

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2010-263172

(P2010-263172A)

(43) 公開日 平成22年11月18日(2010.11.18)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
HO 1 F 1/08 (2006.01)	HO 1 F 1/08 A	4 K O 1 8
HO 1 F 1/053 (2006.01)	HO 1 F 1/04 H	5 E O 4 O
HO 1 F 41/02 (2006.01)	HO 1 F 41/02 G	5 E O 6 2
C 2 2 C 33/02 (2006.01)	C 2 2 C 33/02 J	
B 2 2 F 1/02 (2006.01)	C 2 2 C 33/02 K	

審査請求 未請求 請求項の数 13 O L (全 41 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2009-128779 (P2009-128779)	(71) 出願人 000003713 大同特殊鋼株式会社
(22) 出願日 平成21年5月28日 (2009.5.28)	愛知県名古屋市東区東桜一丁目1番10号
(31) 優先権主張番号 特願2008-175675 (P2008-175675)	(74) 代理人 100095669 弁理士 上野 登
(32) 優先日 平成20年7月4日 (2008.7.4)	(72) 発明者 鈴木 俊治 愛知県名古屋市南区大同町二丁目30番地 大同特殊鋼株式会社研究開発本部内
(33) 優先権主張国 日本国 (JP)	(72) 発明者 橘野 早人 愛知県名古屋市南区大同町二丁目30番地 大同特殊鋼株式会社研究開発本部内
(31) 優先権主張番号 特願2009-91688 (P2009-91688)	(72) 発明者 平岡 将宏 愛知県名古屋市南区大同町二丁目30番地 大同特殊鋼株式会社研究開発本部内
(32) 優先日 平成21年4月6日 (2009.4.6)	
(33) 優先権主張国 日本国 (JP)	

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 希土類磁石およびその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 残留磁束密度の低下を抑えつつ、高保磁力を有する希土類磁石を提供すること。均一な磁気特性を有する希土類磁石を簡便に製造可能な製造方法を提供すること。

【解決手段】 本発明の希土類磁石は、少なくとも熱間成形を経て形成された磁石であり、 $R_2 X_{14} B$ 相を主相とする結晶粒と、上記結晶粒の周りを取り囲む粒界相とを有し（但し、 $R : Nd、Pr、Dy、Tb$ および Ho から選択される少なくとも1種、 $X : Fe$ または Fe の一部を Co で置換したもの）、上記結晶粒より上記粒界相に RH 元素（但し、 $RH : Dy、Tb$ および Ho から選択される少なくとも1種）が濃化されており、上記 RH 元素が、磁石表面部から中心部にかけて実質的に一定の濃度分布で存在している。

【選択図】 なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

少なくとも熱間成形を経て形成された希土類磁石であって、

$R_2X_{1.4}B$ 相を主相とする結晶粒と、前記結晶粒の周りを取り囲む粒界相とを有し（但し、 $R: Nd、Pr、Dy、Tb$ および Ho から選択される少なくとも1種、 $X: Fe$ または Fe の一部を Co で置換したもの）、

前記結晶粒より前記粒界相に RH 元素（但し、 $RH: Dy、Tb$ および Ho から選択される少なくとも1種）が濃化されており、

前記 RH 元素が、磁石表面部から中心部にかけて実質的に一定の濃度分布で存在していることを特徴とする希土類磁石。

10

【請求項 2】

前記希土類磁石の磁石表面部から磁石内部の深さ方向における RH 元素の濃度差が10%以内であることを特徴とする請求項1に記載の希土類磁石。

【請求項 3】

前記結晶粒の平均粒径が $1\mu m$ 以下であることを特徴とする請求項1または2に記載の希土類磁石。

【請求項 4】

前記 R は、 Nd および/または Pr を少なくとも含むことを特徴とする請求項1から3のいずれか1項に記載の希土類磁石。

【請求項 5】

前記 RH 元素の含有量は、 $0.01 \sim 10$ 質量%の範囲内にあることを特徴とする請求項1から4のいずれか1項に記載の希土類磁石。

20

【請求項 6】

$R-X-B$ 系合金粉末に RH 金属および/または RH 合金が混合あるいは被覆された原料粉末が、少なくとも熱間成形されて形成されていることを特徴とする請求項1から5のいずれか1項に記載の希土類磁石。

【請求項 7】

前記原料粉末は、 RH 金属および/または RH 合金を $0.01 \sim 10$ 質量%含有することを特徴とする請求項6に記載の希土類磁石。

【請求項 8】

前記 RH 合金は、 $Cu、Al、Ga、Ge、Sn、In、Si、Ag、Au、Pd、Co、Fe、Ni、Cr$ 、および、 Mn から選択される1種または2種以上を含むことを特徴とする請求項6または7に記載の希土類磁石。

30

【請求項 9】

$R-X-B$ 系合金粉末に RH 金属および/または RH 合金が混合あるいは被覆された原料粉末（但し、 $R: Nd、Pr、Dy、Tb$ および Ho から選択される少なくとも1種、 $X: Fe$ または Fe の一部を Co で置換したもの、 $RH: Dy、Tb$ および Ho から選択される少なくとも1種）を準備する工程と、

準備した原料粉末を冷間成形し、冷間成形体を得る工程と、

得られた冷間成形体を熱間成形し、熱間成形体を得る、あるいは、前記得られた熱間成形体をさらに熱間塑性加工し、熱間塑性加工体を得る工程と、を有する希土類磁石の製造方法。

40

【請求項 10】

前記原料粉末は、 RH 金属および/または RH 合金を $0.01 \sim 10$ 質量%含有することを特徴とする請求項9に記載の希土類磁石の製造方法。

【請求項 11】

前記熱間成形体または前記熱間塑性加工体を熱処理する工程を有することを特徴とする請求項9または10に記載の希土類磁石の製造方法。

【請求項 12】

前記熱処理時の温度は、 $500 \sim 900$ の範囲内にあることを特徴とする請求項1

50

1に記載の希土類磁石の製造方法。

【請求項13】

前記RH合金は、Cu、Al、Ga、Ge、Sn、In、Si、Ag、Au、Pd、Co、Fe、Ni、Cr、および、Mnから選択される1種または2種以上を含むことを特徴とする請求項9から12のいずれか1項に記載の希土類磁石の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、希土類磁石およびその製造方法に関するものである。

【背景技術】

【0002】

従来、Nd-Fe-B系等の希土類磁石は、ハードディスクドライブのボイスコイルモータ（VCM）や磁気共鳴診断装置（MRI）等、室温環境下で使用されてきた。そのため、これまでほとんど耐熱性は要求されていなかった。

【0003】

近年、この種の希土類磁石は、一般車のEPSモータやハイブリッド自動車（HEV）等の駆動モータ、FA（ロボットや工作機械）用モータ等への応用が拡大している。このように応用範囲が拡大するにつれ、上記希土類磁石には、比較的高温環境下での使用に耐えうる耐熱性が要求されるようになってきている。この傾向は、特に自動車用途の場合に顕著である。

【0004】

希土類磁石の耐熱性を高めるには、保磁力を増加させることが最も一般的な方法であり、古くからNd-Fe-B系合金の溶解時にDyやTb等を添加する方法がとられてきた。

【0005】

最近では、希土類磁石表面からDy金属を内部に拡散させることによって、保磁力を増加させる試みもなされている。例えば、特許文献1には、Dyのフッ化物、酸化物または塩化物を還元処理することにより、Nd-Fe-B系焼結磁石表面から粒界相にDy金属を拡散浸透させ、磁石表面で高Dy濃度、磁石内部で低Dy濃度となるように粒界改質したNd-Fe-B系焼結磁石およびその製造方法が開示されている。

【0006】

また例えば、特許文献2には、希土類焼結磁石の表面に、スパッタリング法によりDyやTbの金属膜を成膜し、熱処理することにより、Dy等を磁石内部に熱拡散させた希土類焼結磁石およびその製造方法が開示されている。

【0007】

他にも、特許文献3に記載されるように、Nd-Fe-B系合金粉末にDy-Nb合金粉末やDy-V合金粉末等を混合し、焼結することにより焼結磁石を得る方法も公知である。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0008】

【特許文献1】国際公開第WO2006/064848号パンフレット（請求の範囲、図1等）

【特許文献2】特開2004-304038号公報

【特許文献3】特開昭62-206802号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

しかしながら、従来技術は、以下の点で問題があった。すなわち、Nd-Fe-B系合金の溶解時にDyやTb等を添加する方法は、Nd₂Fe₁₄B結晶のNdとDy等とを

10

20

30

40

50

置換させて磁気異方性を増加させる原理を用いることにより、保磁力を増加させている。ところがこの原理によると、Dy等とFe原子とが磁氣的に反平行結合し、残留磁化を低下させてしまうといった欠点があった。

【0010】

また、希土類焼結磁石の表面から粒界相にDy金属を拡散浸透させる特許文献1の技術は、焼結磁石には適用可能である。ところが、ホットプレス等の熱間成形や、熱間押し出し等の熱間塑性加工を経て製造される磁石には、上記技術を適用することが困難である。その理由は以下の通りである。

【0011】

特許文献1の技術によれば、十分にDyを還元させて拡散させるためには、1000前後の高温での熱処理が必要となる。焼結磁石は、そもそも1100程度で焼結されているため、上記熱処理条件では粒成長を生じ難い。それ故、粒径の増加による保磁力低下の問題はほとんど無視できる。一方、熱間成形や熱間塑性加工を経て製造される磁石は、上記熱処理条件では粒成長を生じる。そのため、Dy拡散による保磁力の増加と、粒成長による保磁力の減少とが相殺してしまう。また、結晶粒径が大きくなると、磁区が不安定となって保磁力が低下する。それ故、熱間成形や熱間塑性加工を経て製造される磁石に、特許文献1の技術を適用し、耐熱性を向上させることは困難であった。

10

【0012】

また、希土類焼結磁石の表面にスパッタリング法によりDyやTbの金属膜を成膜し、これを内部に熱拡散させる特許文献2の技術は、金属膜の成膜に高価な装置が必要になる。さらに、少量バッチ生産になるため生産性にも乏しい。

20

【0013】

また、特許文献1および特許文献2の技術は、ともに磁石表面からDy等を磁石内部に拡散させるため、磁石表面部ではDy等の濃度が高く、磁石内部ではDy等の濃度が低くなり、磁石全体の磁気特性が不均一となりやすい。そのため、高い磁気特性を磁石全体にわたって得るには不利である。また、特許文献1および特許文献2以外にも、磁石表面からDyを磁石内部に拡散する方法は多数公開されているが、いずれも磁石表面からの拡散手法に頼っており、程度の違いはあっても磁石表面と内部とのDy濃度差による磁気特性の不均一性は免れない。

【0014】

また、Nd-Fe-B系合金粉末にDy-Nb合金粉末等を混合し、焼結する特許文献3の方法は、焼結温度が約1100程度と高温である。そのため、結晶粒が5~10 μ m程度となり、大きな保磁力を得るには単磁区理論の観点から不利であり基本的に好ましくない。加えて、高温焼結により、Dy元素は主結晶粒内へほとんど拡散してしまうため、保磁力は増加するものの残留磁化の低下が大きくなるといった欠点があった。

30

【0015】

本発明は、上記事情に鑑みてなされたもので、本発明が解決しようとする課題は、残留磁束密度の低下を抑えつつ、高保磁力を有する希土類磁石を提供することにある。また、均一な磁気特性を有する希土類磁石を簡便に製造可能な製造方法を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

40

【0016】

上記課題を解決するため、本発明に係る希土類磁石は、少なくとも熱間成形を経て形成された磁石であって、 $R_2X_{14}B$ 相を主相とする結晶粒と、上記結晶粒の周りを取り囲む粒界相とを有し(但し、R: Nd、Pr、Dy、TbおよびHoから選択される少なくとも1種、X: FeまたはFeの一部をCoで置換したもの)、上記結晶粒より上記粒界相にRH元素(但し、RH: Dy、TbおよびHoから選択される少なくとも1種)が濃化されており、上記RH元素が、磁石表面部から中心部にかけて実質的に一定の濃度分布で存在していることを要旨とする。

【0017】

ここで、上記希土類磁石の磁石表面部から磁石内部の深さ方向におけるRH元素の濃度

50

差は10%以内であることが好ましい。

【0018】

また、上記結晶粒の平均粒径は1 μ m以下であることが好ましい。

【0019】

また、上記Rは、Ndおよび/またはPrを少なくとも含むことが好ましい。

【0020】

また、上記RH元素の含有量は、0.01~10質量%の範囲内にあることが好ましい

。

【0021】

また、上記希土類磁石は、R-X-B系合金粉末にRH金属および/またはRH合金が混合あるいは被覆された原料粉末が、少なくとも熱間成形されて形成されていることが好ましい。

10

【0022】

また、上記原料粉末は、RH金属および/またはRH合金を0.01~10質量%含有していることが好ましい。

【0023】

また、上記RH合金は、Cu、Al、Ga、Ge、Sn、In、Si、Ag、Au、Pd、Co、Fe、Ni、Cr、および、Mnから選択される1種または2種以上を含んでいることが好ましい。

【0024】

本発明に係る希土類磁石の製造方法は、R-X-B系合金粉末にRH金属および/またはRH合金が混合あるいは被覆された原料粉末（但し、R：Nd、Pr、Dy、TbおよびHoから選択される少なくとも1種、X：FeまたはFeの一部をCoで置換したもの、RH：Dy、TbおよびHoから選択される少なくとも1種）を準備する工程と、準備した原料粉末を冷間成形し、冷間成形体を得る工程と、得られた冷間成形体を熱間成形し、熱間成形体を得る、あるいは、上記得られた熱間成形体をさらに熱間塑性加工し、熱間塑性加工体を得る工程とを有することを要旨とする。

