

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第4951703号  
(P4951703)

(45) 発行日 平成24年6月13日(2012.6.13)

(24) 登録日 平成24年3月16日(2012.3.16)

(51) Int. Cl.	F I		
<b>H01F 1/057 (2006.01)</b>	H01F 1/04	H	
<b>C22C 38/00 (2006.01)</b>	C22C 38/00	303D	
<b>C22C 33/02 (2006.01)</b>	C22C 33/02	J	
<b>B22F 1/00 (2006.01)</b>	B22F 1/00	Y	
<b>B22F 3/00 (2006.01)</b>	B22F 3/00	F	
請求項の数 6 (全 16 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号 特願2010-221482 (P2010-221482)  
 (22) 出願日 平成22年9月30日 (2010.9.30)  
 (65) 公開番号 特開2012-79796 (P2012-79796A)  
 (43) 公開日 平成24年4月19日 (2012.4.19)  
 審査請求日 平成23年12月28日 (2011.12.28)

早期審査対象出願

(73) 特許権者 000002004  
 昭和電工株式会社  
 東京都港区芝大門1丁目13番9号  
 (74) 代理人 100064908  
 弁理士 志賀 正武  
 (74) 代理人 100108578  
 弁理士 高橋 詔男  
 (74) 代理人 100089037  
 弁理士 渡邊 隆  
 (74) 代理人 100094400  
 弁理士 鈴木 三義  
 (74) 代理人 100107836  
 弁理士 西 和哉  
 (74) 代理人 100108453  
 弁理士 村山 靖彦

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 R-T-B系希土類永久磁石用合金材料、R-T-B系希土類永久磁石の製造方法およびモータ

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

組成の異なる複数のR-T-B系合金と金属粉末とを含み、各R-T-B系合金が、希土類元素から選ばれる2種以上であるRと、Feを必須とする遷移金属であるTと、Bおよび不可避不純物からなり、前記複数のR-T-B系合金のうち最もDy含有量の多い第1合金が、17質量%以上のDyを含有するものであり、前記複数のR-T-B系合金のうち前記第1合金と最もDy含有量の濃度差の小さい第2合金が、前記第1合金とのDy含有量の濃度差が5質量%以上であることを特徴とするR-T-B系希土類永久磁石用合金材料。

【請求項2】

前記金属粉末が、Al、Fe、Si、Ta、Ti、Zrのうちから選ばれる1種または2種以上、またはこれらの金属を含む合金であることを特徴とする請求項1に記載のR-T-B系希土類永久磁石用合金材料。

【請求項3】

前記金属粉末が、0.02質量%~6質量%含まれていることを特徴とする請求項1または請求項2に記載のR-T-B系希土類永久磁石用合金材料。

【請求項4】

前記組成の異なる複数のR-T-B系合金の全てを混合したときの組成におけるDy含有量が2質量%~20質量%であることを特徴とする請求項1~請求項3のいずれか一項に記載のR-T-B系希土類永久磁石用合金材料。

## 【請求項 5】

請求項 1 ~ 請求項 4 のいずれか一項に記載の R - T - B 系希土類永久磁石用合金材料を成形して焼結することを特徴とする R - T - B 系希土類永久磁石の製造方法。

## 【請求項 6】

請求項 5 に記載の R - T - B 系希土類永久磁石の製造方法により製造された R - T - B 系希土類永久磁石を備えることを特徴とするモーター。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、R - T - B 系希土類永久磁石用合金材料、R - T - B 系希土類永久磁石の製造方法およびモーターに係り、特に、優れた磁気特性を有し、モーターに好適に用いられる R - T - B 系希土類永久磁石の得られる R - T - B 系希土類永久磁石用合金材料およびこれを用いた R - T - B 系希土類永久磁石の製造方法およびモーターに関するものである。

10

## 【背景技術】

## 【0002】

従来から、R - T - B 系希土類永久磁石（以下、「R - T - B 系磁石」という場合がある）は、ハードディスクドライブのボイスコイルモーターなどのモーターに使用されている。ローター中に R - T - B 系磁石を組み込んだモーターは、高いエネルギー効率を発揮するものである。近年、省エネルギーへの要望が高まっていることや、R - T - B 系磁石の耐熱性が向上したことから、家電、エアコン、自動車などの各種モーター等に用いる R - T - B 系磁石の使用量が増えてきている。

20

## 【0003】

一般に、R - T - B 系磁石は、Nd、Fe、B を主成分とする R - T - B 系合金を成形して焼結することによって得られる。R - T - B 系合金において R は、通常、Nd と、Nd の一部を Pr、Dy、Tb 等の他の希土類元素で置換したものである。T は、Fe と Fe の一部を Co、Ni 等の他の遷移金属で置換したものである。B はホウ素であり、一部を C または N で置換できる。

R - T - B 系磁石は、普通、 $R_2T_{14}B$  で構成される主相と、主相の粒界に存在して主相よりも Nd 濃度の高い Nd リッチ相の 2 相から構成されている。Nd リッチ相は粒界相とも呼ばれている。

