - 2 8 ステータコア
 - 2 9 スロットル
 - 3 0 コイル
 - 4 1 基板
 - 4 2 支点
 - S 試験片

請求の範囲

- [請求項1] $R_2T_{14}B$ (RはNd、Prの何れか一方又は両方を主成分として含む1種以上の希土類元素であり、TはFe又はFe及びCoを含む1種以上の遷移元素を表す) 化合物からなる主相と、前記主相よりRを多く含む粒界相とを少なくとも含む希土類焼結磁石であり、
- 前記主相は、重希土類元素(少なくともDy、Tbの何れか一方又は両方を含む)を含み、
- 前記希土類焼結磁石に含まれる前記主相のうちの少なくとも1部の主相粒子は、前記重希土類元素の濃度が異なる少なくとも3つの領域を含み、
- 前記重希土類元素の濃度の異なる3つの領域は、
- 前記重希土類元素の濃度が3つの領域において最も低い低濃度領域と、
- 前記重希土類元素の濃度が3つの領域において最も高い高濃度領域と、
- 前記重希土類元素の濃度が前記低濃度領域より高く、前記高濃度領域よりも低い中濃度領域とであり、
- 前記3つの領域は、前記主相粒子内において前記低濃度領域から前記粒界相へ向かって、前記低濃度領域、前記高濃度領域、前記中濃度領域の順に存在していることを特徴とする希土類焼結磁石。
- [請求項2] 前記低濃度領域の少なくとも一部に前記高濃度領域が隣接し、かつ前記高濃度領域の少なくとも一部に前記中濃度領域が隣接している主相粒子が、前記希土類焼結磁石中に5%以上存在している請求項1に記載の希土類焼結磁石。
- [請求項3] 前記主相粒子が、前記希土類焼結磁石中に30%以上存在している請求項2に記載の希土類焼結磁石。
- [請求項4] 前記低濃度領域の周囲全てに前記高濃度領域が隣接し、かつ前記高濃度領域の周囲全てに前記中濃度領域が隣接している主相粒子が、前

記希土類焼結磁石中に3%以上存在している請求項1乃至3の何れか1つに記載の希土類焼結磁石。

〔請求項5〕 前記主相粒子が前記希土類焼結磁石中に5%以上存在している請求項4に記載の希土類焼結磁石。

〔請求項6〕 前記中濃度領域における前記重希土類元素の濃度の平均値を、前記重希土類元素の最大濃度から前記粒界相までの前記重希土類元素の濃度の平均値とする請求項1乃至5の何れか1つに記載の希土類焼結磁石。

〔請求項7〕 前記主相内における前記重希土類元素の最小濃度を α とし、前記主相内における前記重希土類元素の最大濃度を β とし、前記中濃度領域における前記重希土類元素の濃度の平均値を γ とした時、

前記中濃度領域における前記重希土類元素の濃度の平均値は下記数式(A)で表され、

下記数式(A)の値が0.2以上0.8以下の範囲内である請求項6に記載の希土類焼結磁石。

$$(\gamma - \alpha) / (\beta - \alpha) \quad \cdots \text{数式(A)}$$

〔請求項8〕 前記数式(A)の値が0.3以上0.75以下の範囲内である請求項7に記載の希土類焼結磁石。

〔請求項9〕 前記数式(A)の値が0.35以上0.7以下の範囲内である請求項7に記載の希土類焼結磁石。

〔請求項10〕 $R_2T_{14}B$ 化合物を含む主相系合金と、HR(HRはDy、Tbの何れか一方又は両方を少なくとも含む1種以上の希土類元素を表す)及びTを少なくとも含む粒界相系合金とを原料合金として用いる請求項1乃至9の何れか1つに記載の希土類焼結磁石。

〔請求項11〕 前記希土類焼結磁石の相対密度は99%以上である請求項1乃至10の何れか1つに記載の希土類焼結磁石。

〔請求項12〕 $R_2T_{14}B$ (RはNd、Prの何れか一方又は両方を主成分として含む1種以上の希土類元素であり、TはFe又はFe及びCoを含む1

種以上の遷移元素を表す)化合物からなる主相と、前記主相よりRを多く含む粒界相とを少なくとも含む希土類焼結磁石を製造するにあたり、

$R_2T_{14}B$ 化合物を含む主相系合金の合金粉末と、HR (HRはDy、Tbの何れか一方又は両方を少なくとも含む1種以上の希土類元素を表す)及びTを少なくとも含む粒界相系合金の合金粉末とを混合し、混合物を得る混合物作製工程と、