20

【0025】

ここで、上記原料粉末は、RH金属および/またはRH合金を0.01~10質量%含有していることが好ましい。

30

【0026】

また、上記製造方法は、上記熱間成形体または上記熱間塑性加工体を熱処理する工程をさらに有していることが好ましい。

【0027】

この場合、上記熱処理時の温度は、500~900の範囲内にあることが好ましい

。

【0028】

また、上記RH合金は、Cu、Al、Ga、Ge、Sn、In、Si、Ag、Au、Pd、Co、Fe、Ni、Cr、および、Mnから選択される1種または2種以上を含んでいることが好ましい。

40

【発明の効果】

【0029】

本発明に係る希土類磁石は、少なくとも熱間成形を経て形成された希土類磁石であって、 $R_2X_{14}B$ 相を主相とする結晶粒と、結晶粒の周りを取り囲む粒界相とを有している（但し、R：Nd、Pr、Dy、TbおよびHoから選択される少なくとも1種、X：FeまたはFeの一部をCoで置換したもの）。そして、上記結晶粒より粒界相に濃化されたRH元素（但し、RH：Dy、TbおよびHoから選択される少なくとも1種）が、磁石表面部から中心部にかけて実質的に一定の濃度分布で存在している。

【0030】

そのため、本発明に係る希土類磁石は、磁石表面部でRH元素濃度が高く、磁石内部で

50

R H元素濃度が低い従来の希土類磁石に比較して、磁石内で均一に残留磁束密度の低下を抑えつつ、高い保磁力を有する。したがって、本発明に係る希土類磁石は、高い耐熱性を発揮することができる。

【0031】

ここで、上記希土類磁石の磁石表面部から磁石内部の深さ方向におけるR H元素の濃度差が10%以内である場合には、磁石内部におけるR H元素の均質性に優れ、保磁力の増大に寄与しやすくなる。

【0032】

また、上記結晶粒の平均粒径が1 μ m以下である場合には、単磁区臨界粒径により近くなるために磁区が安定化しやすく、逆磁区の発生や伝播が起こり難くなる。そのため、保磁力の低下を抑制しやすく、高保磁力化に寄与できる。

10

【0033】

また、上記RがNdおよび/またはPrを少なくとも含む場合には、飽和磁化が相対的に高くなるので、磁力向上に寄与できる。

【0034】

また、上記R H元素の含有量が0.01~10質量%の範囲内にある場合には、残留磁束密度の低下が抑制され、保磁力を効果的に向上させやすくなる。

【0035】

また、本発明に係る希土類磁石が、R-X-B系合金粉末にR H金属および/またはR H合金が混合あるいは被覆された原料粉末が少なくとも熱間成形されて形成されている場合には、磁石内部のR H元素の拡散を均一化させて保磁力を高効率で増加させることができる。

20

【0036】

また、上記R H合金が、Cu、Al、Ga、Ge、Sn、In、Si、Ag、Au、Pd、Co、Fe、Ni、Cr、および、Mnから選択される1種または2種以上を含んでいる場合には、これら副合金元素はR H元素と共晶を形成するので、上記R H合金はR H金属単体に比べ融点が低くなる。そのため、より低温側でR H元素の内部拡散を行うことが可能となり、結晶粒の成長を抑制しやすくなり、高保磁力化に寄与できる。また、熱間成形時に上記R H合金が一部液相化し、磁石成形体の緻密化や塑性加工性の向上にも効果がある。

30

【0037】

本発明に係る希土類磁石の製造方法では、上述した特定の原料粉末を準備し、この原料粉末を冷間成形し、得られた冷間成形体を熱間成形する、あるいは、得られた熱間成形体をさらに熱間塑性加工する。そのため、粒界相にR H元素を高効率で均質に内部拡散させることができる。

【0038】

これは、磁石表面からR H元素を内部に拡散させる従来の方法では、R H元素の拡散距離が磁石の大きさに相当する数~十数mm程度であるのに対し、本発明に係る希土類磁石の製造方法では、R H元素の拡散距離がその1/100~1/1000程度で済み、均一拡散に極めて有利であるためであると考えられる。

40

【0039】

したがって、本発明に係る希土類磁石の製造方法によれば、粒界相に濃化されたR H元素が、磁石表面部から中心部にかけて実質的に一定の濃度分布で存在する希土類磁石を、スパッタ装置等の高価な成膜装置を必要とすることなく、比較的簡便に製造することができる。また、得られた希土類磁石を切断し、複数個の希土類磁石を製造する場合に、同一性能を有する希土類磁石を得やすくなり、量産性にも優れる。

【0040】

ここで、上記原料粉末がR H金属および/またはR H合金を0.01~10質量%含有している場合には、得られる希土類磁石の残留磁束密度の低下が抑制され、保磁力を効果的に向上させやすくなる。

50

【0041】

また、熱間成形体または熱間塑性加工体を熱処理する工程を有する場合には、粒界相にRH元素をより均質に内部拡散させやすくなる。

【0042】

また、上記熱処理時の温度が500～900の範囲内にある場合には、RH元素を十分に粒界相に拡散させるとともに、RH元素の大半を粒界相にとどめて結晶粒内のR元素との置換を抑制し、残留磁束密度の低下を抑制しやすくなる。また、結晶粒の粗大化が抑制され、高保磁力化を図りやすくなる。

【0043】

また、RH合金が、Cu、Al、Ga、Ge、Sn、In、Si、Ag、Au、Pd、Co、Fe、Ni、Cr、および、Mnから選択される1種または2種以上を含んでいる場合には、ほとんどの元素がRH元素と共晶を形成するので、上記RH合金はRH金属に比べ融点が低くなる。そのため、より低温側でRH元素の内部拡散を行うことが可能となり、結晶粒の成長を抑制しやすくなり、得られる希土類磁石の高保磁力化を図りやすくなる。また、熱間成形時に上記RH合金が一部液相化し、磁石成形体の緻密化や塑性加工性の向上にも効果がある。

【図面の簡単な説明】

【0044】

【図1】実験1にて準備した希土類合金粉末Aの走査型電子顕微鏡(SEM)写真である。

【図2】実験1にて準備した希土類合金粉末AのX線回折パターンである。

【図3】実施例5の試料の、走査型電子顕微鏡(SEM)による結晶組織写真である。

【図4】実施例5の試料の、透過型電子顕微鏡(TEM)による結晶組織写真である。

【発明を実施するための形態】

【0045】

以下、本発明の一実施形態に係る希土類磁石(以下、「本磁石」ということがある。)およびその製造方法(以下、「本製造方法」ということがある。)について詳細に説明する。

【0046】

1. 本磁石

本磁石は、少なくとも熱間成形を経て形成された磁石である。したがって、この点で、いわゆる焼結磁石とは異なる磁石である。

【0047】

本磁石は、 $R_2X_{14}B$ 相を主相とする結晶粒と、粒界相とを有している。上記結晶粒は、基本的に板状結晶であり、その周囲を上記粒界相が取り囲んでいる。

【0048】

本磁石において、上記Rは、Nd、Pr、Dy、TbおよびHoから選択される少なくとも1種の元素である。上記Rは、好ましくは、Nd、Pr、あるいは、Ndおよび/またはPrを含む組み合わせ等、Ndおよび/またはPrを少なくとも含んでいると良い。上記Rは、より好ましくは、Ndおよび/またはPrを主体として含んでいると良い。希土類元素の中で比較的資源的に豊富でかつ廉価である、飽和磁化が相対的に高くなるので、磁力向上に寄与しやすい等の利点があるからである。上記Rは、さらに好ましくは、Prを主体として含んでいると良い。RがPrを主体とする場合、RがNdを主体とする場合に比較して、 $R_2X_{14}B$ 化合物の異方性磁界が大きくなるので、高保磁力化に有利である等の利点があるからである。また、RがPrを主体とする場合、RがNdを主体とする場合に比較して、 $R_2X_{14}B$ 化合物が低融点となるため、熱間塑性加工性が向上し、結晶配向性も向上しやすくなる等の利点があるからである。

【0049】

上記Rは、具体的には、R全体の合計質量%に占めるNdおよび/またはPrの質量%の割合が、好ましくは、50%以上、より好ましくは、60%以上、さらに好ましくは、

70%以上、最も好ましくは、80%以上であると良い。

【0050】

一方、上記Xは、FeまたはFeの一部をCoで置換したものである。上記Xは、磁気特性、特に、飽和磁束密度が大きい、廉価である等の観点から、好ましくは、Feであると良い。

【0051】

上記 $R_2X_{1.4}B$ 相としては、具体的には、例えば、 $Nd_2Fe_{1.4}B$ 相、 $Pr_2Fe_{1.4}B$ 相、 $(Nd, Pr)_2Fe_{1.4}B$ 相や、これらにDy元素が拡散して一部置換した $(Nd, Dy)_2Fe_{1.4}B$ 相、 $(Pr, Dy)_2Fe_{1.4}B$ 相、 $(Nd, Pr, Dy)_2Fe_{1.4}B$ 相などを例示することができる。

10

【0052】

ここで、本磁石は、主結晶粒内よりも粒界相にRH元素が濃化されている。上記RH元素は、Dy、TbおよびHoから選択される少なくとも1種である。好ましくは、保磁力向上効果とコストとのバランスに優れる等の観点から、上記RH元素は、Dy、Tb、あるいは、Dyおよび/またはTbを含む組み合わせ等、Dyおよび/またはTbを少なくとも含んでいると良い。上記RH元素は、より好ましくは、Dyおよび/またはTbを主体として含んでいると良い。

【0053】

また、本磁石は、上記RH元素が、磁石表面部から磁石中心部にかけて実質的に一定の濃度分布で存在している。ここで、「実質的に一定」とは、希土類磁石の磁石表面部、磁石中心部、および、両者の中間部のRH元素の濃度が同じ、または、測定誤差等による許容範囲内にあるという意味である。つまり、本磁石は、磁石表面部から磁石内部の深さ方向にRH元素がほぼ等濃度で存在している。したがって、磁石表面部でRH元素濃度が高く、かつ、磁石内部でRH元素濃度が低い従来の傾斜焼結磁石（例えば、特開2006-303436号公報、特開2006-179963号公報に記載された磁石）とは、この点で大きく相違している。

20

【0054】

本磁石は、磁石内部におけるRH元素の均質性に優れ、保磁力の増大に寄与しやすい等の観点から、磁石表面部から磁石内部の深さ方向におけるRH元素の濃度差が、好ましくは、10%以内であると良い。ここで、磁石表面部から磁石内部の深さ方向におけるRH元素の濃度差とは、希土類磁石の磁石表面部、磁石中心部、および、両者の中間部の各RH元素濃度を測定し、(最大濃度 - 最小濃度)を最大濃度で除して、その除した値に100を乗じた値((最大濃度 - 最小濃度) / 最大濃度 × 100)をいう。上記RH元素の濃度差は、より好ましくは、8%以内、さらに好ましくは、5%以内、さらにより好ましくは、3%以内、最も好ましくは、2%以内であると良い。

30

【0055】

本磁石は、残留磁束密度の低下が抑制され、保磁力を効果的に向上させやすくなる等の観点から、上記RH元素の含有量が、好ましくは、0.01~10質量%、より好ましくは、0.02~6質量%、さらに好ましくは、0.05~3質量%の範囲内であると良い。

40

【0056】

上記RH元素の濃度分布は、磁石表面部から磁石内部の深さ方向にわたって、結晶組織のEDX分析を行うことにより測定評価することができる。また、上記RH元素の含有量は、ICP発光分光分析または蛍光X線分析により測定評価することができる。

【0057】

なお、本磁石は、R-X-B系合金粉末にRH金属および/またはRH合金が混合あるいは被覆された原料粉末を用い、少なくとも熱間成形を経ることで好適に形成することができる。ここで言うRH金属とは、金属から蒸発して生じる蒸気状のものや金属粉末が含まれる。同じように、RH合金とは、合金から蒸発して生じる蒸気状のものや合金粉末が含まれる。この点は、「2.本製造方法」の項にて後述する。

50

【0058】

本磁石は、保磁力の低下を抑制しやすく、高保磁力化に寄与できる等の観点から、結晶粒の平均粒径の上限が、好ましくは、 $1\ \mu\text{m}$ 以下、より好ましくは、 $0.5\ \mu\text{m}$ 以下であると良い。なお、平均粒径の下限は特に限定されるものではない。例えば、 $20\ \text{nm}$ 程度の微細な結晶粒とアモルファス相との混在状態であって、急冷法によって製作された原料合金粉末を熱間成形した時点で、アモルファス相の結晶化と微細な結晶粒の成長を生じ、 $30\sim 50\ \text{nm}$ 程度の結晶粒径となる。アモルファス相は保磁力を発現しないが、 $30\sim 50\ \text{nm}$ の粒径になると十分な保磁力が得られる。

【0059】

上記結晶粒の平均粒径は、本磁石を切断研磨してSEM観察を行い、 $\text{R}_2\text{X}_{14}\text{B}$ 結晶のC面を撮影した画像（倍率：1万倍）に数本の直線を引き、総数50個の結晶粒について測定された長さの平均値のことである。

10

【0060】

本磁石の形態は、特に限定されるものではなく、その用途に応じて、円筒状、円柱状、円板状、板状、棒状、蒲鉾状、瓦状などの各種形態を適宜選択することができる。

【0061】

本磁石の用途としては、室温よりも高温で動作するモータ、あるいは、高速高出力で回転することにより発熱が大きなモータ、例えば、車載用のEPSモータや駆動モータ、工作機械やロボットなどにおける高出力モータ、その他にエアコン室外機用モータ、エレベータ駆動用モータなどを好適な用途として例示することができる。

20

【0062】

2. 本製造方法

本製造方法は、本磁石を好適に製造することが可能な製法である。本製造方法は、基本的に以下の工程(1)～(3)を有している。

【0063】

・工程(1)