30

## 【0004】

ハイブリッド自動車や電気自動車などのモーターに用いられる R - T - B 系磁石は、モーター内で高温に曝されるため、高い保磁力 ( $Hc_j$ ) が要求される。R - T - B 系磁石の保磁力を向上させる技術としては、R - T - B 系合金の R を Nd から Dy に置換する技術がある。しかしながら、Dy は資源が偏在しているうえ、産出量も限られているためにその供給に不安が生じている。

## 【0005】

このため、R - T - B 系合金に含まれる Dy の含有量を多くすることなく、R - T - B 系磁石の保磁力を向上させる技術が検討されている。このような技術としては、R - T - B 系合金の焼結体の外部から Dy を蒸着し、これを内部の粒界に拡散させる手法（例えば、特許文献 1 および特許文献 2 参照）や、R - T - B 系合金の焼結体表面に Dy のフッ化物などを塗布する方法（例えば、特許文献 3 参照）、Dy 濃度の高い原料を添加してコアシェル型構造を得る方法（例えば、非特許文献 1 参照）等が検討されている。

40

## 【0006】

また、R - T - B 系磁石の保磁力の発現機構について、熱処理による効果を調べた結果が報告されている。具体的には、熱処理により粒界に極薄いアモルファス層が形成され、Nd リッチ相とともに Cu 濃縮相が存在すること（例えば、非特許文献 2 参照）や、Cu の存在により液相が存在して Nd - リッチ相間の濡れ性が向上すること（例えば、非特許文献 3 参照）などが報告されている。

50

## 【0007】

また、R - T - B系磁石を作製する際には、一般に、微細な組織を有する合金をジェットミルなどで4 ~ 6  $\mu\text{m}$ に粉碎し、これを磁場中で配向させながら成形、焼結している。また、合金を粉碎する際に粉末を3  $\mu\text{m}$ 以下まで細かくし、焼結後に得られる磁石粒子の大きさを小さくすることで、保磁力を向上させてDyの使用量を削減する取り組みも行われている（例えば、特許文献4参照）。

## 【0008】

また、配向率の高い焼結磁石が得られる技術として、組成の異なる第1合金微粉末と第2合金微粉末とを混合し、混合粉末を用意する工程と、配向磁界として反転磁界を印加しながら前記混合粉末を圧縮成形することによって成形体を得る工程と、成形体を焼結することによって焼結体を得る工程とを包含する希土類焼結磁石の製造方法が提案されている（例えば、特許文献5参照）。

10

## 【先行技術文献】

## 【特許文献】

## 【0009】

【特許文献1】国際公開第2007/088718号パンフレット

【特許文献2】国際公開第2008/032667号パンフレット

【特許文献3】特許第4450239号公報

【特許文献4】特開2008-263324号公報

【特許文献5】特許第04483630号公報

20

## 【非特許文献】

## 【0010】

【非特許文献1】杉本、粉体及び粉末冶金、Vol. 57、No. 6、pp 395 - 400 (2010)

【非特許文献2】W. F. Li et al、Acta Materialia、57、pp 1337 - 1346 (2009)

【非特許文献3】松浦ら、電気学会マグネティックス研究会資料、Vol. MAG - 09、No. 168 - 189、pp 77 - 81 (2009)

## 【発明の概要】

## 【発明が解決しようとする課題】

30

## 【0011】

しかしながら、従来技術では、以下に示すように、高い保磁力と高い配向率とを備えたR - T - B系磁石を実現することは困難であった。

すなわち、R - T - B系合金中におけるDy濃度を高くすると、焼結後に保磁力(Hcj)の高いR - T - B系磁石が得られる。しかしながら、R - T - B系合金中のDy濃度を高くすると、R - T - B系磁石の磁化(Br)が低下してしまう。

## 【0012】

また、希土類元素の種類や濃度の異なる合金粉末を混合してなる混合粉末を用いて、R - T - B系磁石を製造した場合、R - T - B系磁石の配向率を高くすることができるため、R - T - B系磁石の磁化(Br)を向上させることができる。しかし、混合粉末を用いてR - T - B系磁石を製造した場合であっても、得られたR - T - B系磁石の保磁力(Hcj)が不十分であり、高い配向率を確保しつつ、保磁力をより一層向上させることが要求されていた。

40

## 【0013】

本発明は、上記事情に鑑みてなされたものであり、高い配向率と高い保磁力(Hcj)が得られるR - T - B系希土類永久磁石用合金材料およびこれを用いたR - T - B系希土類永久磁石の製造方法を提供することを目的とする。

また、上記のR - T - B系希土類永久磁石の製造方法により製造された優れた磁気特性を有するR - T - B系希土類永久磁石を用いたモーター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】

50

## 【 0 0 1 4 】

本発明者らは、上記課題を解決するために、鋭意検討を重ねた。その結果、組成の異なる R - T - B 系合金からなる複数の合金と、金属粉末とを含む R - T - B 系希土類永久磁石用合金材料とすることで、高い配向率 ( $B_r / J_s$ ) と高い保磁力 ( $H_c j$ ) を有する R - T - B 系磁石が得られる R - T - B 系希土類永久磁石用合金材料となることを見出した。