前記混合物を成形し、成形体を得る成形工程と、

600℃以上焼結温度までにおける平均昇温速度を2℃/min以上10℃/min以下として前記成形体を昇温する昇温工程と、

前記成形体を焼結し、焼結体を得る焼結工程と、

焼結温度から600℃までの平均冷却速度を3℃/min以上20℃/min未満として前記焼結体を冷却する冷却工程と、

を含み、

前記主相には重希土類元素(少なくともDy、Tbの何れか一方又は両方を含む)を含み、

前記希土類焼結磁石に含まれる前記主相のうちの少なくとも1部の主相粒子は、前記重希土類元素の濃度が異なる少なくとも3つの領域を含み、

前記重希土類元素の濃度の異なる3つの領域は、

前記重希土類元素の濃度が3つの領域において最も低い低濃度領域と、

前記重希土類元素の濃度が3つの領域において最も高い高濃度領域と、

前記重希土類元素の濃度が前記低濃度領域より高く、前記高濃度領域よりも低い中濃度領域とであり、

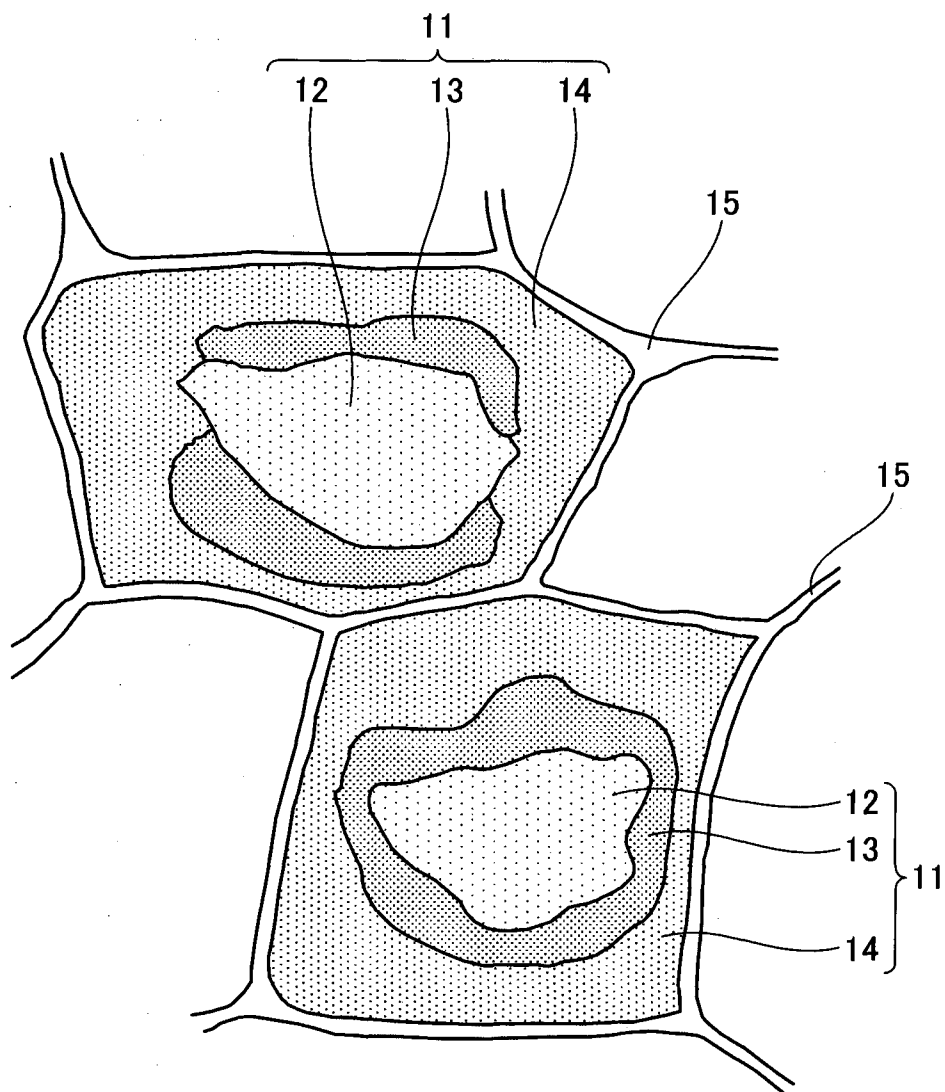
前記3つの領域は、前記主相粒子内において前記低濃度領域から前記粒界相へ向かって、前記低濃度領域、前記高濃度領域、前記中濃度