工程(1)は、 $\text{R}-\text{X}-\text{B}$ 系合金粉末にRH金属および/またはRH合金が混合あるいは被覆された原料粉末（但し、 $\text{R}:\text{Nd}$ 、 Pr 、 Dy 、 Tb および Ho から選択される少なくとも1種、 $\text{X}:\text{Fe}$ または Fe の一部を Co で置換したもの、 $\text{RH}:\text{Dy}$ 、 Tb および Ho から選択される少なくとも1種）を準備する工程である。なお、 R 、 X 、 RH の好適な選択については、上述した通りである。

30

【0064】

ここで、上記 $\text{R}-\text{X}-\text{B}$ 系合金において、 R 含有量は、磁気特性の評価指標となる保磁力および残留磁束密度の双方を高く維持する等の観点から、好ましくは、 $27\sim 33$ 質量%、より好ましくは、 $28\sim 32$ 質量%、さらに好ましくは、 $28.5\sim 31$ 質量%の範囲内にあると良い。

【0065】

また、 X は、 Fe 単独またはその一部を Co で置換したものである。 Co 置換により、 $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 化合物のキュリー温度が上昇し、耐食性が向上する効果があるが、一方、過剰になると残留磁束密度等が低下する。そのため、上記 $\text{R}-\text{X}-\text{B}$ 系合金において、 Co 含有量は、好ましくは、6質量%以下、より好ましくは、3質量%以下の範囲内にあると良い。

40

【0066】

また、上記 $\text{R}-\text{X}-\text{B}$ 系合金において、 B 含有量は、残留磁束密度の低下を来さずに $\text{R}_2\text{X}_{14}\text{B}$ 化合物を生成させやすくなる等の観点から、好ましくは、 $0.8\sim 1.2$ 質量%、より好ましくは、 $0.9\sim 1.1$ 質量%の範囲内にあると良い。

【0067】

また、上記 $\text{R}-\text{X}-\text{B}$ 系合金は、上記元素に加え、 Al 、 Si 、 Ti 、 V 、 Cr 、 Mn 、 Ni 、 Cu 、 Zn 、 Zr 、 Nb 、 Mo 、 In 、 Ga 、 Sn 、 Hf 、 Ta 、 W 等の元素を1種または2種以上含んでいても良い。これらの元素が粒界相に適量介在する場合には、

50

結晶粒の均一化や保磁力の向上に寄与しやすくなるからである。

【0068】

これら元素の含有量は、残留磁束密度の低下を抑制しつつ、上記効果を得る等の観点から、好ましくは、3.0質量%以下、より好ましくは、1.5質量%以下であると良い。

【0069】

一方、上記RH合金は、好ましくは、Cu、Al、Ga、Ge、Sn、In、Si、Ag、Au、Pd、Co、Fe、Ni、Cr、および、Mnから選択される1種または2種以上の元素を副合金元素として含んでいると良い。これら副合金元素を含んでいる場合には、次のような利点がある。すなわち、上記の副合金元素は、RH元素と共晶を形成するので、これら副合金元素を含むRH合金は、RH金属単体に比べ融点が低くなる。例えば、Dy金属単体の融点は、約1412 であるが、85%Dy - 15%Cu(質量%)合金の共晶融点は、約790 になり、この融点降下がDy等のRH元素の拡散処理を低温で行うのに有益である。そのため、より低温側でRH元素の内部拡散を行うことが可能となり、結晶粒の成長を抑制しやすくなり、高保磁力化に寄与できる。また、熱間成形時に上記RH合金が一部液相化し、磁石成形体の緻密化や塑性加工性の向上にも効果がある。また、RH金属単体では粉碎性に乏しく数十 μm 径の粉末を得るのは難易度が高いが、上記副合金元素と共晶を形成することで、R-X-B合金粉末に混合する際等に必要な、RH合金の微粉碎も容易になる。

10

【0070】

上記RH合金が、Cu、Al、Ga、Ge、Sn、In、Si、Ag、Au、および、Pdから選択される1種または2種以上の元素を副合金元素として含んでいる場合には、これら副合金元素を含まないRH合金に比べ、各単体金属の融点が相対的に低いため、共晶化温度を低くしやすくなる等の利点がある。より好ましくは、低融点化と素材コスト等の観点から、上記RH合金は、Cu、Al、Ga、Ge、および、Snから選択される1種または2種以上の元素を副合金元素として含んでいると良い。さらに好ましくは、上記と同様の観点から、Cu、Al、あるいは、Cuおよび/またはAlを含む組み合わせ等、Cuおよび/またはAlを少なくとも含んでいると良い。

20

【0071】

また、上記RH合金が、Co、Fe、Ni、Cr、および、Mnから選択される1種または2種以上の元素を副合金元素として含んでいる場合には、とりわけ、磁石成形体の塑性加工時にひびが入り難く延伸しやすい、磁気特性に優れる等の利点がある。より好ましくは、融点降下が大きく、RH元素の拡散促進に有利であり、結晶粒内に一部置換しても磁氣的な悪影響を及ぼし難い等の観点から、Co、Fe、あるいは、Coおよび/またはFeを含む組み合わせ等、Coおよび/またはFeを少なくとも含んでいると良い。

30

【0072】

上記原料粉末は、具体的に、例えば、次のようにして準備することができる。なお、上記原料粉末は、自ら製造しても良いし、他から供給を受けても良い。以下、原料粉末を製造する場合について説明する。

【0073】

まず、R-X-B系合金粉末を準備する。R-X-B系合金粉末の製法としては、例えば、Nd-Fe-B系合金、Pr-Fe-Co-B系合金、Pr-Fe-B系合金、Pr-Nd-Fe-Co-B系合金等、所定の成分組成を有するR-X-B系合金を、合金組成に応じた温度で溶解した後、その溶湯をオリフィスから抜熱性の高い回転ロール(銅製回転ロール等)に射出して超急冷(例えば、回転ロール周速度:10m/秒~30m/秒で冷却)する。これにより、長さが数十mmで厚さが約20~50 μm 程度であり、内部が約10~20nm程度の微結晶粒と一部がアモルファスから構成されている、薄片状粉末が得られる。そして、この薄片状粉末を、衝撃式気流粉碎機などを用いて粉碎し、必要に応じて、長辺が約300 μm 以下となるように篩い分けを行うなどすれば、R-X-B系合金粉末を得ることができる。このようにして製造されるR-X-B系合金粉末(超急冷粉末)は、磁氣的に等方性の粉末である。

40

50

【 0 0 7 4 】

また、R - X - B系合金粉末の他の製法としては、上記所定の成分組成を有するR - X - B系合金を溶解鑄造して得たインゴットに、800前後の高温で水素を吸蔵させて放出させることにより、R - X - B系合金粉末を得る方法等が挙げられる。この方法によれば、インゴットに高温で水素を吸蔵させて放出させることで、インゴットは数百 μm 程度に粉碎されるとともに数百 nm の大きさの微細な再結晶粒が方位をそろえて析出した結晶組織をもつ粉末が得られる。このようにして製造されるR - X - B系合金粉末（いわゆる、HDDR粉末）は、磁氣的に異方性を有する粉末である。

【 0 0 7 5 】

次に、RH金属および/またはRH合金を準備する。これらの粉末を製造する方法としては、例えば、上述の超急冷法、アトマイズ法、鑄造法、ガス中蒸発法等を例示することができる。例えば、上記アトマイズ法では、RH金属溶湯、RH合金溶湯を、ガスまたは水中にアトマイズしたり、回転ディスク上にアトマイズしたりすることで、数十～百数十 μm 程度の大きさの粉末を製造することができる。また、ガス中蒸発法によれば生産性は優れないが大きさが数十 nm の微細な粉末を製造することができる。また、一般的な金型を用いた鑄造法やストリップキャストによる鑄造法によって得られるRH金属、RH合金を、各種の湿式または乾式粉碎することにより、数十 nm の微細な粉末を製造する等しても良い。

10

【 0 0 7 6 】

次に、上記R - X - B系合金粉末とRH金属粉末および/またはRH合金粉末とを混合し、原料粉末とする。

20

【 0 0 7 7 】

上記混合方法は、乾式、湿式の何れで行っても構わない。具体的な混合方法としては、例えば、大気中や、窒素またはアルゴン等の不活性ガス雰囲気中にて、ロッキングミキサーなどを用いて乾式混合したり、あるいは、ヘキサンなどの有機溶媒中で湿式混合したりする方法などを例示することができる。

【 0 0 7 8 】

なお、上記混合によって各粉末がより細かく粉碎されても後の冷間成形にそれほど影響はなく、RH金属粉末、RH合金粉末は、10～100 μm 程度であれば、後の熱拡散にはかえって好都合である。もっとも、RH金属粉末、RH合金粉末が1 μm 程度となるような過度の粉碎は、酸化抑制、燃焼抑制等の観点から控えることが好ましい。

30

【 0 0 7 9 】

また、上述した混合以外にも、上記R - X - B系合金粉末にRH金属および/またはRH合金を被覆し、原料粉末としても良い。

【 0 0 8 0 】

上記被覆方法としては、例えば、R - X - B系合金粉末とRH金属片、RH合金片を、高真空中で回転させながら800～900で加熱処理することにより、RH金属、RH合金が被覆されたR - X - B系合金粉末を得ることが可能である。この被覆粉末を用いると次の混合する工程を省略でき、熱間成形や熱処理において、混合法よりもRH元素の拡散がより均一に行える利点がある。また、上記RH金属粉末、RH合金粉末を含有水分の少ない有機溶媒に分散させ、これを上記R - X - B系合金粉末の表面に吹き付ける方法等を例示することができる。また、蒸着やCVD等の手法を用いて、R - X - B系合金粉末にRH金属、RH合金を被覆しても良い。

40

【 0 0 8 1 】

上記原料粉末において、原料粉末中に占めるRH金属および/またはRH合金の割合は、残留磁束密度の低下を抑制し、保磁力を効果的に向上させやすい等の観点から、好ましくは、0.01～10質量%、より好ましくは、0.02～6質量%、さらに好ましくは、0.05～3質量%の範囲内にあると良い。

【 0 0 8 2 】

・工程(2)

50

工程(2)は、準備した原料粉末を冷間成形し、冷間成形体を得る工程である。

【0083】

具体的には、上記原料粉末を冷間プレス機の金型に充填し、筒状、柱状、板状などの各種の形状を有する冷間成形体を成形する。

【0084】

この工程では、基本的には、原料粉末を固化できれば良い。冷間成形体の真密度は、取扱い時の強度、プレス圧力や金型寿命等の観点から、好ましくは、40～70%、より好ましくは、50～70%の範囲内にあると良い。

【0085】

冷間成形時の圧縮成形圧力としては、例えば、2～4 ton/cm²程度、圧力保持時間としては、1秒～10秒間程度を例示することができる。

10

【0086】

ここで、磁氣的に等方性を有するR-X-B系合金粉末を含んだ原料粉末を用いる場合には、基本的に上述の手順で冷間成形体を成形すれば良い。

【0087】

一方、磁氣的に異方性を有するR-X-B系合金粉末(HDDR粉末)を含んだ原料粉末を用いる場合には、上記冷間成形時に、さらに、直流磁場またはパルス磁場等による磁場を印加し、R-X-B系合金粉末を金型内で配向させ、磁氣的に異方性の冷間成形体を成形すると良い。このようにした場合には、磁氣的異方性を付与するために、後述の熱間塑性加工を行う必要がなくなり、工程簡略化等による生産性の向上に寄与できる等の利点がある。

20

【0088】

・工程(3)

工程(3)は、得られた冷間成形体を熱間成形し、熱間成形体を得る、あるいは、得られた熱間成形体をさらに熱間塑性加工し、熱間塑性加工体を得る工程である。

【0089】

上述したように、磁氣的に等方性を有するR-X-B系合金粉末を含んだ原料粉末を用いている場合には、工程(2)で得た冷間成形体を熱間成形し、得られた熱間成形体を熱間塑性加工し、熱間塑性加工体(希土類磁石)を得ることになる。また、磁氣的に異方性を有するR-X-B系合金粉末(HDDR粉末)を含んだ原料粉末を用いている場合には、工程(2)で得た冷間成形体を熱間成形し、熱間成形体(希土類磁石)を得ることになる。

30

【0090】

上記熱間成形としては、ホットプレスを好適に適用することができる。また、加熱と加圧とさらに高電流を印加して緻密化を促進するSPS(スパーク・プラズマ・シンタリング)なども適用することが可能である。なお、上記熱間成形および熱間塑性加工は、別々のプレス機等の装置を用いて別々に行っても良いし、1つのプレス機等の装置を用いて両工程を連続的に行っても良い。

【0091】

上記ホットプレスでは、例えば、アルゴン等の不活性ガス雰囲気中、真空中、あるいは大気中にて、加熱した金型内で、冷間成形体を加圧緻密化させれば良い。

40

【0092】

この際、上記加熱温度は、緻密化と粒成長の抑制効果とのバランス、RH元素の拡散性等の観点から、好ましくは、500～900、より好ましくは、700～900の範囲内にあると良い。

【0093】

また、熱間成形時の圧縮成形圧力としては、例えば、2～4 ton/cm²程度、圧力保持時間としては、5秒～30秒間程度を例示することができる。

【0094】

熱間成形後の熱間成形体の密度は、熱間成形体が等方性である場合は次工程の熱間塑性

50

加工におけるひびや亀裂防止のため、熱間成形体が異方性である場合は高密度化による残留磁束密度向上等の観点から、好ましくは、理論密度の97～100%、より好ましくは98～100%、さらに好ましくは99.5～100%の範囲内にあると良い。

【0095】

また、上記熱間塑性加工としては、具体的には、例えば、熱間押し出し、熱間引き抜き、熱間鍛造、熱間圧延などを例示することができる。これらは1または2以上組み合わせを行っても良い。筒状や板状に加工する場合には、結晶粒の配向特性や材料歩留まり等の観点から、押し出し法を好適に用いることができる。