## 【 0 0 1 5 】

この効果は、以下の作用によって得られると推測される。

すなわち、R - T - B 系合金を粉砕して合金粉末を製造する場合における R - T - B 系合金の粉砕性は、R - T - B 系合金に含まれる希土類の量などによって異なるものとなる。したがって、例えば、組成の異なる R - T - B 系合金からなる複数種の合金を、同時または個別に粉砕して複数種の R - T - B 系合金粉末を製造すると、出発合金の微細組織および合金組成により粉砕性が異なるために同一条件で粉砕しても粒度分布の異なる複数種の R - T - B 系合金粉末となる。

10

## 【 0 0 1 6 】

このような複数種の R - T - B 系合金粉末を混合してなる混合粉末を、磁場成型して焼結すると、混合粉末に含まれる配向率を低下させる原因となる微小な結晶粒が、それより大きな結晶粒に取り込まれて消失するため、R - T - B 系磁石の配向率が向上すると考えられる。さらに、このような混合粉末に希土類元素を含まない金属粉末を添加すると、非磁性相である粒界相の濡れ性が改善されるとともに、磁性粒子自体の固有保磁力を向上させる効果が得られると推定される。

20

## 【 0 0 1 7 】

しかし、組成の異なる R - T - B 系合金からなる複数の合金と、金属粉末とを含む R - T - B 系希土類永久磁石用合金材料を用いた場合であっても、これを焼結して得られた R - T - B 系磁石の保磁力が十分に得られない場合があった。そこで、本発明者は、R - T - B 系合金からなる複数の合金に含まれる Dy 含有量に着目して、鋭意検討を重ねた。

## 【 0 0 1 8 】

その結果、組成の異なる R - T - B 系合金からなる複数の合金と、金属粉末とを含み、複数の合金に含まれる最も Dy 含有量の多い R - T - B 系合金が 17 質量% 以上の Dy を含有し、最も Dy 含有量の多い R - T - B 系合金と最も Dy 含有量の濃度差の小さい別の R - T - B 系合金と、最も Dy 含有量の多い R - T - B 系合金との Dy 含有量の濃度差が 5 質量% 以上である場合、Dy 含有量が少ない合金は Dy 含有量の多い合金に比べて磁場成形時に配向しやすく、高い配向率 ( $B_r / J_s$ ) が達成でき、さらに金属粉末を添加することで主相と粒界相の濡れ性が改善されるために十分に高い保磁力 ( $H_c j$ ) を有する R - T - B 系磁石が得られることを見出し、本発明を想到した。

30

## 【 0 0 1 9 】

すなわち本発明は、下記の各発明を提供するものである。

( 1 ) 組成の異なる複数の R - T - B 系合金と金属粉末とを含み、各 R - T - B 系合金が、希土類元素から選ばれる 2 種以上である R と、Fe を必須とする遷移金属である T と、B および不可避不純物からなり、前記複数の R - T - B 系合金のうち最も Dy 含有量の多い第 1 合金が、17 質量% 以上の Dy を含有するものであり、前記複数の R - T - B 系合金のうち前記第 1 合金と最も Dy 含有量の濃度差の小さい第 2 合金が、前記第 1 合金との Dy 含有量の濃度差が 5 質量% 以上であることを特徴とする R - T - B 系希土類永久磁石用合金材料。

40

## 【 0 0 2 0 】

( 2 ) 前記金属粉末が、Al、Fe、Si、Ta、Ti、Zr のうちから選ばれる 1 種または 2 種以上、またはこれらの金属を含む合金であることを特徴とする ( 1 ) に記載の R - T - B 系希土類永久磁石用合金材料。

( 3 ) 前記金属粉末が、0.02 質量% ~ 6 質量% 含まれていることを特徴とする ( 1 ) または ( 2 ) 記載の R - T - B 系希土類永久磁石用合金材料。

50

(4) 前記組成の異なる複数の R - T - B 系合金の全てを混合したときの組成における Dy 含有量が 2 質量% ~ 20 質量%であることを特徴とする(1) ~ (3) いずれかに記載の R - T - B 系希土類永久磁石用合金材料。

【0021】

(5) (1) ~ (4) のいずれかに記載の R - T - B 系希土類永久磁石用合金材料を成形して焼結することを特徴とする R - T - B 系希土類永久磁石の製造方法。

(6) (5) に記載の R - T - B 系希土類永久磁石の製造方法により製造された R - T - B 系希土類永久磁石を備えることを特徴とするモーター。

【発明の効果】

【0022】

本発明の R - T - B 系希土類永久磁石用合金材料は、組成の異なる複数の R - T - B 系合金と金属粉末とを含み、各 R - T - B 系合金が、希土類元素から選ばれる 2 種以上である R と、Fe を必須とする遷移金属である T と、B および不可避不純物からなり、前記複数の R - T - B 系合金のうち最も Dy 含有量の多い第 1 合金が、17 質量%以上の Dy を含有するものであり、前記複数の R - T - B 系合金のうち前記第 1 合金と最も Dy 含有量の濃度差の小さい第 2 合金が、前記第 1 合金との Dy 含有量の濃度差が 5 質量%以上であるので、これを成形して焼結することにより、高い配向率と高い保磁力を有し、モーターに好適に用いられる優れた磁気特性を有する R - T - B 系希土類永久磁石を提供できる。