領域の順に存在していることを特徴とする希土類焼結磁石の製造方法

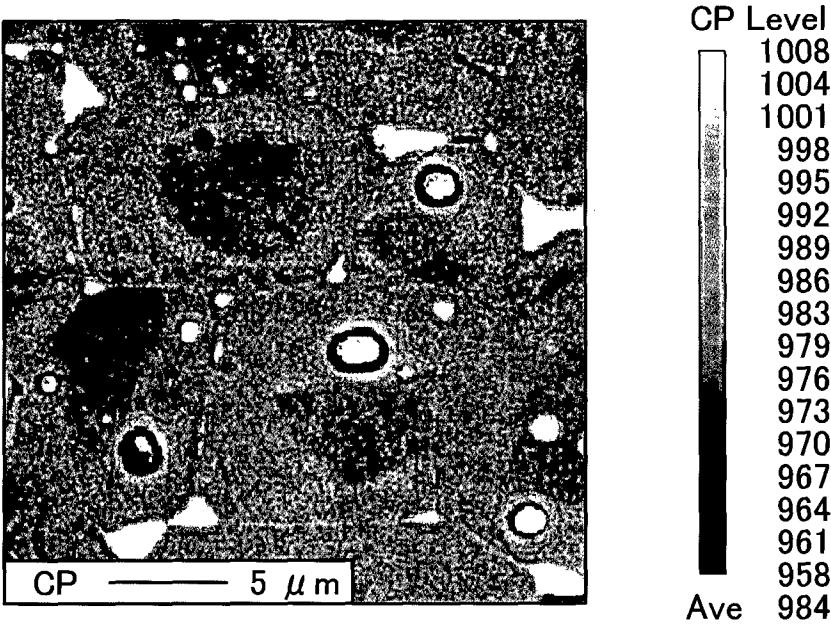
。

[請求項13] 請求項1乃至11の何れか1つに記載の希土類焼結磁石を含むことを特徴とする回転機。

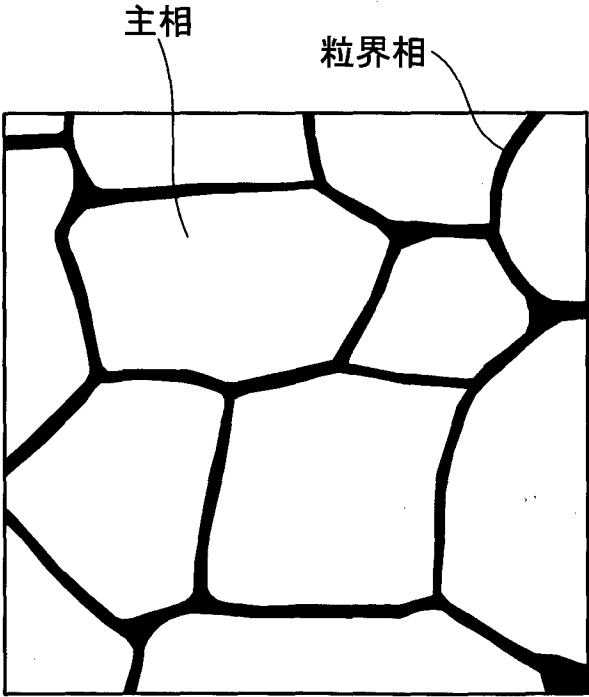
第1図



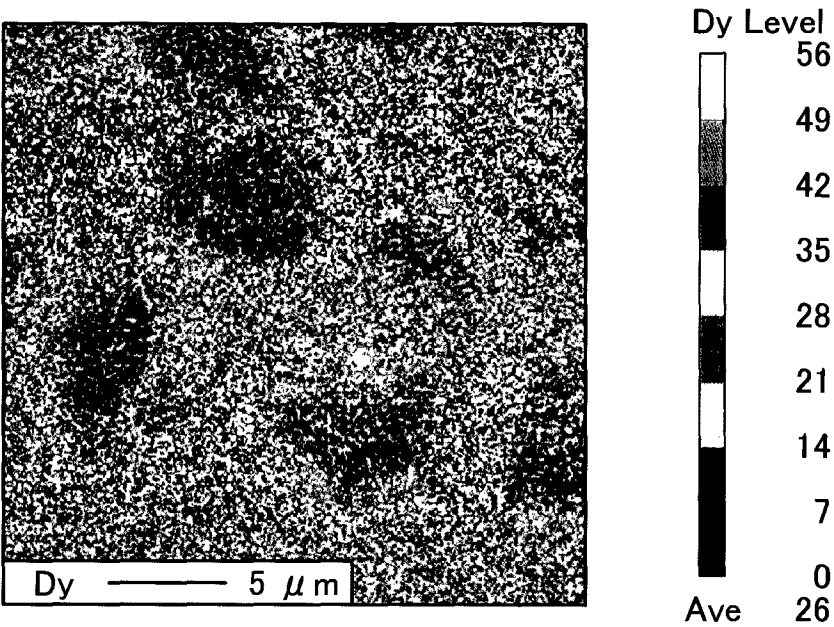
第2図



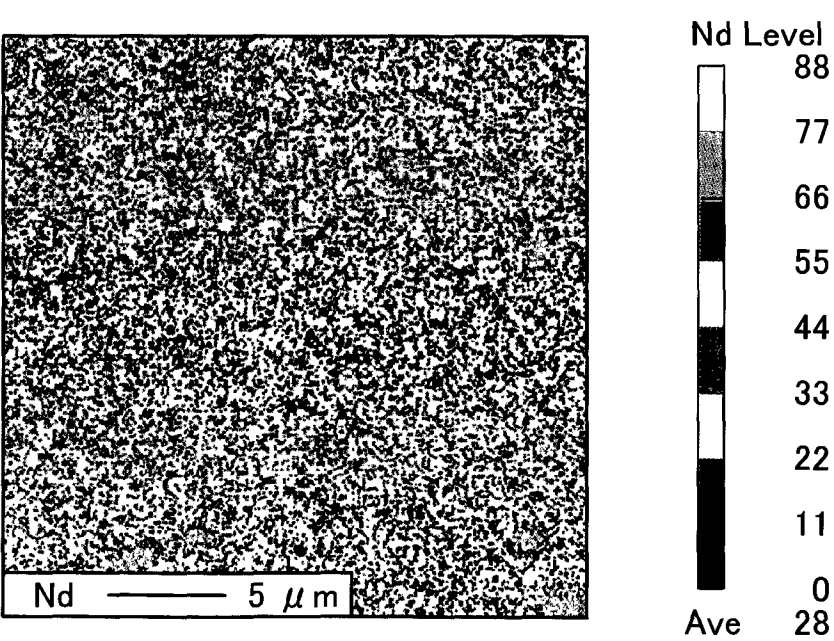
第3図



第4図

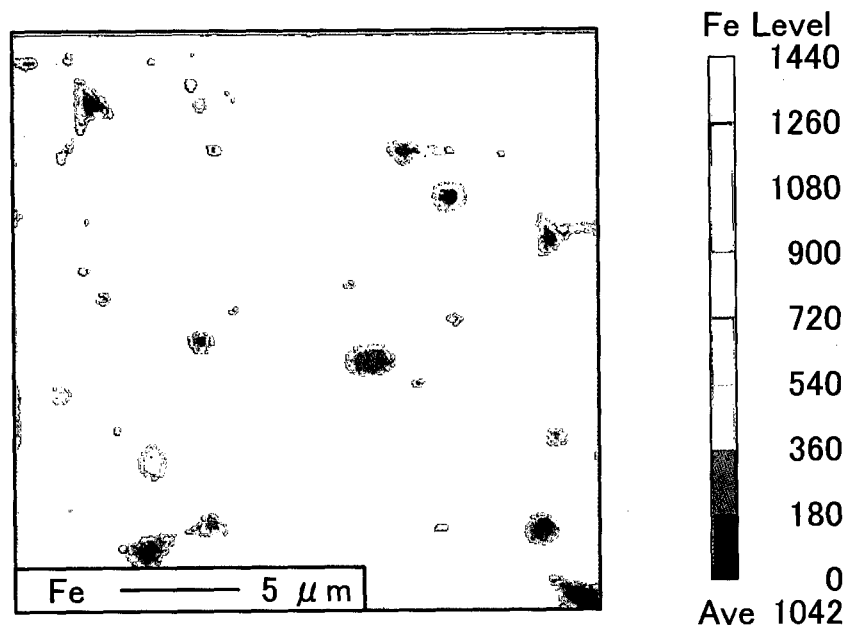


第5図

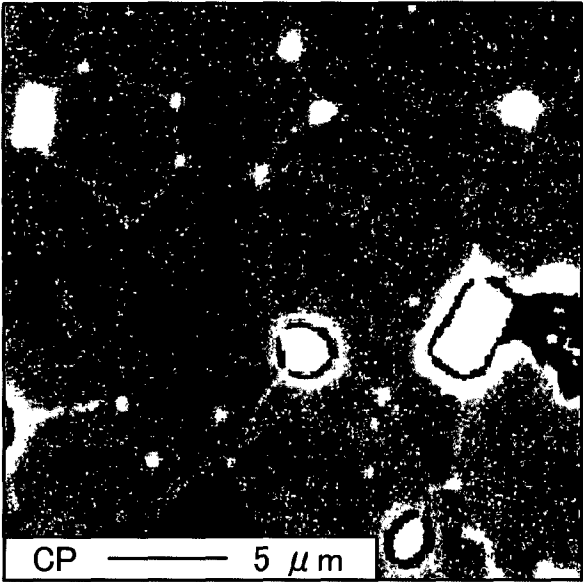


4/12

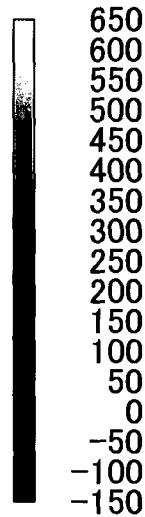
第6図



第7図

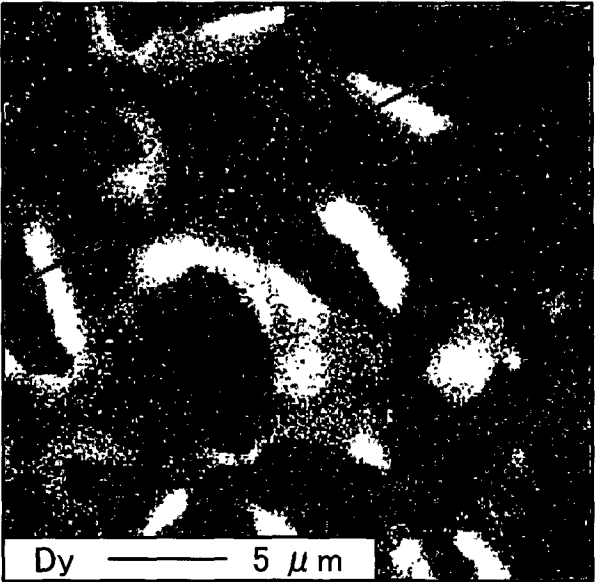


CP Level

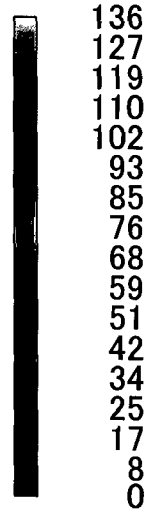


Ave 341

第8図

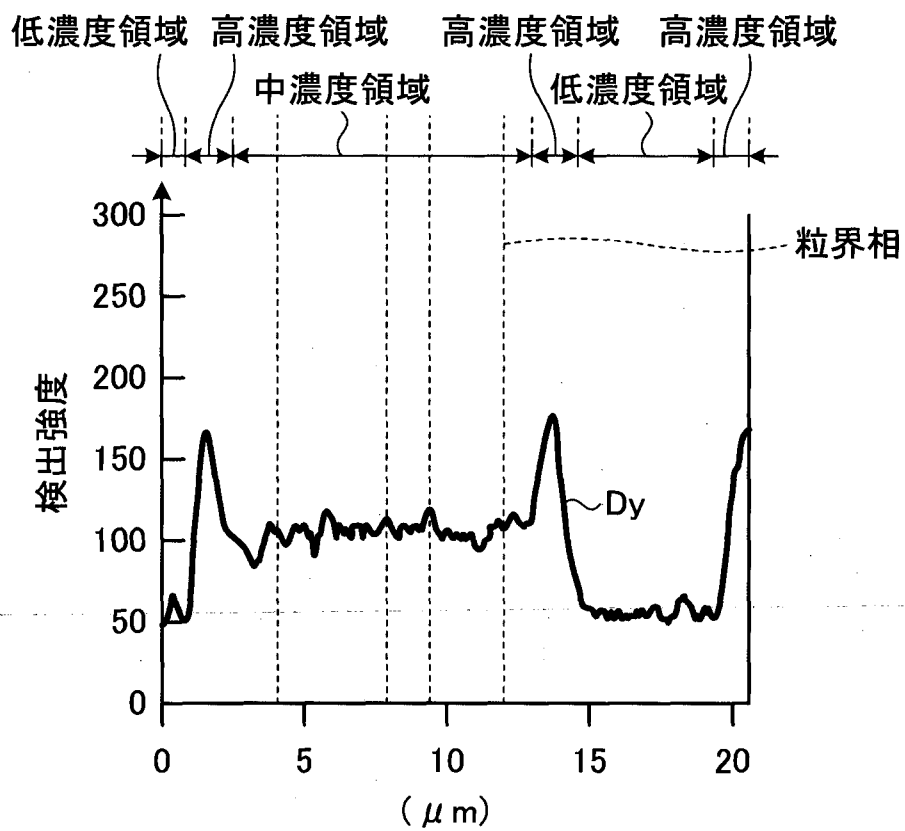


Dy Level

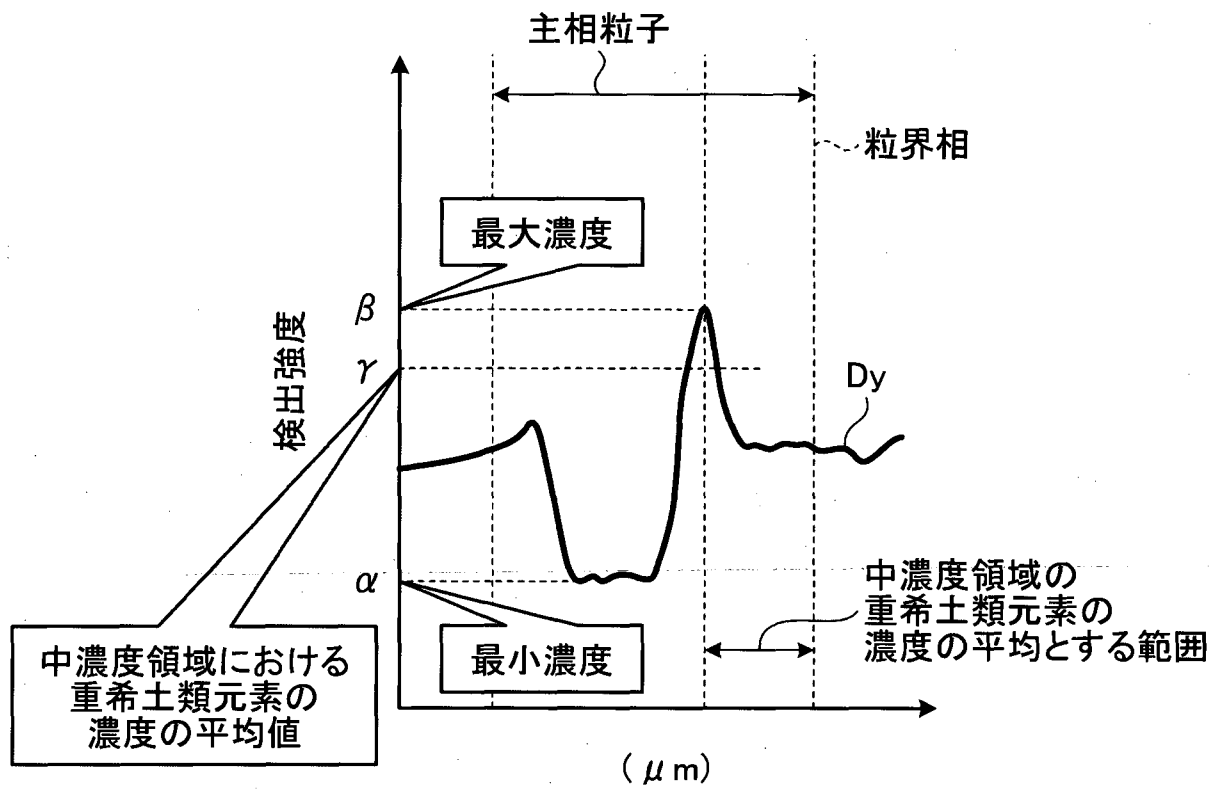


Ave 100