【0096】

上記熱間塑性加工では、例えば、アルゴン等の不活性ガス雰囲気中、真空中、あるいは大気中にて、加熱により熱間成形体を塑性変形させる。これにより、応力を印加した方向に $R_2X_{14}B$ 結晶のC軸が配向し、異方性磁石とすることができる。

【0097】

この際、上記加熱温度は、粒成長の抑制効果と塑性変形性とのバランス、RH元素の拡散性等の観点から、その下限温度が、好ましくは、500以上、より好ましくは、700以上、さらに好ましくは、750以上であると良い。一方、上記加熱温度の上限温度は、好ましくは、900以下、より好ましくは、850以下であると良い。

【0098】

本製造方法は、基本的には、上述した工程(1)～(3)を有している。本製造方法は、さらに、以下の工程(4)を有していても良い。工程(4)を有している場合には、RH元素の拡散進行による保磁力の向上を図りやすくなる。

【0099】

・工程(4)

工程(4)は、熱間成形体または熱間塑性加工体を熱処理する工程である。

【0100】

先の熱間成形や熱間塑性加工において、混合したRH元素は粒界相に優先的に拡散するが、熱間成形時間や熱間塑性加工時間は、比較的短いことが多い。そのため、熱間成形体または熱間塑性加工体に熱処理を行えば、RH元素の粒界相への拡散を促進させることができる。また、熱処理後の希土類磁石を切断加工して複数個の磁石を得る場合には、同一性能を有する磁石を得やすくなる等の利点もある。

【0101】

なお、熱間成形後に熱間塑性加工を行う場合には、熱間塑性加工体に対して、熱処理を行えば良い。

【0102】

ここで、上記熱処理温度は、好ましくは、500～900、より好ましくは、700～900、さらに好ましくは、750～900の範囲内にあると良い。また、熱処理時間は、上記熱処理温度に応じて適宜調整可能であり、好ましくは、10分～12時間、より好ましくは、30分～6時間、さらに好ましくは、30分～3時間の範囲内にあると良い。

【0103】

上記熱処理温度、熱処理時間の範囲内であれば、RH元素を十分に粒界相に拡散させるとともに、RH元素の大半を粒界相にとどめて結晶粒内のR元素との置換を抑制し、残留磁束密度の低下を抑制しやすくなるし、また、結晶粒の粗大化が抑制され、高保磁力化を図りやすくなるからである。

【0104】

上記熱処理は、保磁力の低下を抑制する観点から、結晶粒の平均粒径が1 μ m以下となるように、温度と時間を調整するのが好ましい。

【0105】

また、上記熱処理は、熱処理温度を高めにして熱処理時間を短時間とすることが生産性向上の観点から望ましい。そのため、熱処理温度が800～900の場合には、熱処理

10

20

30

40

50

時間は、10分～2時間、熱処理温度が500～700の場合には、熱処理時間は、3時間～12時間とすると良い。

【0106】

なお、上記熱処理は、アルゴン等の不活性ガス雰囲気中や真空中等で行うことが酸化抑制の観点から望ましい。

【実施例】

【0107】

以下、本発明を実施例を用いてより具体的に説明する。

【0108】

1. 実験1

10

(原料粉末の準備)

質量%で、30%Nd - 2%Co - 1%B - bal. Feの成分組成を有する希土類合金を、1350で溶解した後、その溶湯をオリフィスからCrめっきを施したCu製の回転ロールに射出(回転ロール周速度: 20m/秒)し、急冷合金薄片を作製した。この急冷合金薄片をカッターミルで粉碎して篩分けし、最大粒径が350 μ m以下の希土類合金粉末を作製した(以下、「希土類合金粉末A」ということがある。)。この希土類合金粉末Aの破面を、走査型電子顕微鏡(SEM)を用いて倍率2万倍で観察した結果、図1に示すように、大きさが約0.1 μ m程度の微細な結晶粒からなっていることが分かった。また、CoのK線源を用いたX線回折の結果、これらの結晶粒は、図2に示すように、Nd₂(Fe、Co)₁₄B化合物であることが明らかになった。

20

【0109】

さらに、Dy金属を高周波溶解し、遠心噴霧法によるアトマイズを行うことにより、粒度分布が30～100 μ mの範囲のDy金属粉末を作製した。また、Dy金属粉末の作製と同様の手順により、質量%で、85%Dy - 15%Cuの成分組成を有する85Dy - 15Cu合金粉末を作製した(以下、成分組成の説明を省略する場合があるが、「aX - bY - cZ・・・」との記載は、Xをa質量%、Yをb質量%、Zをc質量%、・・・含むという意味である。)。

【0110】

後述の表1に示すように、希土類合金粉末Aに0.3～1.1質量%のDy金属粉末または85Dy - 15Cu合金粉末を加え、大気中でコーヒーマルを用いて混合した。これにより、実施例1～6に係る希土類磁石の作製に用いる各原料粉末を準備した。

30

【0111】

一方、希土類合金粉末Aの作製と同様の手順により、質量%で、29%Nd - 1%Dy - 2%Co - 1%B - bal. Feの成分組成を有する希土類合金粉末(急冷合金の溶解時に予めDyを添加したもの)を準備した(以下、「希土類合金粉末B」ということがある。)。

【0112】

なお、比較例1に係る希土類磁石の作製には、希土類合金粉末Aをそのまま用いる。比較例2に係る希土類磁石の作製には、希土類合金粉末Bをそのまま用いる。

【0113】

40

(冷間成形)

各原料粉末または希土類合金粉末Aもしくは希土類合金粉末B55gを、冷間プレス機の金型に装填して3ton/cm²の圧力を加えて成形し、円筒形状の冷間成形体(外径23mm、内径14mm、高さ30mm)を作製した。

【0114】

(熱間成形)

冷間成形体をホットプレス機の金型にセットし、アルゴン雰囲気中で金型を800に加熱し、3ton/cm²の圧力を約15秒間かけて成形し、高さ約20mmの緻密化した円筒状の熱間成形体を作製した。

【0115】

50

(熱間塑性加工)

熱間成形体を後方押し出し装置の金型にセットし、大気中で金型を850 に加熱して後方押し出しを行い、内径および高さが変形した熱間塑性加工体(外径23mm、内径18mm、高さ40mm)を製作し、押しきれなかった底部分は切り落とした。これにより、ラジアル方向に磁気異方性をもつ円筒状の希土類磁石を作製した。

【0116】

(希土類磁石の微細構造)

実施例1~6に係る希土類磁石からそれぞれ試験片を切り出し、各試験片を樹脂に埋め込んで、研磨、エッチングした後、走査型電子顕微鏡(SEM)により観察した。実施例5の試料によれば、図3に示すように、写真の上下方向にNd₂(Fe、Co)₁₄B結晶のC軸が揃った、多数の板状結晶粒が観察された。その結晶の大きさは、厚さが0.05~0.1μm、長さが0.2~0.6μmであった。さらに、透過型電子顕微鏡(TEM)を用いて微細組織を観察した結果、図4に示すように、主結晶粒の周りを厚さが数~10nm程度の粒界相が取り囲んでいることが確認された(図中、白線目盛りの大きさは50nmである。)

10

【0117】

また、各組織画像を撮影し、結晶粒径を求めた。この際、結晶粒径の算出は、希土類磁石のC面を撮影した画像(倍率:1万倍)に数本の直線を引き、総数50個の結晶粒の長さを測定し、これら長さの平均値を求めることにより行った。

【0118】

また、SEMに付属しているEDX分析装置を用いて、結晶粒と粒界相の希土類元素濃度を調べた結果、比較例1に係る磁石は、Nd₂Fe₁₄B相を主相とする結晶粒を有し、粒界相はNdに富んでいることが確認された。また、実施例1に係る磁石は、Nd₂Fe₁₄B相を主相とする結晶粒を有し、結晶粒よりも粒界相の方がDyに富んでいることが確認された。

20

【0119】

さらに、実施例1に係る希土類磁石(Dy金属粉末が1質量%入り)については、磁石表面部、磁石中心部、および両者の中間部(領域10μm×10μm)のEDX分析を実施し、各部位ごとにDy元素濃度を測定した。なお、磁石表面部については、円筒状磁石の最外側の磁石表面から10μmの深さの部位を測定した。また、磁石中心部については、円筒状磁石の内径の直径と外径の直径の平均となる部位を測定した。また、磁石中間部については、磁石表面部と磁石中心部との中間の部位を測定した。その結果、Dy元素濃度は、磁石表面部で0.94%、磁石中間部で0.92%、磁石中心部で0.93%であった。つまり、磁石表面部から磁石内部の深さ方向におけるRH元素の濃度差は、2.1%であった。このことから、従来の傾斜焼結磁石(特開2006-303436号の表1における表面から距離10μmと500μmを参照)に比べ、本発明に係る希土類磁石は、磁石全体におけるDy元素濃度の均一性が極めて良いことが分かった。

30

【0120】

このことから、Dy元素が粒界相に濃化されており、かつ、磁石表面部から中心部にかけてDy元素がほぼ一定の濃度分布で存在していることが確認された。つまり、本発明によれば、磁石表面からDy元素を拡散浸透させる方法(例えば、特開2006-303436号公報に記載の傾斜機能磁石)に対して、磁石内部のDy濃度が明らかに均質(各部位の濃度差が10%以内程度)であることが明らかになった。なお、この実施例1のDy濃度分布結果から、他の実施例についても、粒界相にDy元素が同様に分布していることが容易に類推可能である。

40

【0121】

(磁気特性の測定)

上記作製した各円筒状の希土類磁石を、高さ方向4mmに切断し、さらに円周16分割に切断した円弧状磁石片(縦4×横4×高さ2.5mm)を、振動試料型磁力計(VSM)を用いて磁気測定し、反磁界補正をして保磁力(Hcj)および残留磁束密度(Br)

50

を求めた。

【 0 1 2 2 】

実験 1 の各種条件、結果をまとめて表 1 に示す。

【 0 1 2 3 】

【表 1】

	原料粉末		結晶粒径 (nm)	Hcj [保磁力] (kA/m)	Br [残留磁束密度] (T)		
	R-X-B系合金粉末 組成(質量%)	RH金属又はRH合金 組成(質量%) 混合量(質量%)					
実施例1	A	30Nd-2Co-1B-bal.Fe	Dy	0.3	265	1620	1.42
実施例2	A	30Nd-2Co-1B-bal.Fe	Dy	0.6	274	1690	1.41
実施例3	A	30Nd-2Co-1B-bal.Fe	Dy	1	249	1750	1.39
実施例4	A	30Nd-2Co-1B-bal.Fe	85Dy-15Cu	0.3	287	1710	1.43
実施例5	A	30Nd-2Co-1B-bal.Fe	85Dy-15Cu	0.7	297	1800	1.41
実施例6	A	30Nd-2Co-1B-bal.Fe	85Dy-15Cu	1.1	316	1870	1.39
比較例1	A	30Nd-2Co-1B-bal.Fe	-	-	237	1460	1.44
比較例2	B	29Nd-1Dy-2Co-1B-bal.Fe	-	-	256	1690	1.35

10

20

30

40

【 0 1 2 4 】

表 1 によれば主に以下のことが分かる。すなわち、比較例 1 に係る希土類磁石は、他に比較して保磁力 H c j が小さい。これは、希土類合金粉末 A に D y 金属粉末または 8 5 D y - 1 5 C u 合金粉末を混合することなく、希土類合金粉末 A を単独で用いて磁石を作製したためである。

【 0 1 2 5 】

50

比較例 2 に係る希土類磁石は、保磁力 $H_c j$ が増加するが、残留磁束密度 B_r の低下が大きい。これは、急冷合金の溶解時に Dy を添加したことで、保磁力 $H_c j$ を増加させることができたが、 Dy と Fe 原子とが磁氣的に反平行結合したことで、残留磁化が低下したためであると考えられる。

【0126】

これらに対し、実施例 1 ~ 3 に係る希土類磁石は、比較例 1 に係る希土類磁石に対して、残留磁束密度 B_r の低下が小さく、保磁力 $H_c j$ の増加が大きいことが分かる。これは、上記原料粉末を用いた冷間成形、熱間成形、熱間塑性加工を経ることで、磁石内部の Dy 元素の粒界相への拡散が均一化され、保磁力 $H_c j$ を高効率で増加させることができたためであると考えられる。

10

【0127】

また、実施例 4 ~ 6 に係る希土類磁石は、実施例 1 ~ 3 に係る希土類磁石に比べ、保磁力 $H_c j$ の増加が大きい。これは、熱間成形時に、融点 1142 の Dy 金属を用いるよりも、融点 790 の $Dy - Cu$ 合金を用いた方が、粒界相に Dy が拡散浸透しやすかったためであると考えられる。

【0128】

また、実施例 1 ~ 6 に係る希土類磁石によれば、希土類合金粉末に混合する Dy 金属または $Dy - Cu$ 合金の混合量が増加する (Dy 含有量が増加する) につれて、保磁力 $H_c j$ が増加することが分かる。

【0129】

20

2. 実験 2

(熱処理)

実験 1 で作製した実施例 1 および 4 に係る希土類磁石 (実施例 1 : Dy 金属粉末の混合量 0.3 質量%、実施例 4 : 85 $Dy - 15 Cu$ 合金粉末の混合量 0.3 質量%) につき、円弧状磁石片を真空熱処理炉に装填し、 Ar 雰囲気中、500 ~ 1000 で 30 分間の熱処理を実施した。そして、実験 1 と同様にして、結晶粒径、磁気特性を測定した。なお、熱処理後の実施例 15 について、実施例 5 と同様に、走査型電子顕微鏡 (SEM) にて観察した結果、多数の板状結晶粒とその周りを取り囲む粒界相とからなる微細組織が観察された。また、透過型電子顕微鏡 (TEM) で観察した結果、実施例 15 は、熱処理を実施していない実施例 5 よりも粒界相に Dy 元素の拡散が促進されている様子が確認された。