【図面の簡単な説明】

【0023】

【図 1】図 1 は、実験例 1 ~ 20 の配効率を示したグラフである。

【発明を実施するための形態】

【0024】

以下、本発明の実施形態について詳細に説明する。

「R - T - B 系希土類永久磁石用合金材料」

本実施形態の R - T - B 系希土類永久磁石用合金材料(以下、「永久磁石用合金材料」と略記する)は、組成の異なる複数の R - T - B 系合金と金属粉末とを含むものである。永久磁石用合金材料に含まれる各 R - T - B 系合金は、希土類元素から選ばれる 2 種以上である R と、Fe を必須とする遷移金属である T と、B (ホウ素) および不可避不純物からなるものとされている。

【0025】

本実施形態の永久磁石用合金材料においては、複数の R - T - B 系合金のうち最も Dy 含有量の多い第 1 合金が、17 質量%以上の Dy を含有するものとされている。また、複数の R - T - B 系合金のうち第 1 合金と最も Dy 含有量の濃度差の小さい第 2 合金が、第 1 合金との Dy 含有量の濃度差が 5 質量%以上であるものとされている。

第 1 合金の Dy 含有量が 17 質量%未満であったり、第 2 合金と第 1 合金との Dy 含有量の濃度差が 5 質量%未満であったりすると、配向の不十分な粉末が多数残留することになり配向率の向上が不十分なものとなる。

【0026】

組成の異なる複数の R - T - B 系合金の全てを混合したときの組成(以下、「混合合金組成」という場合がある)は、優れた磁気特性を有する R - T - B 系磁石が得られるものとするために、R が 27 ~ 35 質量%、好ましくは 30 ~ 32 質量%、B が 0.85 ~ 1.3 質量%、好ましくは 0.87 ~ 0.98 質量%、T が残部と不可避の不純物からなるものであることが好ましい。

【0027】

混合合金組成に含まれる R が 27 質量%未満であると、これを用いて得られた R - T - B 系磁石の保磁力が不十分となる場合があり、R が 35 質量%を超えると R - T - B 系磁石の磁化(B<sub>r</sub>)が不十分となるおそれがある。

また、混合合金組成に含まれる B が 0.85 質量%未満であると、これを用いて得られた R - T - B 系磁石の保磁力が不十分となる場合があり、B が 1.3 質量%を超えると R

10

20

30

40

50

- T - B系磁石の磁化が著しく低下するおそれがある。

【0028】

また、各R - T - B系合金のRに含まれるDy以外の希土類元素としては、Sc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Ho、Er、Tm、Yb、Luが挙げられ、中でも特に、Nd、Pr、Tbが好ましく用いられる。また、各R - T - B系合金のRは、Ndを主成分とすることが好ましい。

【0029】

また、混合合金組成中に含まれるDyの含有量は、2質量%～20質量%とされていることが好ましく、2質量%～10質量%含まれていることがより好ましく、さらに4質量%～10質量%含まれていることが好ましい。混合合金組成中に含まれるDyが20質量%以上であると、金属粉末を含む永久磁石用合金材料であっても、Dyの含有量を増やすことによるR - T - B系磁石の保磁力を向上させる効果が得られなくなるとともに、R - T - B系磁石の磁化(Br)の低下が顕著となるため好ましくない。混合合金組成中に含まれるDyが2質量%以下であると、Dyを含有することによるR - T - B系磁石の保磁力の向上効果が十分に得られない恐れがある。

10

【0030】

各R - T - B系合金に含まれるTは、Feを必須とする遷移金属である。各R - T - B系合金のTに含まれるFe以外の遷移金属としては、Co、Niなどが挙げられる。R - T - B系合金のTがFe以外にCoを含む場合、Tc(キュリー温度)を改善することができ好ましい。

20

また、各R - T - B系合金に含まれるBは、ホウ素であるが、一部をCまたはNで置換できる。

【0031】

また、混合合金組成には、R - T - B系磁石の保磁力を向上させるために、Al、Cu、Gaから選ばれるいずれか1種または2種以上が含まれていることが好ましい。

Gaは混合合金組成中に0.03質量%～0.3質量%含まれていることがより好ましい。混合合金組成中にGaが0.03質量%以上含まれている場合、R - T - B系磁石の保磁力を効果的に向上させることができ、好ましい。しかし、混合合金組成中のGaの含有量が0.3質量%を超えるとR - T - B系磁石の磁化が低下するため好ましくない。

【0032】

30

また、永久磁石用合金材料中の酸素濃度は、低いほど好ましいが、永久磁石用合金材料中に酸素が0.03質量%～0.5質量%含まれていても、十分な磁気特性を達成できる。永久磁石用合金材料中に含まれる酸素含有量が0.5質量%を超える場合、磁気特性が著しく低下するおそれがある。永久磁石用合金材料中に含まれる酸素含有量は、0.05質量%～0.2質量%であることが好ましい。