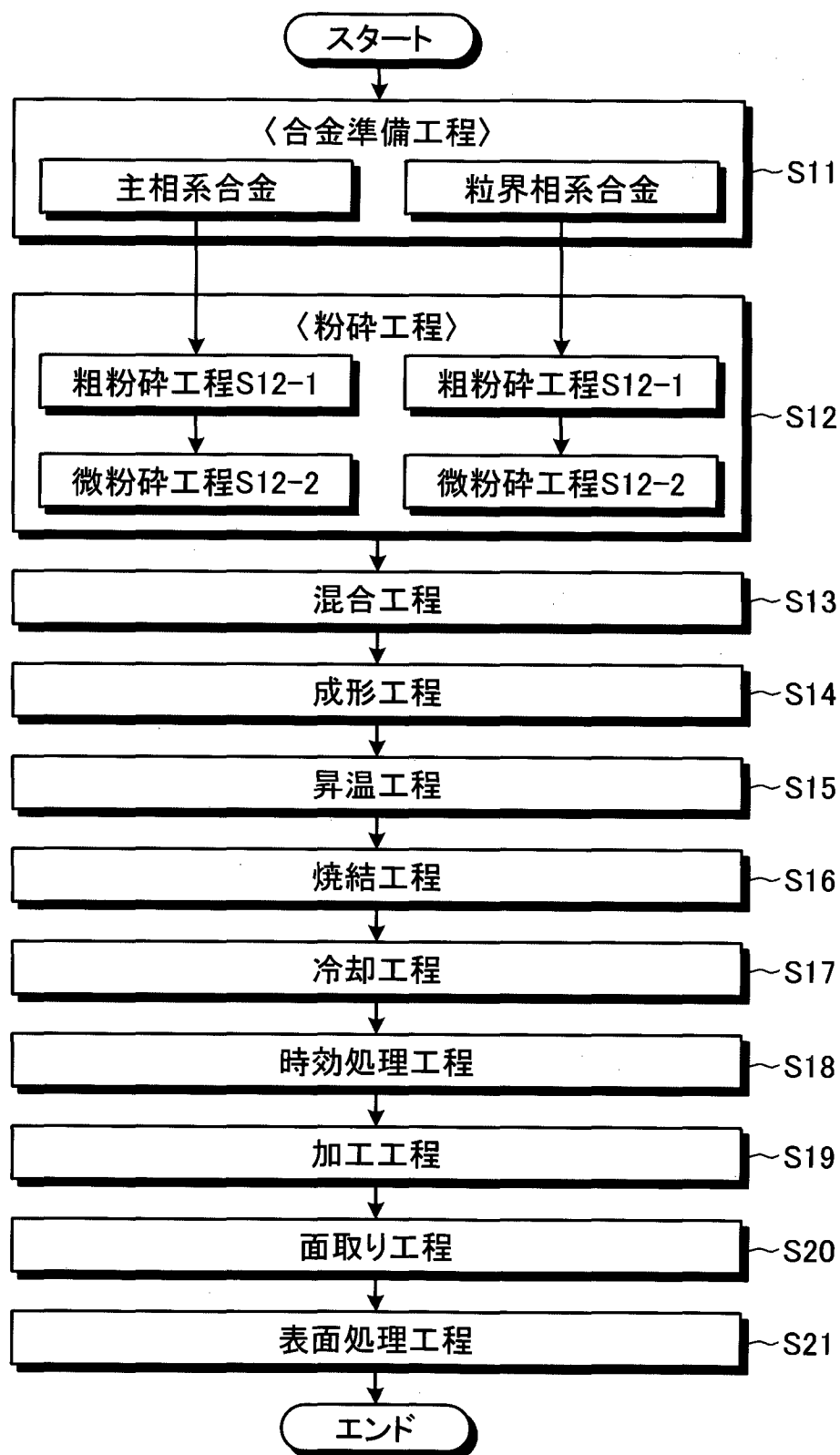
第9図



第10図

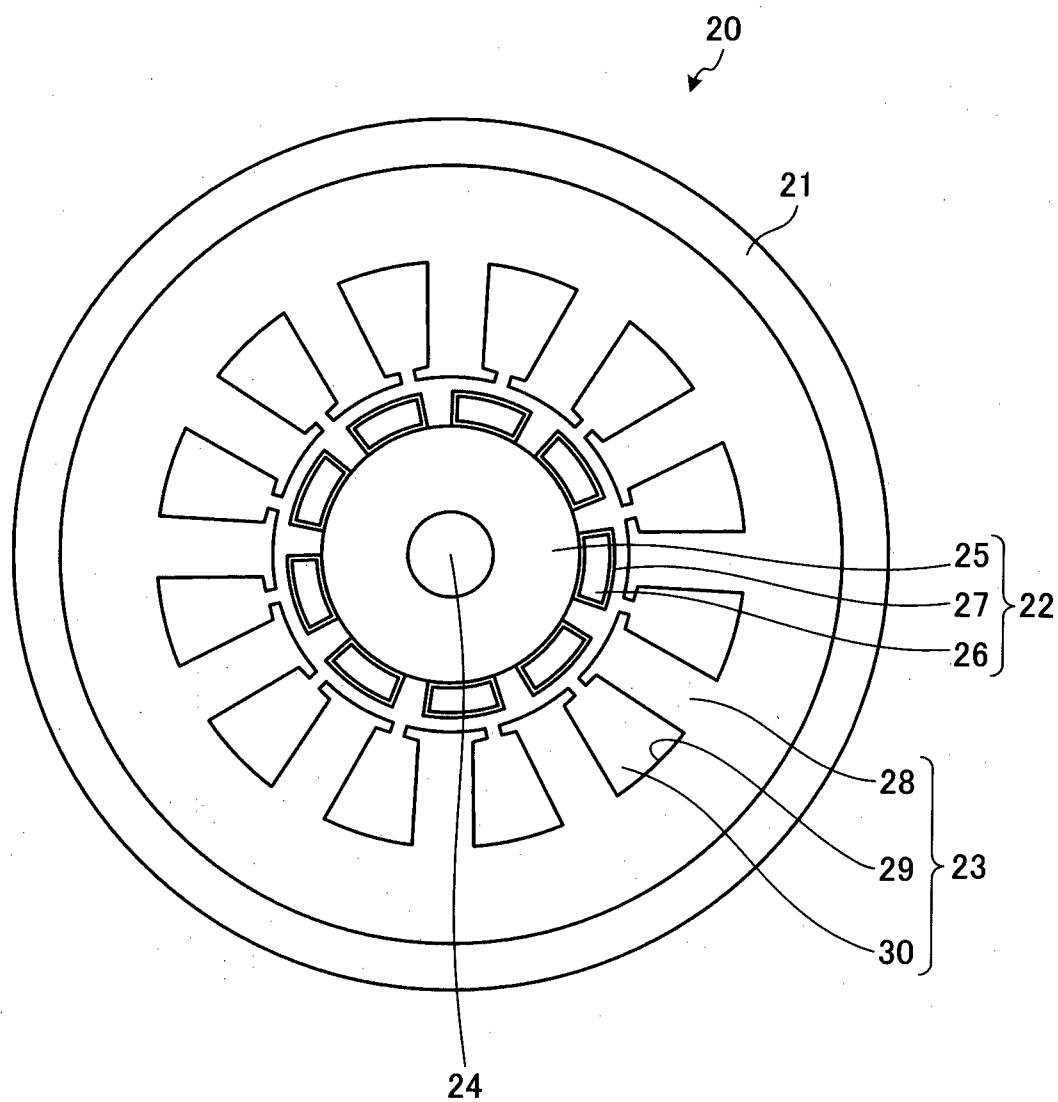


第11図

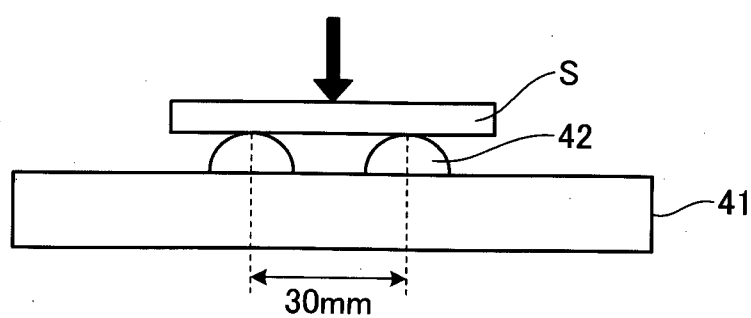


9/12

第12図

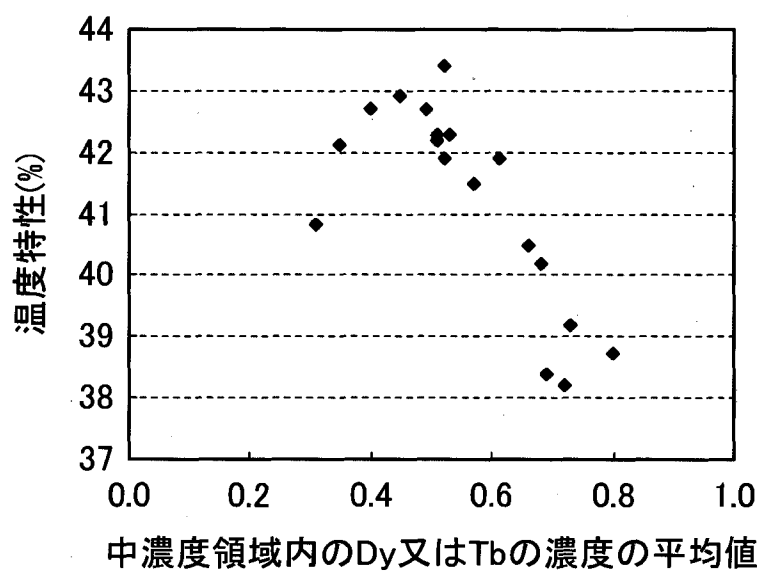


第13図

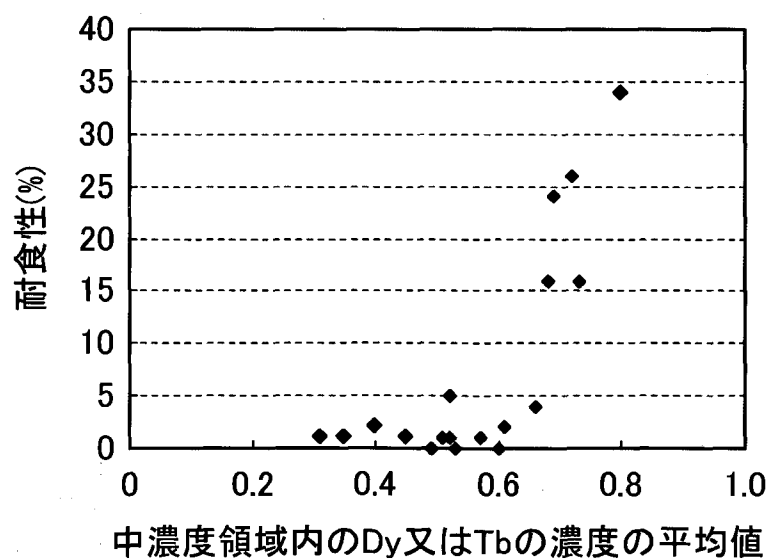


10/12

第14図

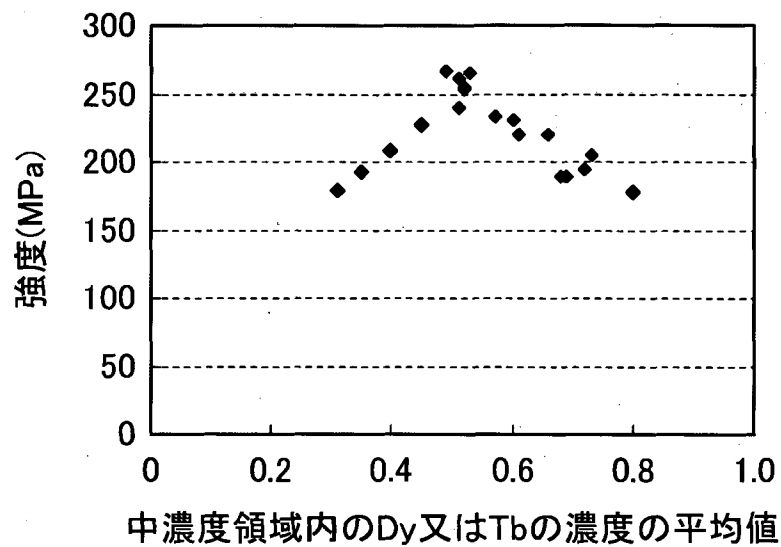


第15図

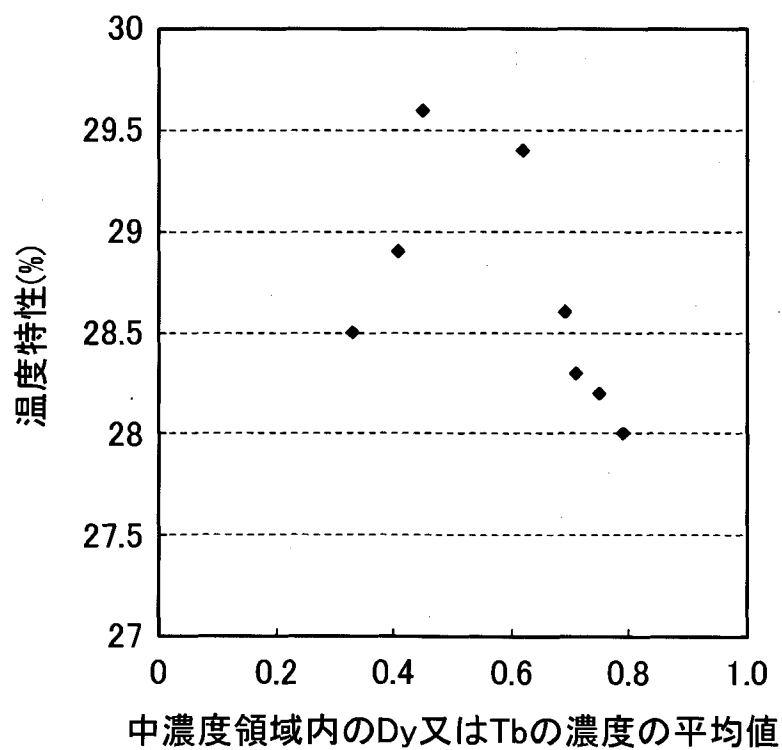


11/12

第16図

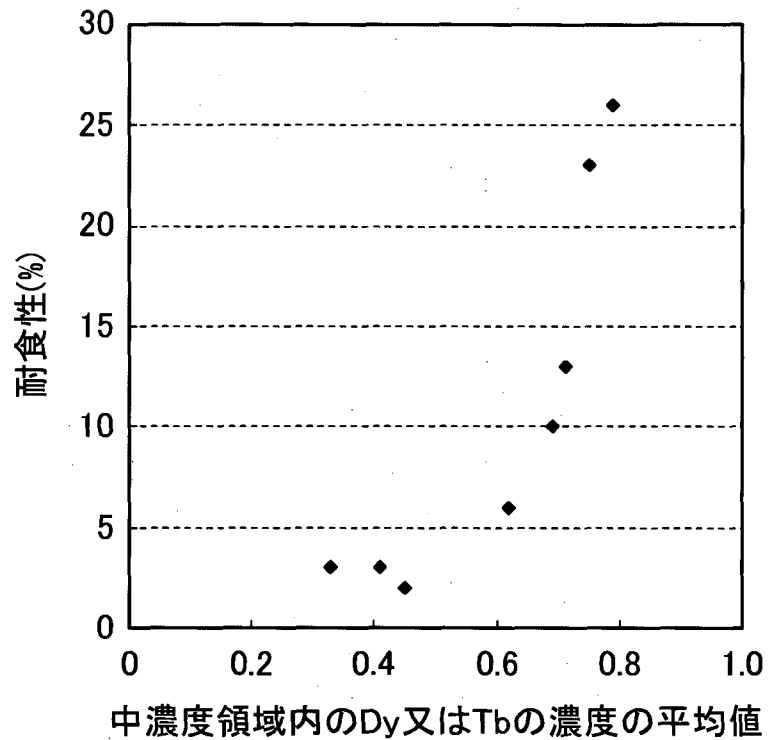


第17図

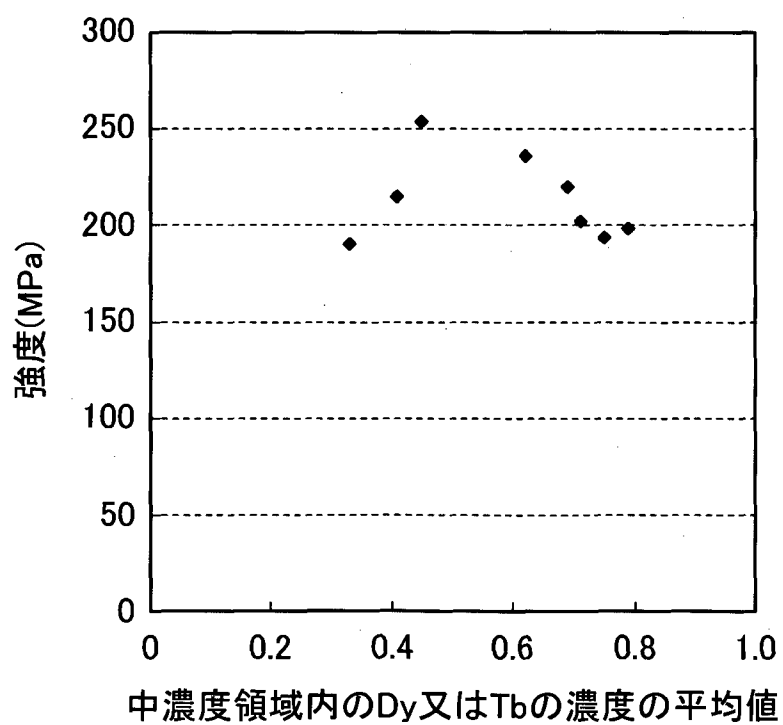


12/12

第18図



第19図



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/064254

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01F1/057(2006.01)i, B22F1/00(2006.01)i, B22F3/10(2006