30

【0130】

実験 2 の各種条件、結果をまとめて表 2 に示す。

【0131】

【表 2】

	原料粉末		熱処理条件	結晶粒径 (nm)	H _{cj} [保磁力] (kA/m)	Br [残留磁束密度] (T)		
	R-X-B系合金粉末 組成(質量%)	RH金属又はRH合金						
		組成(質量%)					混合量(質量%)	
実施例7	A	30Nd-2Co-1B-bal.Fe	Dy	0.3	500°C × 30min.	241	1640	1.42
実施例8	A	30Nd-2Co-1B-bal.Fe	Dy	0.3	600°C × 30min.	286	1680	1.42
実施例9	A	30Nd-2Co-1B-bal.Fe	Dy	0.3	700°C × 30min.	387	1760	1.41
実施例10	A	30Nd-2Co-1B-bal.Fe	Dy	0.3	800°C × 30min.	421	1812	1.42
実施例11	A	30Nd-2Co-1B-bal.Fe	Dy	0.3	900°C × 30min.	788	1803	1.41
実施例12	A	30Nd-2Co-1B-bal.Fe	Dy	0.3	1000°C × 30min.	1440	1784	1.37
実施例13	A	30Nd-2Co-1B-bal.Fe	85Dy-15Cu	0.3	600°C × 30min.	302	1760	1.43
実施例14	A	30Nd-2Co-1B-bal.Fe	85Dy-15Cu	0.3	700°C × 30min.	405	1850	1.42
実施例15	A	30Nd-2Co-1B-bal.Fe	85Dy-15Cu	0.3	800°C × 30min.	511	1890	1.42
比較例1	A	30Nd-2Co-1B-bal.Fe	-	-	-	237	1460	1.44

【0132】

表 2 によれば主に以下のことが分かる。すなわち、熱処理を加えることにより、残留磁束密度 Br はほとんど変わらず、保磁力 H_{cj} がさらに増加することが分かる。これは、熱処理により、Dy 元素の粒界相への拡散が促進され、粒界相に Dy 元素をより均質に内

10

20

30

40

50

部拡散させることができたためであると考えられる。

【0133】

また、熱処理時の温度が500 ~ 900 の範囲内にある場合には、残留磁束密度 B_r と保磁力 H_{c_j} とのバランスに優れることが分かる。これは、Dy 元素を十分に粒界相に拡散させるとともに、Dy 元素の多くを粒界相にとどめて結晶粒内の Nd 元素との置換が抑制され、残留磁束密度の低下を抑制できたこと、結晶粒の粗大化が抑制され、高保磁力化を図ることができたこと等によるものと考えられる。

【0134】

また、混合粉として、Dy 金属粉末を用いた実施例7~12よりも、Dy-Cu合金粉末を用いた実施例13~15の方が、保磁力 H_{c_j} が大きい、熱処理による保磁力 H_{c_j} の増加率は小さいことも分かる。これは、Dy-Cu合金は融点が高いため、先の熱間成形によりDyの拡散が進んでいたためであると考えられる。

10

【0135】

3. 実験3

(原料粉末の準備)

質量%で、29%Pr-1%Co-1%B-ba1.Feと、25%Pr-3%Nd-2%Dy-1%B-ba1.Feの成分組成を有する2種類の希土類合金粉末C、D(最大粒径が350 μ m以下)を、実験1と同一条件で製作した。また、85Dy-15Cu合金粉末(最大粒径が350 μ m以下)を、回転ロールを用いた急冷法により製作し、粉碎と篩い分けにより最大粒径が74 μ m以下の粉末を得た。

20

【0136】

後述の表3に示すように、希土類合金粉末CまたはDに0.2~3質量%の85Dy-15Cu合金粉末を加え、大気中でコーヒールを用いて混合した。これにより、実施例16~25に係る希土類磁石の作製に用いる各原料粉末を準備した。

【0137】

なお、比較例3に係る希土類磁石の作製には、希土類合金粉末Cをそのまま用いる。比較例4に係る希土類磁石の作製には、希土類合金粉末Dをそのまま用いる。

【0138】

(冷間成形 熱間成形 熱間塑性加工 熱処理)

次工程以降は、実験1と同様に冷間成形、熱間成形、熱間塑性加工を行い、さらに、Ar雰囲気中、750 で1時間の熱処理を行った。そして、実験1と同様に、磁気特性を測定した。

30

【0139】

実験3の各種条件、結果をまとめて表3に示す。

【0140】

【表 3】

	原料粉末				熱処理条件	Hcj 〔保磁力〕 (kA/m)	Br 〔残留磁束密度〕 (T)
	R-X-B系合金粉末 組成(質量%)		RH金属又はRH合金 組成(質量%) 混合量(質量%)				
実施例16	C	29Pr-1Co-1B-bal.Fe	85Dy-15Cu	0.2	750°C×1h	1800	1.42
実施例17	C	29Pr-1Co-1B-bal.Fe	85Dy-15Cu	0.5	750°C×1h	1930	1.39
実施例18	C	29Pr-1Co-1B-bal.Fe	85Dy-15Cu	1	750°C×1h	2023	1.37
実施例19	C	29Pr-1Co-1B-bal.Fe	85Dy-15Cu	2	750°C×1h	2240	1.31
実施例20	C	29Pr-1Co-1B-bal.Fe	85Dy-15Cu	3	750°C×1h	2354	1.26
実施例21	D	25Pr-3Nd-2Dy-1B-bal.Fe	85Dy-15Cu	0.2	750°C×1h	2277	1.26
実施例22	D	25Pr-3Nd-2Dy-1B-bal.Fe	85Dy-15Cu	0.5	750°C×1h	2380	1.23
実施例23	D	25Pr-3Nd-2Dy-1B-bal.Fe	85Dy-15Cu	1	750°C×1h	2450	1.19
実施例24	D	25Pr-3Nd-2Dy-1B-bal.Fe	85Dy-15Cu	2	750°C×1h	2550	1.13
実施例25	D	25Pr-3Nd-2Dy-1B-bal.Fe	85Dy-15Cu	3	750°C×1h	2720	1.08
比較例3	C	29Pr-1Co-1B-bal.Fe	-	-	750°C×1h	1530	1.43
比較例4	D	25Pr-3Nd-2Dy-1B-bal.Fe	-	-	750°C×1h	2030	1.28

10

20

30

40

【0141】

表3によれば主に以下のことが分かる。すなわち、Nd系希土類磁石に変えてPr系希土類磁石でも、同様に、保磁力Hcjを増加させることが可能なことが分かる。また、表1の実施例1と表3の実施例16との比較により、熱処理の実施有無やDy-Cu粉末の混合量が若干異なる点があるものの、Nd系希土類磁石よりPr系希土類磁石の方が保磁力が大きいことが分かる。また、R-X-B系合金粉末として、予めDy含有合金を用いた場合でも、RH合金粉末として、Dy含有合金粉末を混合することで、同様に、保磁力Hcjを増加させることが可能なことが分かる。

【0142】

50

また、実施例 16 ~ 20、実施例 21 ~ 25 に係る希土類磁石は、それぞれ比較例 3、4 に係る希土類磁石に比べ、保磁力 $H_c j$ の増加が大きいことが分かる。また、希土類合金粉末に混合する Dy - Cu 合金の混合量が増加する (Dy 含有量が増加する) につれて、保磁力 $H_c j$ が増加することも分かる。

【0143】

4. 実験 4

(原料粉末の準備)

実験 1 と同様にして、質量 % で、30% Nd - 2% Co - 1% B - 0.5% Ga - b a l . F e の成分組成を有する希土類合金粉末 A' を作製した。また、質量 % で、29% Nd - 1% Dy - 2% Co - 1% B - 0.5% Ga - b a l . F e の成分組成を有する希土類合金粉末 B' を作製した。また、ガスアトマイズ装置を用いて、後述の表 4 に記載の各種成分組成を有する RH 金属粉末または RH 合金粉末を作製した。

10

【0144】

そして、混合量が 0.25 質量 % となるように秤量した各種の RH 金属粉末または RH 合金粉末を希土類合金粉末 A' に添加し、ボールミル (溶媒: シクロヘキサン) により 10 分間混合した後、溶媒を乾燥させて粉末を回収した。これにより、実施例 26 ~ 35 に係る希土類磁石の作製に用いる各原料粉末を準備した。

【0145】

なお、比較例 5 に係る希土類磁石の作製には、希土類合金粉末 B' をそのまま用いる。

【0146】

20

(冷間成形)

各原料粉末 33 g を、冷間プレス機の金型に装填して $5 \text{ ton} / \text{cm}^2$ の圧力を加えて成形し、円柱形状の冷間成形体 (外径 20 mm、高さ 20 mm) を作製した。

【0147】

(熱間成形)

冷間成形体をホットプレス機の金型にセットし、アルゴン雰囲気中で金型を 820 に加熱し、 $3 \text{ ton} / \text{cm}^2$ の圧力を約 10 秒間かけて成形し、高さ 14 mm、密度 99% まで緻密化した円柱状の熱間成形体を作製した。

【0148】

(熱間塑性加工)

30

熱間成形体をプレス機にセットし、Ar 雰囲気中で金型を 820 に加熱して圧縮変形させ、円板状の熱間塑性加工体 (外径 32 mm、高さ 5.5 mm) を作製した。

【0149】

(熱処理)

熱間塑性加工体を、ワイヤ放電加工機を用いて $4 \text{ mm} \times 4 \text{ mm} \times 4 \text{ mm}$ の大きさに切断し、真空中、800 で 10 分の熱処理を行った。そして、実験 1 と同様にして、磁気特性を測定した。

【0150】

実験 4 の各種条件、結果をまとめて表 4 に示す。

【0151】

40

【表 4】

	原料粉末		熱処理条件	Hcj 〔保磁力〕 (kA/m)	Br 〔残留磁束密度〕 (T)	
	R-X-B系合金粉末 組成(質量%)	RH金属又はRH合金 組成(質量%)				
		混合量(質量%)				
実施例26A'	30Nd-2Co-1B-0.5Ga-bal.Fe	Dy	0.25	800°C × 10min.	1630	1.43
実施例27A'	30Nd-2Co-1B-0.5Ga-bal.Fe	85Dy-15Cu	0.25	800°C × 10min.	1670	1.42
実施例28A'	30Nd-2Co-1B-0.5Ga-bal.Fe	87Dy-13Fe	0.25	800°C × 10min.	1540	1.42
実施例29A'	30Nd-2Co-1B-0.5Ga-bal.Fe	80Dy-20Ge	0.25	800°C × 10min.	1610	1.41
実施例30A'	30Nd-2Co-1B-0.5Ga-bal.Fe	70Dy-30Ga	0.25	800°C × 10min.	1720	1.43
実施例31A'	30Nd-2Co-1B-0.5Ga-bal.Fe	75Dy-25Pr	0.25	800°C × 10min.	1590	1.40
実施例32A'	30Nd-2Co-1B-0.5Ga-bal.Fe	80Dy-13Cu-10Al	0.25	800°C × 10min.	1730	1.42
実施例33A'	30Nd-2Co-1B-0.5Ga-bal.Fe	Tb	0.25	800°C × 10min.	1860	1.39
実施例34A'	30Nd-2Co-1B-0.5Ga-bal.Fe	85Tb-15Cu	0.25	800°C × 10min.	1990	1.40
実施例35A'	30Nd-2Co-1B-0.5Ga-bal.Fe	75Tb-15Cu-10Ga	0.25	800°C × 10min.	1950	1.40
比較例5	B' 29Nd-1Dy-2Co-1B-0.5Ga-bal.Fe	-	-	-	1460	1.44

10

20

30

40

【0152】

表4によれば主に以下のことが分かる。すなわち、混合量が0.25質量%と比較的僅かであるが、Dy系(実施例26~32)、Tb系(実施例33~35)何れのRH金属粉末またはRH合金粉末を用いた場合も、保磁力Hcjが増加した。

【0153】

また、純Dy金属、純Tb金属を用いるよりも、Dy系合金、Tb系合金を用いた方が

50

、保磁力 H_{cj} を増加させることが可能なことが分かる。これは、これら合金は、共晶合金化により融点が下がり、熱処理により粒界相への拡散促進効果が高まったためであると考えられる。

【0154】

また、Dy系合金よりもTb系合金を用いた方が、保磁力 H_{cj} の増加が大きいことが分かる。これは、DyよりもTbの方が結晶磁気異方性が大きいためである。

【0155】

また、RH合金の添加元素を適宜選択することで、保磁力 H_{cj} と残留磁束密度 B_r とを調整可能であることが分かる。

【0156】

5. 実験5

(原料粉末の準備)

質量%で、31%Nd - 2%Co - 1%B - 0.3%Ga - bal. Feの成分組成を有する希土類合金を、溶解鑄造してインゴットを作製した。このインゴットを真空炉に装填し、真空排気後に室温から820 までの昇温過程で水素ガスを供給して合金インゴットに水素を吸蔵させた後、真空排気して水素を放出させた。この処理によって崩壊したインゴットをスタンプミルを用いて粉砕し、最大粒径が105 μm のHDDR粉末Eを作製した。また、実験1と同様にして、85Dy - 15Cu合金粉末を製作した。

【0157】

そして、混合量が0.3質量%となるように秤量した85Dy - 15Cu合金粉末をHDDR粉末Eに添加し、大気中でコーヒーミルを用いて混合した。これにより、実施例36 ~ 39に係る希土類磁石の作製に用いる原料粉末を準備した。

【0158】

なお、比較例6に係る希土類磁石の作製には、上記HDDR粉末Eをそのまま用いる。

【0159】

(冷間成形)