【0033】

また、永久磁石用合金材料中の炭素濃度は、低いほど好ましいが、永久磁石用合金材料中に炭素が0.003質量%～0.5質量%含まれていても、十分な磁気特性を達成できる。永久磁石用合金材料中に含まれる炭素含有量が0.5質量%を超える場合、磁気特性が著しく低下するおそれがある。永久磁石用合金材料中に含まれる炭素含有量は、0.005質量%～0.2質量%であることが好ましい。

40

【0034】

本実施形態の永久磁石用合金材料は、組成の異なる複数のR - T - B系合金と金属粉末とを含むものであり、第1合金と第2合金と金属粉末のみからなるものであってもよいし、例えば、第1合金と第2合金と金属粉末に加えて、さらに第1合金および第2合金と組成の異なるR - T - B系合金からなる第3合金を含むものであってもよい。

【0035】

組成の異なる複数のR - T - B系合金を構成する各R - T - B系合金は、例えば、SC(ストリップキャスト)法により合金溶湯を鑄造して鑄造合金薄片を製造し、得られた鑄造合金薄片を、例えば、水素解砕法などにより解砕し、粉碎機により粉碎する方法などに

50

よって得られる。

なお、本実施形態においては、SC法を用いてR-T-B系合金を製造する場合について説明したが、本発明において用いられる各R-T-B系合金は、SC法を用いて製造されるものに限定されるものではない。例えば、各R-T-B系合金は、遠心鑄造法、ブックモールド法などを用いて鑄造してもよい。

#### 【0036】

水素解砕法としては、室温で鑄造合金薄片に水素を吸蔵させ、300程度の温度で熱処理した後、減圧して水素を脱気し、その後、500程度の温度で熱処理して鑄造合金薄片中の水素を除去する方法などが挙げられる。水素解砕法において水素の吸蔵された鑄造合金薄片は、体積が膨張するので、合金内部に容易に多数のひび割れ(クラック)が発生し、解砕される。

10

なお、組成の異なる複数のR-T-B系合金である複数種の鑄造合金薄片の解砕は、各組成毎に個別に行ってもよいし、複数種の鑄造合金薄片の一部または全部を混合して複数種の鑄造合金薄片に対して同時に行ってもよい。

#### 【0037】

また、水素解砕された鑄造合金薄片を粉砕する方法としては、ジェットミルなどの粉砕機により、水素解砕された鑄造合金薄片を例えば0.6MPaの高圧窒素を用いて平均粒度3~4.5 $\mu$ mに微粉砕して粉末とする方法などが挙げられる。

なお、組成の異なる複数のR-T-B系合金である水素解砕された複数種の鑄造合金薄片の粉砕は、水素解砕前に、複数種の鑄造合金薄片の一部または全部が混合されている場合、複数種の鑄造合金薄片に対して同時に行うことが好ましいが、各組成毎に個別に行ってもよい。

20

#### 【0038】

また、永久磁石用合金材料に含まれる金属粉末としては、Al、Fe、Si、Ta、Ti、Zrのうちから選ばれる1種または2種以上、またはこれらの金属を含む合金などを用いることができる。また、永久磁石用合金材料に含まれる金属粉末としては、永久磁石用合金材料を用いて得られたR-T-B系磁石における粒界相の濡れ性を効果的に改善して保磁力を向上させるために、Al、Fe、Si、Ta、Ti、Zr、Ti-Al合金のうちから選ばれる1種または2種以上を用いることが好ましい。

#### 【0039】

金属粉末は、他の磁気特性に支障を来たすことなく、保磁力(Hcj)を向上させるために、永久磁石用合金材料中に0.02質量%~6質量%含まれていることが好ましく、0.2質量%~6質量%含まれていることがより好ましい。永久磁石用合金材料中の金属粉末の含有量が0.02質量%未満であると、保磁力(Hcj)を向上させる効果が十分に得られない恐れがある。また、金属粉末の含有量が6質量%を超えると、磁化(Br)や最大エネルギー積(BHmax)などの磁気特性の低下が顕著となるため好ましくない。

30

#### 【0040】

また、永久磁石用合金材料に含まれる金属粉末の平均粒度(d50)は、0.01~200 $\mu$ mの範囲であることが好ましい。なお、永久磁石用合金材料中の金属粉末は、微細で均一に分布していてもよいが、微細で均一に分布していなくてもよく、例えば、粒度1 $\mu$ m以上であってもよいし、5 $\mu$ m以上に凝集していてもよい。

40

#### 【0041】

本実施形態の永久磁石用合金材料は、組成の異なる複数のR-T-B系合金の粉末の全てと金属粉末とが混合されてなる混合物であることが好ましい。

なお、永久磁石用合金材料を構成する組成の異なる複数のR-T-B系合金と金属粉末とは、組成の異なる複数のR-T-B系合金が、鑄造合金薄片を粉砕してR-T-B系合金からなる粉末とされた状態で混合してもよいが、例えば、組成の異なる複数のR-T-B系合金が、鑄造合金薄片である状態で、金属粉末と混合して永久磁石用合金材料とし、その後、鑄造合金薄片の含まれる永久磁石用合金材料を粉砕してもよい。この場合、鑄造