.01)i, C22C33/02(2006.01)i, C22C38/00(2006.01)i, H01F1/08(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)

H01F1/057, B22F1/00, B22F3/10, C22C33/02, C22C38/00, H01F1/08, H01F41/02

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

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

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 7-122413 A (Hitachi Metals, Ltd.), 12 May 1995 (12.05.1995), entire text; all drawings (Family: none)	1-13
A	WO 2010/082492 A1 (Hitachi Metals, Ltd.), 22 July 2010 (22.07.2010), entire text; all drawings & EP 2388350 A1 & CN 102282279 A	1-13
A	JP 2001-230107 A (Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.), 24 August 2001 (24.08.2001), entire text; all drawings (Family: none)	1-13

☒ 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
28 August, 2012 (28.08.12)

Date of mailing of the international search report
04 September, 2012 (04.09.12)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/064254

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 2007-294917 A (TDK Corp.), 08 November 2007 (08.11.2007), entire text; all drawings (Family: none)	1-13
A	JP 2006-210450 A (TDK Corp.), 10 August 2006 (10.08.2006), entire text; all drawings (Family: none)	1-13

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. H01F1/057(2006.01)i, B22F1/00(2006.01)i, B22F3/10(2006.01)i, C22C33/02(2006.01)i,
C22C38/00(2006.01)i, H01F1/08(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. H01F1/057, B22F1/00, B22F3/10, C22C33/02, C22C38/00, H01F1/08, H01F41/02

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 2 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 2 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 2 年

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

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 7-122413 A (日立金属株式会社) 1995.05.12, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-13
A	WO 2010/082492 A1 (日立金属株式会社) 2010.07.22, 全文, 全図 & EP 2388350 A1 & CN 102282279 A	1-13

☒ 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 8 . 0 8 . 2 0 1 2

国際調査報告の発送日

0 4 . 0 9 . 2 0 1 2

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

塩▲崎▼ 義晃

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

5 D

4 4 4 3

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2001-230107 A (信越化学工業株式会社) 2001. 08. 24, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-13
A	JP 2007-294917 A (TDK株式会社) 2007. 11. 08, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-13
A	JP 2006-210450 A (TDK株式会社) 2006. 08. 10, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-13