各原料粉末3.4gを、冷間プレス機の金型に装填して、1600kA/mの磁場を印加しながら1ton/cm²の圧力を加えて成形し、角柱形状の冷間成形体(8mm×8mm×12mm)を作製した。なお、実験1~実験4における冷間成形体は、磁氣的に等方性であったが、この実験5における冷間成形体は、磁氣的異方性を有している。磁氣的異方性を有するHDDR粉末Eを用い、磁場中で冷間成形したためである。

【0160】

(熱間成形)

冷間成形体をホットプレス機の金型にセットし、アルゴン雰囲気中で金型を800 に加熱し、3ton/cm²の圧力を約10秒間かけて成形し、高さ方向に圧縮した角柱状の熱間成形体(8mm×8mm×7mm)を作製した。

【0161】

(熱処理)

熱間成形体を、Ar雰囲気中、600~900 で30分間の熱処理を行った。そして、冷却後の試料についてBHトレーサーを用いて磁気特性を測定した。

【0162】

実験5の各種条件、結果をまとめて表5に示す。

【0163】

10

20

30

40

【表 5】

	原料粉末		熱処理条件	H _{cj} 〔保磁力〕 (kA/m)	Br 〔残留磁束密度〕 (T)
	R-X-B系合金粉末 組成(質量%)	RH金属又はRH合金 組成(質量%) 混合量(質量%)			
実施例36	E 31Nd-2Co-1B-0.3Ga-bal,Fe	85Dy-15Cu 0.3	600°C × 30min.	1430	1.36
実施例37	E 31Nd-2Co-1B-0.3Ga-bal,Fe	85Dy-15Cu 0.3	700°C × 30min.	1480	1.35
実施例38	E 31Nd-2Co-1B-0.3Ga-bal,Fe	85Dy-15Cu 0.3	800°C × 30min.	1540	1.36
実施例39	E 31Nd-2Co-1B-0.3Ga-bal,Fe	85Dy-15Cu 0.3	900°C × 30min.	1510	1.34
実施例40	E 31Nd-2Co-1B-0.3Ga-bal,Fe	85Dy-15Cu 0.3	-	1410	1.35
比較例6	E 31Nd-2Co-1B-0.3Ga-bal,Fe	-	-	1220	1.38

10

20

30

40

【0164】

表5によれば主に以下のことが分かる。すなわち、準備する原料粉末として、HDDR法によるHDDR粉末Eを準備した場合にも、実験1～4と同様に、残留磁束密度Brの低下を抑制しつつ、保磁力H_{cj}の高い希土類磁石が得られることが分かる。また、熱処理を施さなかった実施例40よりも熱処理を施した実施例36～39の方が、保磁力H_{cj}が大きいことが分かる。これは、熱処理を施すことで粒界相にRH元素をより均質に内

50

部拡散できた結果だと考えられる。

【0165】

さらに、この場合には、冷間成形時に磁氣的異方性を付与することができるため、熱間塑性加工を省略することができる。そのため、生産工程の簡略化等、生産性の向上に寄与することができる。

【0166】

6. 実験6

(原料粉末の準備)

実験1と同様にして、質量%で、27%Nd - 3%Pr - 1%B - b a l . Feの成分組成を有する希土類合金粉末F(最大粒径が350 μ m以下)を作製した。また、質量%
10
で、75%Dy - 25%Cuの成分組成を有する合金薄片を上記と同じ急冷法によって作製し、ヘキサソル媒を用いた湿式ボールミルによって、平均粒径が20 μ mの75Dy - 25Cu合金粉末を製作した。

【0167】

後述の表6に示すように、希土類合金粉末Fに0.03~15質量%の75Dy - 25Cu合金粉末を加え、ヘキサソル媒中で攪拌混合した後、自然乾燥させた。これにより実施例41~50に係る希土類磁石の作製に用いる各原料粉末を準備した。

【0168】

一方、希土類合金粉末Fの作製と同様の手順により、質量%で、26.61%Nd - 3%Pr - 0.39%Dy - 1%B - b a l . Feの成分組成を有する希土類合金粉末G、
20
質量%で、25.5%Nd - 3%Pr - 1.5%Dy - 1%B - b a l . Feの成分組成を有する希土類合金粉末H、質量%で、17.9%Nd - 3%Pr - 9.1%Dy - 1%B - b a l . Feの成分組成を有する希土類合金粉末Iを準備した。これら希土類合金粉末G~Iは、急冷合金の溶解時に予めDyを添加したものである。

【0169】

なお、比較例7に係る希土類磁石の作製には、希土類合金粉末Fをそのまま用いる。

【0170】

(冷間成形 熱間成形 熱間塑性加工)

次工程以降は、実験1と同様に冷間成形、熱間成形、熱間塑性加工を順次行った。さらに、実施例41~50については、Ar雰囲気中、750℃で1時間の熱処理を行った。
30
なお、比較例7~10については、上記熱処理は省略した。そして、実験1と同様にして、磁気特性を測定した。

【0171】

実験6の各種条件、結果をまとめて表6に示す。

【0172】

【 表 6 】

	原料粉末		RH含有量 [Dy含有量] (質量%)	Hcj [保磁力] (kA/m)	Br [残留磁束密度] (T)	
	R-X-B系合金粉末 組成(質量%)	RH金属又はRH合金 組成(質量%)				
		RH金属又はRH合金 組成(質量%)				混合量(質量%)
実施例41	F	27Nd-3Pr-1B-bal.Fe	0.02	1440	1.41	
実施例42	F	27Nd-3Pr-1B-bal.Fe	0.04	1480	1.41	
実施例43	F	27Nd-3Pr-1B-bal.Fe	0.08	1640	1.40	
実施例44	F	27Nd-3Pr-1B-bal.Fe	0.38	1840	1.40	
実施例45	F	27Nd-3Pr-1B-bal.Fe	0.75	2000	1.39	
実施例46	F	27Nd-3Pr-1B-bal.Fe	1.5	2160	1.37	
実施例47	F	27Nd-3Pr-1B-bal.Fe	3.75	2440	1.33	
実施例48	F	27Nd-3Pr-1B-bal.Fe	6	2880	1.24	
実施例49	F	27Nd-3Pr-1B-bal.Fe	9	3360	1.15	
実施例50	F	27Nd-3Pr-1B-bal.Fe	11.25	3600	1.09	
比較例7	F	27Nd-3Pr-1B-bal.Fe	0	1360	1.41	
比較例8	G	26.61Nd-3Pr-0.39Dy-1B-bal.Fe	0.39	1456	1.40	
比較例9	H	25.5Nd-3Pr-1.5Dy-1B-bal.Fe	1.5	1720	1.36	
比較例10	I	17.9Nd-3Pr-9.1Dy-1B-bal.Fe	9.1	2960	1.12	

10

20

30

40

【 0 1 7 3 】

表6によれば主に以下のことが分かる。すなわち、表6から、RH元素であるDyを含まない比較例7に対して、実施例41～50は、RH元素であるDyを含んでおり、Dy含有量の増加に従って保磁力Hcjが著しく向上することが分かる。より詳しくは、実施例41と比較例7との対比から分かるように、0.02質量%の極少量のDyを含有させることにより、残留磁束密度Brは変わりなく保磁力向上の効果が認められた。

【 0 1 7 4 】

また、本製造方法による実施例44と従来の溶製法によって予めDyを希土類合金内に添

50

加した比較例 8 とを対比すると、磁石中の Dy 含有量がほぼ同じであるにもかかわらず実施例 4 4 の方が、保磁力 H c j が大きいことが分かる。実施例 4 6 と比較例 9、および、実施例 4 9 と比較例 1 0 の対比からも同様の傾向が認められた。これらの結果は、本製造方法によれば、R H 元素である Dy 元素が粒界相に優先的に拡散し、且つ主結晶粒内への Dy 元素の拡散が抑制されたために生じたものと推察される。

【0175】

7. 実験 7

(原料粉末の準備)

質量%で、29% Pr - 1% B - 0.5% Ga - b a l . F e の成分組成を有する希土類合金を、1350 で溶解した後、その溶湯をオリフィスから Cr めっきを施した Cu 製の回転ロールに射出(回転ロール周速度: 20 m / 秒)し、急冷合金薄片を作製した。この急冷合金薄片をカッターミルで粉砕して篩分けし、最大粒径が 350 μ m 以下の希土類合金粉末 a を作製した。

10

【0176】

さらに、質量%で、80% Dy - 20% Co の成分組成を有する 80 Dy - 20 Co 合金を高周波溶解し、遠心噴霧法によるアトマイズを行うことにより、粒度分布が 30 ~ 70 μ m の範囲の 80 Dy - 20 Co 合金粉末を製作した。

【0177】

後述の表 7 に示すように、希土類合金粉末 a に 0.2 ~ 6 質量%の 80 Dy - 20 Co 合金粉末を加え、ヘキサン溶媒中にて湿式混合した。これにより、実施例 5 1 ~ 5 6 に係る希土類磁石の作製に用いる各原料粉末を準備した。

20

【0178】

一方、希土類合金粉末 a の作製と同様の手順により、質量%で、29% Pr - 0.8% Dy - 1% B - 0.5% Ga - b a l . F e の成分組成を有する希土類合金粉末 b (急冷合金の溶解時に予め Dy を添加したもの)と、質量%で、28.2% Pr - 1.6% Dy - 1% B - 0.5% Ga - b a l . F e の成分組成を有する希土類合金粉末 c (急冷合金の溶解時に予め Dy を添加したもの)とを準備した。

【0179】

なお、比較例 1 1 に係る希土類磁石の作製には、希土類合金粉末 a をそのまま用いる。比較例 1 2 に係る希土類磁石の作製には、希土類合金粉末 b をそのまま用いる。比較例 1 3 に係る希土類磁石の作製には、希土類合金粉末 c をそのまま用いる。

30

【0180】

(冷間成形)

各原料粉末または各希土類合金粉末 a ~ c それぞれ 55 g を、冷間プレス機の金型に充填して 3 t o n / c m ² の圧力を加えて成形し、円筒形状の冷間成形体(外径 23 mm、内径 14 mm、高さ 30 mm)を作製した。

【0181】

(熱間成形)

冷間成形体をホットプレス機の金型にセットし、アルゴン雰囲気中で金型を 800 に加熱し、3 t o n / c m ² の圧力を約 15 秒間かけて成形し、高さ約 20 mm の緻密化した円筒状の熱間成形体を作製した。

40

【0182】

(熱間塑性加工)

熱間成形体を後方押し出し装置の金型にセットし、大気中で金型を 850 に加熱して後方押し出しを行い、内径および高さが変形した熱間塑性加工体(外径 23 mm、内径 18 mm、高さ 40 mm)を製作し、押しきれなかった底部分は切り落とした。これにより、ラジアル方向に磁気異方性をもつ円筒状の希土類磁石を作製した。

【0183】

(希土類磁石の微細構造)

実施例 5 1 ~ 5 6 に係る希土類磁石からそれぞれ試験片を切り出し、各試験片を樹脂に

50

埋め込んで、研磨、エッチングした後、SEMにより観察した。その結果、多数の板状結晶粒とその周りを取り囲む粒界相とからなる微細組織が観察された。

【0184】

また、各組織画像を撮影し、結晶粒径を求めた。この際、結晶粒径の算出は、希土類磁石のC面を撮影した画像（倍率：1万倍）に数本の直線を引き、総数50個の結晶粒の長さを測定し、これら長さの平均値を求めることにより行った。

【0185】

また、SEMに付属しているEDX分析装置を用いて、結晶粒と粒界相の希土類元素濃度を調べた結果、比較例11に係る磁石は、 $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相を主相とする結晶粒を有し、粒界相はPrに富んでいることが確認された。また、実施例53に係る磁石は、 $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相を主相とする結晶粒を有し、結晶粒よりも粒界相の方がDyに富んでいることが確認された。

10

【0186】

さらに、実施例53に係る希土類磁石（80Dy - 20Co合金粉末が1質量%入りで、純Dy分が0.8質量%相当）については、磁石表面部、磁石中心部、および両者の中間部（領域 $10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$ ）のEDX分析を実施し、各部位ごとにDy元素濃度を測定した。なお、磁石表面部については、円筒状磁石の最外側の磁石表面から $10\mu\text{m}$ の深さの部位を測定した。また、磁石中心部については、円筒状磁石の内径の直径と外径の直径の平均となる部位を測定した。また、磁石中間部については、磁石表面部と磁石中心部との中間の部位を測定した。その結果、Dy元素濃度は、磁石表面部で0.83%、磁石中間部で0.82%、磁石中心部で0.84%であった。つまり、磁石表面部から磁石内部の深さ方向におけるRH元素の濃度差は、2.4%であった。このことから、従来の傾斜焼結磁石（特開2006-303436号の表1における表面から距離 $10\mu\text{m}$ と $500\mu\text{m}$ を参照）に比べ、本発明に係る希土類磁石は、磁石全体におけるDy元素濃度の均一性が極めて良いことが分かった。

20

【0187】

このことから、Dy元素が粒界相に濃化されており、かつ、磁石表面部から中心部にかけてDy元素がほぼ一定の濃度分布で存在していることが確認された。つまり、本発明によれば、磁石表面からDy元素を拡散浸透させる方法に対して、磁石内部のDy濃度が明らかに均質であることが明らかになった。なお、この実施例53のDy濃度分布結果から、他の実施例についても、粒界相にDy元素が同様に分布していることが容易に類推可能である。

30

【0188】

（磁気特性の測定）

上記作製した各円筒状の希土類磁石を、高さ方向4mmに切断し、さらに円周16分割に切断した円弧状磁石片（縦4×横4×厚さ2.5mm）を、振動試料型磁力計（VSM）を用いて磁気測定し、反磁界補正をして保磁力（Hcj）および残留磁束密度（Br）を求めた。