50

合金薄片と金属粉末とからなる永久磁石用合金材料を、鑄造合金薄片の粉碎方法と同様にして粉碎して粉末とすることが好ましい。また、組成の異なる複数の R - T - B 系合金と金属粉末との混合は、組成の異なる複数の R - T - B 系合金の全てと金属粉末とを一度に混合してもよいが、段階的に混合してもよい。例えば、組成の異なる複数の R - T - B 系合金のうち一部を鑄造合金薄片の状態と金属粉末と混合し、残部を粉末とされた状態で金属粉末と混合してもよい。

#### 【0042】

次に、このようにして得られた永久磁石用合金材料を用いて R - T - B 系希土類永久磁石を製造する方法を説明する。

#### 「R - T - B 系希土類永久磁石の製造方法」

本実施形態の R - T - B 系磁石を製造する方法としては、例えば、上述した永久磁石用合金材料に、潤滑剤として 0.02 質量% ~ 0.03 質量% のステアリン酸亜鉛を添加し、横磁場中成型機などを用いてプレス成形して、真空中で 1030 ~ 1200 で焼結し、その後 400 ~ 800 で熱処理する方法などが挙げられる。

#### 【0043】

なお、組成の異なる複数の R - T - B 系合金と金属粉末との混合は、上述したように、組成の異なる複数の R - T - B 系合金が、鑄造合金薄片である状態や、鑄造合金薄片を粉碎して R - T - B 系合金からなる粉末とされた状態で行ってもよいが、例えば、組成の異なる複数の R - T - B 系合金からなる粉末に、ステアリン酸亜鉛などの潤滑剤を添加した後に行ってもよい。

#### 【0044】

本実施形態の永久磁石用合金材料は、組成の異なる複数の R - T - B 系合金と金属粉末とを含み、各 R - T - B 系合金が、希土類元素から選ばれる 2 種以上である R と、Fe を必須とする遷移金属である T と、B および不可避不純物からなり、前記複数の R - T - B 系合金のうち最も Dy 含有量の多い第 1 合金が、17 質量% 以上の Dy を含有するものであり、前記複数の R - T - B 系合金のうち前記第 1 合金と最も Dy 含有量の濃度差の小さい第 2 合金が、前記第 1 合金との Dy 含有量の濃度差が 5 質量% 以上であるので、これを成形して焼結することにより、高い配向率と高い保磁力を有し、モーターに好適に用いられる優れた磁気特性を有する R - T - B 系希土類永久磁石を実現できる。

#### 【0045】

また、本実施形態の R - T - B 系希土類永久磁石の製造方法は、本実施形態の永久磁石用合金材料を成形して焼結することにより R - T - B 系希土類永久磁石を製造する方法であるので、優れた磁気特性を有する R - T - B 系希土類永久磁石が得られる。

#### 【実施例】

#### 【0046】

Nd 金属 (純度 99 wt% 以上)、Dy 金属 (純度 99 wt% 以上)、フェロボロン (Fe 80%、B 20 wt%)、Co 金属 (純度 99 wt% 以上)、Al 金属 (純度 99 wt% 以上)、Cu 金属 (純度 99 wt% 以上)、鉄塊 (純度 99 wt% 以上) を表 1 に示す合金 A ~ 合金 D の成分組成になるように秤量し、アルミナるつぼに装填した。

#### 【0047】



【表 1】

	R合計	Nd	Dy	B	Co	Al	Cu	Fe
A	30.0	30.0	0.0	0.94	1.0	0.15	0.10	bal.
B	31.0	27.0	4.0	0.94	1.0	0.15	0.10	bal.
C	31.0	22.0	9.0	0.94	1.0	0.15	0.10	bal.
D	33.0	9.0	24.0	0.94	1.0	0.15	0.10	bal.

(wt%)

10

20

30

## 【0048】

その後、アルミナるつぼを高周波真空誘導炉の炉内に入れ、炉内をArで置換し、1450℃まで加熱して溶融させて溶湯とした。次いで、溶湯を水冷銅ロールに注ぎ、SC（ストリップキャスト）法を用いて、ロール周速度1.0m/秒で、平均厚み0.3mm程度、Rリッチ相（希土類リッチ相）間隔3～15μm、Rリッチ相以外（主相）の体積率（138-1.6r）（ただし、rは希土類（Nd、Dy）の含有量）となるように制御し、鑄造合金薄片を得た。

40

## 【0049】

このようにして得られた鑄造合金薄片のRリッチ相間隔および主相の体積率は、以下に示す方法により調べた。

すなわち、平均厚みの±10%以内の鑄造合金薄片を樹脂に埋め込んで研磨し、走査電子顕微鏡（日本電子JSM-5310）を用いて反射電子像を撮影し、300倍の写真を得た。そして、得られた鑄造合金薄片の写真を用いて、Rリッチ相の間隔を測定すると

50

もに主相の体積率を算出した。その結果、表 1 に示した合金 A ~ 合金 D の R リッチ相間隔は 4 ~ 5  $\mu\text{m}$  であり、主相の体積率は 90 ~ 95 % であった。

【 0 0 5 0 】

次に、表 1 に示す合金 A ~ 合金 D の鑄造合金薄片を秤量し、V 字状の筒から構成される V ブレンダーを用いて表 2 に示す混合比率で混合した。合金 A ~ 合金 D の鑄造合金薄片を混合してなる合金 1 ~ 合金 3 の組成（混合後組成）を表 2 に示す。なお、表 2 に示す合金 4 は表 1 に示す合金 C である。

【 0 0 5 1 】

【表 2】

合金番号	混合比率	混合後組成(wt%)							
		R合計	Nd	Dy	B	Co	Al	Cu	Fe
1	A;50.0%-B;50.0%	30.5	28.5	2.0	0.94	1.0	0.15	0.10	bal.
2	A;83.4%-D;16.6%	30.5	26.5	4.0	0.94	1.0	0.15	0.10	bal.
3	B;75.0%-D;25.0%	31.5	22.5	9.0	0.94	1.0	0.15	0.10	bal.
4	C;100%	31.0	22.0	9.0	0.94	1.0	0.15	0.10	bal.

10

20

30

40

## 【0052】

次に、鑄造合金薄片を直径5mm程度になるように粗粉碎し、室温の水素中に挿入して水素を吸蔵させた。続いて、粗粉碎して水素を吸蔵させた鑄造合金薄片を300において熱処理を行い水素解砕した。その後、減圧して水素を脱気し、さらに500まで加熱する熱処理を行って鑄造合金薄片中の水素を放出除去し、室温まで冷却した。

次に、水素解砕された鑄造合金薄片に、潤滑剤としてステアリン酸亜鉛0.025wt

50

%を添加し、ジェットミル（ホソカワミクロン100AFG）により、0.6MPaの高圧窒素を用いて、水素解砕された鑄造合金薄片を平均粒度4.5 $\mu$ mに微粉碎して粉末とした。

【0053】

このようにして得られたR-T-B系合金からなる粉末（合金1～合金4）に、表3に示す平均粒度の金属粉末を、表4に示す割合（永久磁石用合金材料に含まれる金属粉末の濃度（質量%））で添加して混合することにより、永久磁石用合金材料を製造した。なお、金属粉末の粒度は、レーザ回析計によって測定した。

【0054】

【表3】

10

金属粉末	平均粒度 ( $\mu$ m)
Al	48
Fe	6
Si	20
Ta	12
Ti-Al	170
Ti	25
Zr	31

20

【0055】

次に、このようにして得られた永久磁石用合金材料を、横磁場中成型機を用いて圧力0.8t/cm<sup>2</sup>でプレス成形して圧粉体とし、真空中で焼結した。焼結温度は、合金によって異なり、合金1は1050～1060、合金2は1060～1080、合金3および合金4は1080～1110で焼結した。その後800および530で熱処理して冷却することにより、表3に示す実験例1～実験例20のR-T-B系磁石を得た。

【0056】

そして、得られた実験例1～実験例20のR-T-B系磁石それぞれの磁気特性をBHカーブトレーサー（東英工業TPM2-10）で測定した。その結果を表4に示す。

30

【0057】

【表 4】

実験例	合金	金属粉末	添加量 (wt%)	Hcj (kOe)	Hcj 向上率(%)	Br (kG)	Br/Js (%)	SR (%)	BHmax (MGOe)
1	1	無し	0.00	18.5	—	13.8	94.3	95.6	48.0
2		Al	0.20	19.8	7.0	13.6	94.7	95.2	48.2
3	2	無し	0.00	22.8	—	12.9	94.9	95.9	40.3
4		Fe	0.20	24.0	5.4	12.8	95.2	95.0	41.0
5		Ta	2.00	25.1	10.3	12.8	94.9	95.5	39.5
6			6.00	26.0	14.2	12.5	94.8	94.0	38.8
7	3	無し	0.00	30.0	—	11.7	95.3	94.6	33.6
8		Fe	1.00	34.3	14.3	11.7	94.8	94.9	33.3
9			2.00	32.9	9.6	11.6	94.9	95.4	33.1
10		Ta	2.00	34.7	15.5	11.6	94.9	95.0	32.8
13		Si	0.20	32.8	9.3	12.0	95.2	95.2	34.9
14		Ti-Al	0.20	33.0	9.8	11.9	95.1	94.9	34.9
15	Al	0.01	32.6	8.7	11.7	95.1	95.0	34.0	
16		0.20	32.8	9.3	11.6	95.3	94.8	34.8	
17		Ti	0.20	32.2	7.3	11.6	94.9	95.0	34.0
18	Zr	0.20	32.3	7.7	11.7	95.1	95.1	33.9	
19	4	無し	0.00	29.8	—	11.7	93.6	90.8	33.2
20		Fe	1.00	31.0	3.9	11.7	93.6	90.1	33.3

## 【0058】

なお、表3において「Hcj」とは保磁力であり、「Br」とは磁化であり、「SR」とは角形性であり、「BHmax」とは最大エネルギー積である。また、これらの磁気特性の値は、それぞれ5個のR-T-B系磁石の測定値の平均である。