【0189】

実験7の各種条件、結果をまとめて表7に示す。

40

【0190】

【表 7】

	原料粉末		結晶粒径 (nm)	Hcj [保磁力] (kA/m)	Br [残留磁束密度] (T)		
	R-X-B系合金粉末 組成(質量%)	RH金属又はRH合金 組成(質量%)					
		組成(質量%)					
実施例51	a	29Pr-1B-0.5Ga-bal.Fe	80Dy-20Co	0.2	266	1670	1.42
実施例52	a	29Pr-1B-0.5Ga-bal.Fe	80Dy-20Co	0.4	272	1730	1.41
実施例53	a	29Pr-1B-0.5Ga-bal.Fe	80Dy-20Co	1	286	1840	1.39
実施例54	a	29Pr-1B-0.5Ga-bal.Fe	80Dy-20Co	2	301	2050	1.37
実施例55	a	29Pr-1B-0.5Ga-bal.Fe	80Dy-20Co	4	308	2340	1.33
実施例56	a	29Pr-1B-0.5Ga-bal.Fe	80Dy-20Co	6	335	2610	1.28
比較例11	a	29Pr-1B-0.5Ga-bal.Fe	-	-	256	1520	1.43
比較例12	b	29Pr-0.8Dy-1B-0.5Ga-bal.Fe	-	-	237	1720	1.38
比較例13	c	28.2Pr-1.6Dy-1B-0.5Ga-bal.Fe	-	-	226	1880	1.35

10

20

30

40

【0191】

表 7 によれば主に以下のことが分かる。すなわち、比較例 1 1 に係る希土類磁石は、実施例 5 1 ~ 5 6 に係る希土類磁石と比較して保磁力 Hcj が小さい。これは、希土類合金粉末 a に 8 0 D y - 2 0 C o 合金粉末を混合することなく、希土類合金粉末 a を単独で用いて磁石を作製したためである。

【0192】

また、比較例 1 2 および比較例 1 3 に係る希土類磁石は、実施例 5 3 および実施例 5 4 に係る希土類磁石と同一量に相当する D y を合金溶解時に添加して作製したものである。比較例 1 2 および比較例 1 3 に係る希土類磁石は、D y 添加による保磁力増加が認められ

50

るが、残留磁束密度 B_r の低下がやや大きく、保磁力 $H_c j$ の増加は比較的小さい。これは、合金溶解時に Dy を添加したことにより、 Dy が主結晶内の Pr と置換し、 Dy 原子と Fe 原子とが磁氣的に反平行結合したことで残留磁化が低下し、かつ、主結晶粒を取り囲む粒界相が均一に形成されなかったためと推察される。

【0193】

これらに対し、実施例 5 1 ~ 5 6 に係る希土類磁石は、比較例 1 1 に係る希土類磁石に対して保磁力 $H_c j$ が大きいことが分かる。また、80 Dy - 20 Co 合金粉末の混合量が増えるにしたがって、保磁力 $H_c j$ が増加していることが分かる。これは、上記原料粉末を用いた冷間成形、熱間成形、熱間塑性加工を経ることで、 Dy 元素の粒界相への拡散が進み、保磁力 $H_c j$ を高効率で増加させることができたためであると考えられる。

10

【0194】

また、実施例 5 1 ~ 5 6 に係る希土類磁石は、その主結晶の結晶粒径がいずれも 0.2 ~ 0.3 μm 程度であり、高保磁力を得るのに適した単磁区粒径に近い理想的なサイズであった。

【0195】

8. 実験 8

(熱処理)

実験 7 で作製した実施例 5 3 に係る希土類磁石につき、円弧状磁石片を真空熱処理炉に装填し、 Ar 雰囲気中、500 ~ 1000 で 1 時間の熱処理を実施した。そして、実験 7 と同様にして、結晶粒径、磁気特性を測定した。

20

【0196】

実験 8 の各種条件、結果をまとめて表 8 に示す。

【0197】

【表 8】

	原料粉末		熱処理条件	結晶粒径 (nm)	H _{cj} [保磁力] (kA/m)	Br [残留磁束密度] (T)		
	R-X-B系合金粉末 組成(質量%)	RH金属又はRH合金 組成(質量%)						
		混合量(質量%)						
実施例57	a	29Pr-1B-0.5Ga-bal,Fe	80Dy-20Co	1	500°C × 1h	314	1890	1.40
実施例58	a	29Pr-1B-0.5Ga-bal,Fe	80Dy-20Co	1	600°C × 1h	335	2020	1.39
実施例59	a	29Pr-1B-0.5Ga-bal,Fe	80Dy-20Co	1	700°C × 1h	447	2350	1.40
実施例60	a	29Pr-1B-0.5Ga-bal,Fe	80Dy-20Co	1	800°C × 1h	478	2460	1.41
実施例61	a	29Pr-1B-0.5Ga-bal,Fe	80Dy-20Co	1	900°C × 1h	896	2250	1.39
実施例62	a	29Pr-1B-0.5Ga-bal,Fe	80Dy-20Co	1	1000°C × 1h	1520	1650	1.37
比較例12	b	29Pr-0.8Dy-1B-0.5Ga-bal,Fe	-	-	-	237	1720	1.38

【0198】

表 8 によれば主に以下のことが分かる。すなわち、熱処理を加えることにより、残留磁束密度 Br はほとんど変わらず、保磁力 H_{cj} がさらに増加することが分かる。これは、熱処理により、Dy 元素の粒界相への拡散が促進され、粒界相に Dy 元素をより均質に内部拡散させることができたためであると考えられる。

【0199】

10

20

30

40

50

また、熱処理時の温度が500 ~ 900 の範囲内にある場合には、残留磁束密度 B_r と保磁力 H_{c_j} とのバランスに優れることが分かる。これは、Dy元素を十分に粒界相に拡散させるとともに、Dy元素の多くを粒界相にとどめて結晶粒内のPr元素との置換が抑制され、残留磁束密度の低下を抑制できたこと、結晶粒の粗大化が抑制され、高保磁力化を図ることができたこと等によるものと考えられる。

【0200】

一方、熱処理時の温度が1000 になると、残留磁束密度 B_r と保磁力 H_{c_j} とがともに低下する傾向を示した。この理由は、結晶粒径が1 μm を越えて成長したために保磁力 H_{c_j} が低下したことに起因するものと考えられる。このことから高い保磁力 H_{c_j} を得るためには結晶粒径を1 μm 以下に制御することが有効であると言える。

10

【0201】

9. 実験9

(原料粉末の準備)

実験7で作製した、質量%で、29%Pr - 1%B - 0.5%Ga - bal. Feの成分組成を有する急冷合金薄片を粉砕して篩い分けし、最大粒径が74 μm 以下の希土類合金粉末aを作製した。

【0202】

また、各種成分組成を有するRH合金溶湯を回転ロール面に射出(回転ロール周速度: 10m/秒)し、各種成分組成を有する急冷合金薄片を作製した。次いで、これら急冷合金薄片をボールミルを用いてさらに粉砕し、平均粒径が20 μm の各RH合金粉末を作製した。作製した各RH合金粉末は、後述の表9に記載されるように、90Dy - 10Co合金粉末、80Dy - 20Co合金粉末、60Dy - 40Co合金粉末、85Dy - 15Fe合金粉末、87Dy - 13Mn合金粉末、90Dy - 10Cr合金粉末、および、80Tb - 20Co合金粉末の7種類である。これら合金の融点は、750 ~ 1180 の範囲内にあり、純Dy金属の融点1412 よりも低い。

20

【0203】

そして、混合量が0.5質量%となるように秤量した各種のRH合金粉末を希土類合金粉末aに添加し、ボールミル(溶媒:シクロヘキサン)により10分間混合した後、溶媒を乾燥させて粉末を回収した。これにより、実施例63~69に係る希土類磁石の作製に用いる各原料粉末を準備した。

30

【0204】

なお、比較例14に係る希土類磁石の作製には、合金溶解時点で上記原料粉末におけるDy質量%とほぼ同等となるように0.4質量%のDyを添加した、29.4%Pr - 0.4%Dy - 1%B - 0.5%Ga - bal. Feの希土類合金粉末dを用いる。

【0205】

(冷間成形)

各原料粉末80gを、冷間プレス機の金型に装填して4ton/cm²の圧力を加えて成形し、矩形状の冷間成形体(43mm x 38mm x 10mm)を作製した。

【0206】

(熱間成形)

冷間成形体をホットプレス機の金型にセットし、アルゴン雰囲気中で金型を820 に加熱し、3ton/cm²の圧力を加えて20秒間保持して成形し、相対密度99%に達する、28mm x 38mm x 10mmの緻密化した熱間成形体を作製した。

40

【0207】

(熱間塑性加工)

熱間成形体をプレス機にセットし、Ar雰囲気中で金型を800 に加熱して圧縮変形させながら押し出し、短冊状の熱間塑性加工体(18mm x 59mm x 10mm)を作製した。

【0208】

(熱処理)

50

熱間塑性加工体を、ワイヤ放電加工機を用いて直径10mm×高さ7mmの大きさに切断し、真空中、800℃で30分の熱処理を行った。そして、実験7と同様にして、磁気特性を測定した。

【0209】

実験9の各種条件、結果をまとめて表9に示す。

【0210】

【表9】

	原料粉末		熱処理条件	H _{cj} [保磁力] (kA/m)	Br [残留磁束密度] (T)		
	R-X-B系合金粉末 組成(質量%)	RH金属又はRH合金					
		組成(質量%)				混合量(質量%)	
実施例63	a	29Pr-1B-0.5Ga-bal.Fe	90Dy-10Co	0.5	800°C×30min.	1970	1.41
実施例64	a	29Pr-1B-0.5Ga-bal.Fe	80Dy-20Co	0.5	800°C×30min.	2110	1.42
実施例65	a	29Pr-1B-0.5Ga-bal.Fe	60Dy-40Co	0.5	800°C×30min.	2060	1.40
実施例66	a	29Pr-1B-0.5Ga-bal.Fe	85Dy-25Fe	0.5	800°C×30min.	1950	1.41
実施例67	a	29Pr-1B-0.5Ga-bal.Fe	87Dy-13Mn	0.5	800°C×30min.	2030	1.39
実施例68	a	29Pr-1B-0.5Ga-bal.Fe	90Dy-10Cr	0.5	800°C×30min.	1890	1.41
実施例69	a	29Pr-1B-0.5Ga-bal.Fe	80Tb-20Co	0.5	800°C×30min.	2270	1.39
比較例14	d	29.4Pr-0.4Dy-1B-0.5Ga-bal.Fe	-	-	-	1610	1.41

【0211】

表9によれば主に以下のことが分かる。すなわち、混合量が0.5質量%と比較的僅か

10

20

30

40

50

であるが、Dy系（実施例63～68）、Tb系（実施例69）何れのRH合金粉末を用いた場合も、ほぼ同量のDyを添加して作製した比較例4と比較して高い保磁力Hc_jが得られた。また、各RH合金は、共晶合金化により融点が下がるため、熱処理により粒界相への拡散促進効果があることが分かる。

【0212】

また、実施例64と実施例69とを対比すれば分かるように、Dy系合金よりもTb系合金を用いた方が、保磁力Hc_jの増加が大きいことが分かる。これは、DyよりもTbの方が結晶磁気異方性が大きいためである。

【0213】

また、RH合金の添加元素を適宜選択することで、保磁力Hc_jと残留磁束密度B_rとを調整可能であることが分かる。

10

【0214】

10．実験10

（原料粉末の準備）

実験7と同様にして、後述の表10に記載されるように、質量%で、29%Pr - 1% B - 0.5% Ga - b a l . F eの成分組成を有する希土類合金粉末a、質量%で、27%Pr - 2%Nd - 1%B - 0.6% Ga - b a l . F eの成分組成を有する希土類合金粉末e、質量%で、22%Pr - 5%Nd - 1%B - 0.5% Ga - b a l . F eの成分組成を有する希土類合金粉末f、質量%で、19%Pr - 10%Nd - 1%B - 0.5% Ga - b a l . F eの成分組成を有する希土類合金粉末g、質量%で、14%Pr - 15%Nd - 1%B - 0.5% Ga - b a l . F eの成分組成を有する希土類合金粉末h、質量%で、29%Nd - 1%B - 0.5% Ga - b a l . F eの成分組成を有する希土類合金粉末iを作製した。

20

【0215】

そして、混合量が1質量%となるように秤量した80Dy - 20Co合金粉末を上述の希土類合金粉末a、e、f、g、h、iにそれぞれ添加し、ボールミル（溶媒：シクロヘキサン）により10分間混合した後、溶媒を乾燥させて粉末を回収した。これにより、実施例70～75に係る希土類磁石の作製に用いる各原料粉末を準備した。

【0216】

なお、比較例12に係る希土類磁石の作製には、実験7にて作製した希土類合金粉末b（急冷合金の溶解時に予めDyを添加したもの）をそのまま用いる。

30

【0217】

（冷間成形 熱間成形 熱間塑性加工 熱処理）

次工程以降は、実験9と同様に冷間成形、熱間成形、熱間塑性加工を行い、さらに、Ar雰囲気中、750℃で1時間の熱処理を行った。そして、実験1と同様にして、磁気特性を測定した。

【0218】

実験10の各種条件、結果をまとめて表10に示す。

【0219】

【表 10】

	原料粉末		熱処理条件	Hcj 〔保磁力〕 (kA/m)	Br 〔残留磁束密度〕 (T)		
	R-X-B系合金粉末 組成(質量%)	RH金属又はRH合金 組成(質量%) 混合量(質量%)					
実施例70	a	29Pr-1B-0.5Ga-bal.Fe	80Dy-20Co	1	750°C × 1h	2380	1.38
実施例71	e	27Pr-2Nd-1B-0.6Ga-bal.Fe	80Dy-20Co	1	750°C × 1h	2360	1.39
実施例72	f	22Pr-5Nd-1B-0.5Ga-bal.Fe	80Dy-20Co	1	750°C × 1h	2330	1.39
実施例73	g	19Pr-10Nd-1B-0.5Ga-bal.Fe	80Dy-20Co	1	750°C × 1h	2280	1.39
実施例74	h	14Pr-15Nd-1B-0.5Ga-bal.Fe	80Dy-20Co	1	750°C × 1h	2230	1.40
実施例75	i	29Nd-1B-0.5Ga-bal.Fe	80Dy-20Co	1	750°C × 1h	2190	1.41
比較例12	b	29Pr-0.8Dy-1B-0.5Ga-bal.Fe	-	-	-	1720	1.38

10

20

30

40

【0220】

表10によれば主に以下のことが分かる。すなわち、純Pr系希土類磁石(実施例70)のPrを部分的にNdに置換した(Pr、Nd)系希土類磁石(実施例71~実施例74)、および、純Nd系希土類磁石(実施例75)でも、同様に、保磁力Hcjを増加させることが可能であることが分かる。純Nd系希土類磁石(実施例75)に比べ、純Pr系希土類磁石(実施例70)、(Pr、Nd)系希土類磁石(実施例71~実施例74)は、残留磁束密度Brがやや低めであるが、保磁力Hcjがかなり大きいことが分かる。このことから、本発明におけるRは、Pr、または、PrおよびNdを主体とすることが好ましく、磁気特性面で優位な希土類磁石になることが分かる。

50

【0221】

11. 実験11

(原料粉末の準備)

質量%で、30%Pr - 2%Co - 1%B - 0.3%Ga - bal. Feの成分組成を有する希土類合金を、溶解鑄造してインゴットを作製した。このインゴットを真空炉に装填し、真空排気後に室温から780 までの昇温過程で水素ガスを供給して合金インゴットに水素を吸蔵させた後、真空排気して水素を放出させた。この処理によって崩壊したインゴットをスタンプミルを用いて粉砕し、最大粒径が105 μm のHDDR粉末jを作製した。また、上記と同様にして、質量%で、29.6%Pr - 0.4%Dy - 2%Co - 1%B - 0.3%Ga - bal. Feの成分組成を有するHDDR粉末k(予めDyを添加したもの)を作製した。また、実験7と同様にして、80Dy - 20Co合金粉末を製作した。

10

【0222】

そして、混合量が0.5質量%となるように秤量した80Dy - 20Co合金粉末を上記HDDR粉末jに添加し、ヘキサン溶媒中にて湿式混合し、自然乾燥させた。これにより、実施例76~79に係る希土類磁石の作製に用いる原料粉末を準備した。

【0223】

なお、比較例15に係る希土類磁石の作製には、上記HDDR粉末kをそのまま用いる。

【0224】

(冷間成形)

各原料粉末5gを、冷間プレス機の金型に装填して、1600kA/mの磁場を印加しながら2ton/cm²の圧力を加えて成形し、角柱形状の冷間成形体(10mm×10mm×10mm)を作製した。なお、実験7~実験10における冷間成形体は、磁氣的に等方性であったが、この実験11における冷間成形体は、磁氣的異方性を有している。磁氣的異方性を有するHDDR粉末kを用い、磁場中で冷間成形したためである。

20

【0225】

(熱間成形)

冷間成形体をホットプレス機の金型にセットし、アルゴン雰囲気中で金型を800 に加熱し、3ton/cm²の圧力を約15秒間かけて成形し、高さ方向に圧縮した角柱状の熱間成形体(10mm×10mm×6.7mm)を作製した。

30

【0226】

(熱処理)

熱間成形体を、Ar雰囲気中、600~900 で1時間の熱処理を行った。そして、冷却後の試料についてBHトレーサーを用いて磁気特性を測定した。

【0227】

実験11の各種条件、結果をまとめて表11に示す。

【0228】

【表 1 1】

	原料粉末		熱処理条件	H _{cj} [保磁力] (kA/m)	Br [残留磁束密度] (T)	
	R-X-B系合金粉末 組成(質量%)	RH金属又はRH合金				
		組成(質量%)				混合量(質量%)
実施例76	j 30Pr-2Co-1B-0.3Ga-bal.Fe	80Dy-20Co	0.5	600°C×1h	1.37	
実施例77	j 30Pr-2Co-1B-0.3Ga-bal.Fe	80Dy-20Co	0.5	700°C×1h	1.37	
実施例78	j 30Pr-2Co-1B-0.3Ga-bal.Fe	80Dy-20Co	0.5	800°C×1h	1.36	
実施例79	j 30Pr-2Co-1B-0.3Ga-bal.Fe	80Dy-20Co	0.5	900°C×1h	1.34	
比較例15	k 29.6Pr-0.4Dy-2Co-1B-0.3Ga-bal.Fe	-	-	-	1.37	

10

20

30

40

【0 2 2 9】

表 1 1 によれば主に以下のことが分かる。すなわち、準備する原料粉末として、HDD R法によるHDDR粉末kを準備した場合にも、実験7～10と同様に、残留磁束密度Brの低下を抑制しつつ、保磁力H_{cj}の高い希土類磁石が得られることが分かる。また、実施例76～79に係る希土類磁石は、予めDyを添加したHDDR粉末kを用いた比較

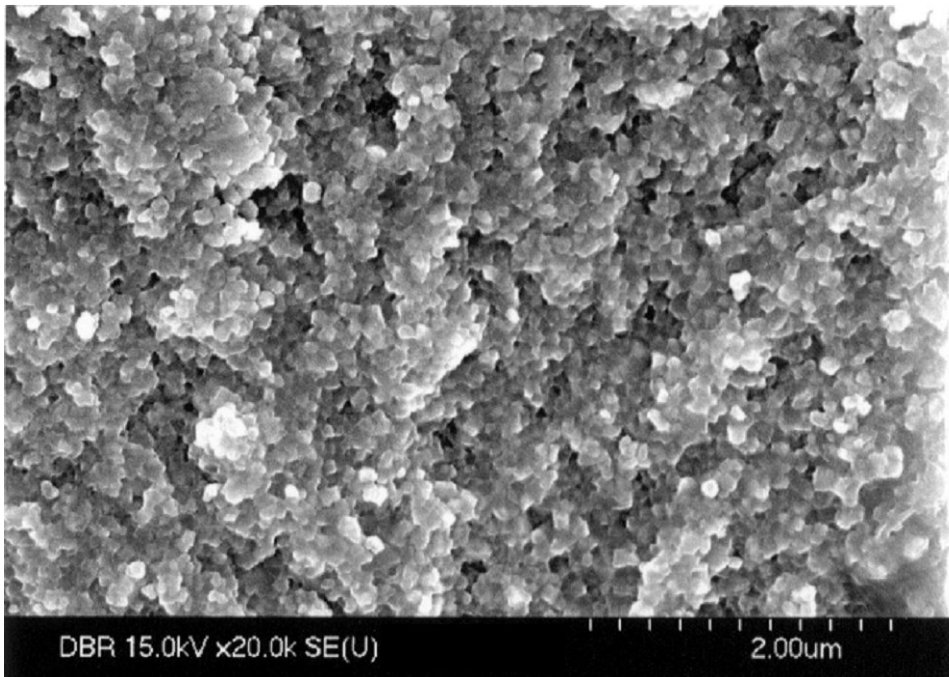
50

例 1 5 に係る希土類磁石に比べ、高い磁気特性が得られることも分かる。

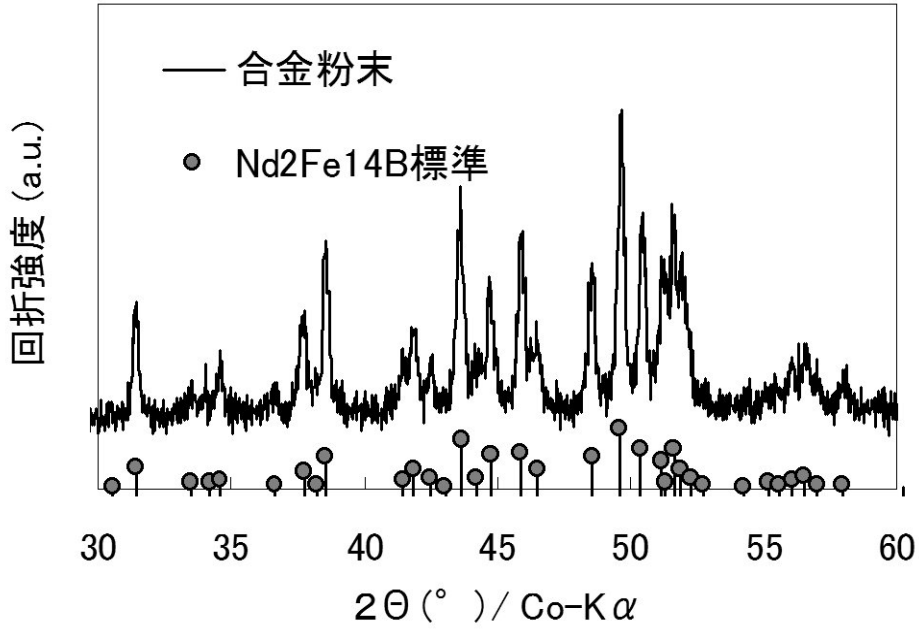
【 0 2 3 0 】

以上、本発明に係る希土類磁石およびその製造方法について説明したが、本発明は、上記実施形態、実施例に何ら限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲内で種々の改変が可能である。

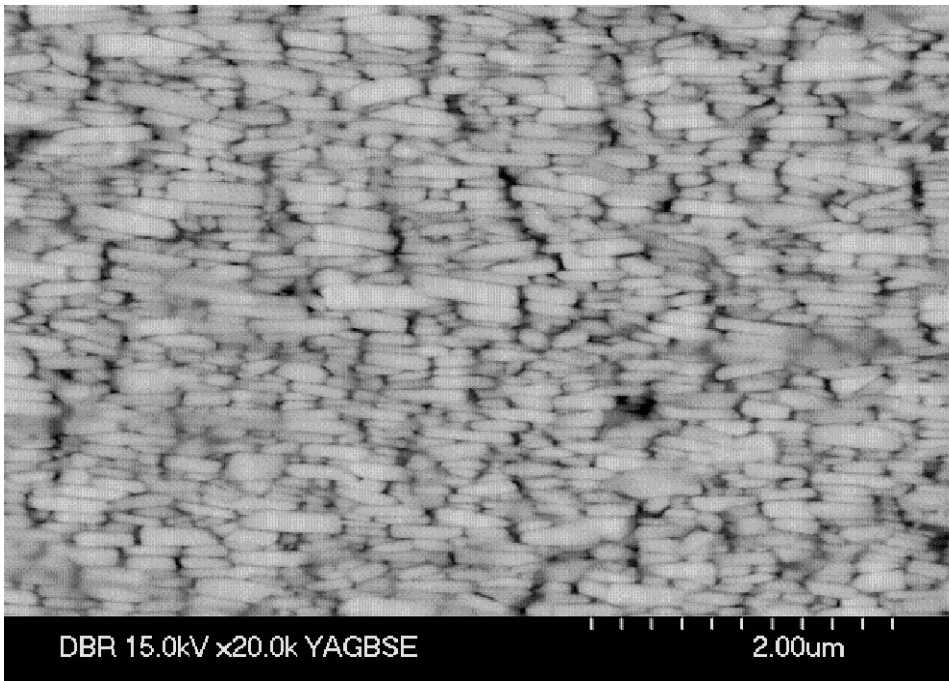
【 図 1 】



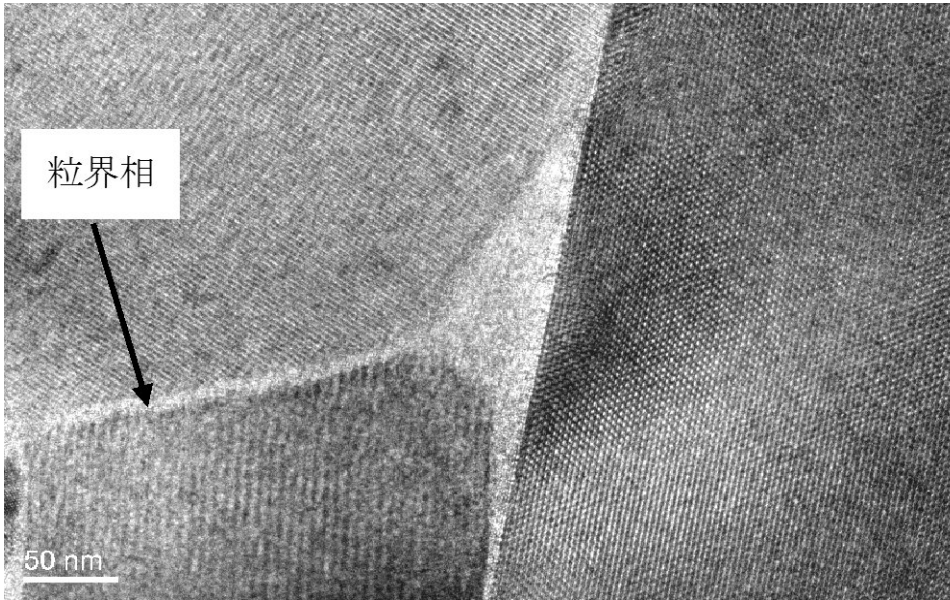
【 図 2 】



【 図 3 】



【 図 4 】



フロントページの続き

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード(参考)
B 2 2 F 3/24 (2006.01)	B 2 2 F 1/02	E
C 2 2 C 38/00 (2006.01)	B 2 2 F 3/24	B
	C 2 2 C 38/00	3 0 3 D

(72)発明者 藪見 崇生

愛知県名古屋市南区大同町二丁目30番地 大同特殊鋼株式会社研究開発本部内

Fターム(参考) 4K018 AA27 BA18 BA20 BC12 BC22 CA02 EA01 EA21 EA27 EA31
EA44 FA08 FA11 KA45
5E040 AA04 CA01 NN06
5E062 CC05 CE04