また、「Js」は飽和磁化で物質がその温度で有しうる最大の磁化であり、本例では10Tの磁界を印加して測定したものである。「Br/Js」は配向率であり、磁石中の結晶がどれだけ磁化容易軸にそろっているかを示す指標である。実験例1～実験例20のR-T-B系磁石の配向率を図1に示す。

## 【0059】

10

20

30

40

50

表4に示すように、実験例2は、本発明の比較例であり、最もDy含有量の多いR-T-B系合金(表1の合金B)のDy含有量が17質量%未満である合金1に、Alを0.2wt%添加したものである。また、実験例16は、本発明の実施例であり、最もDy含有量の多いR-T-B系合金(表1の合金D)のDy含有量が17質量%以上であり、2種類のR-T-B系合金のDy含有量の濃度差が5質量%以上である合金3に、Alを0.2wt%添加したものである。

【0060】

Alの添加量が同じである実験例2と実験例16とを比較すると、Alを添加したことによる保磁力(Hcj)の向上幅は、実験例2(表2の合金1)が1.3kOeであるのに対し、実験例16(表2の合金3)は2.8kOeとなっている。したがって、Alを添加したことによる保磁力の向上幅は、実験例16では、実験例2の2倍以上となっている。

10

【0061】

また、表4に示すように、実験例7および実験例19は、ともに金属粉末を含まない本発明の比較例である。表2および表4に示すように、実験例7の合金3と実験例19の合金4は、ともに混合後組成中のDy濃度が9質量%であるものであり、保磁力は同等である。

【0062】

また、表4に示すように、実験例8は、本発明の実施例であり、合金3にFeを1wt%添加したものである。また、実験例20は、本発明の比較例であり、1種類のR-T-B系合金(表1の合金C)からなる合金4にFeを1wt%添加したものである。Feの添加量が同じである実験例8と実験例20とを比較すると、実験例8では保磁力(Hcj)が34.3kOeとなっており、金属粉末を含まない実験例7と比較して、保磁力が4.3kOe向上している。これに対し、実験例20では保磁力は31kOeであり、金属粉末を含まない実験例19と比較して、保磁力の向上は1.2kOeとなっている。

20

したがって、本発明によれば、組成の異なる複数のR-T-B系合金の全てを混合したときの組成中に含まれるDyの含有量を多くすることなく、R-T-B系磁石の保磁力を向上させることが可能であることが分かる。

【0063】

また、実験例8の配向率(Br/Js)は94.8%であり、実験例20の配向率(Br/Js)は93.6%であり、実験例8の方が高い配向率を示している。

30

このことから、本発明のR-T-B系希土類永久磁石用合金材料を成形して焼結することにより、高い保磁力と高い配向率とを備えたR-T-B系磁石が得られることが分かる。

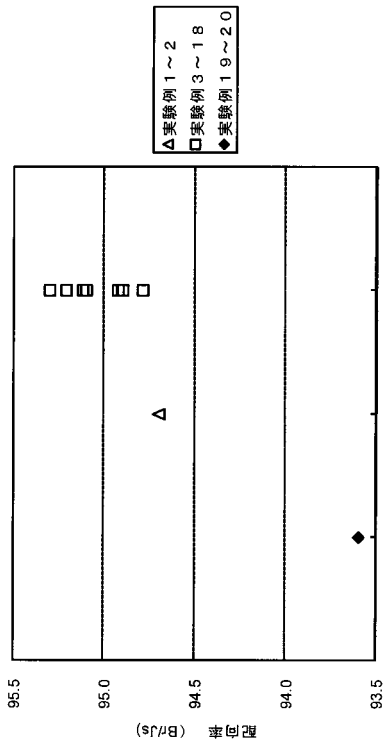
【0064】

また、図1より、1種類のR-T-B系合金(表1の合金C)からなる合金4を用いた実験例19および実験例20と比較して、2種類のR-T-B系合金からなる合金1~合金3を用いた実験例1~実験例18は、高い配向率を示していることが分かる。

さらに、最もDy含有量の多いR-T-B系合金(表1の合金B)のDy含有量が17質量%未満である合金1を用いた実験例1および実験例2と比較して、最もDy含有量の多いR-T-B系合金(表1の合金B)のDy含有量が17質量%以上であり、2種類のR-T-B系合金のDy含有量の濃度差が5質量%以上である合金2および合金3を用いた実験例3~実験例18は、高い配向率を示していることが分かる。

40

【 図 1 】



---

フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I  
H 0 1 F 1/08 (2006.01) H 0 1 F 1/08 B  
B 2 2 F 1/00 J

(72)発明者 中島 健一朗  
埼玉県秩父市下影森 1 5 0 5 番地 昭和電工株式会社内  
(72)発明者 山崎 貴司  
埼玉県秩父市下影森 1 5 0 5 番地 昭和電工株式会社内

審査官 米田 健志

(56)参考文献 特開昭63-025904 ( J P , A )  
国際公開第2005/043558 ( W O , A 1 )  
特開2007-266199 ( J P , A )  
特開2009-249729 ( J P , A )

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)  
B 2 2 F 3 / 0 0