

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第6094612号  
(P6094612)

(45) 発行日 平成29年3月15日 (2017.3.15)

(24) 登録日 平成29年2月24日 (2017.2.24)

(51) Int. Cl.	F I
HO 1 F 41/02 (2006.01)	HO 1 F 41/02 G
HO 1 F 1/057 (2006.01)	HO 1 F 1/057 170
C 2 2 C 38/00 (2006.01)	C 2 2 C 38/00 303D
B 2 2 F 3/00 (2006.01)	B 2 2 F 3/00 F

請求項の数 3 (全 26 頁)

(21) 出願番号	特願2015-38694 (P2015-38694)	(73) 特許権者	000005083 日立金属株式会社 東京都港区港南一丁目2番70号
(22) 出願日	平成27年2月27日 (2015.2.27)	(74) 代理人	100100158 弁理士 鮫島 睦
(65) 公開番号	特開2015-179841 (P2015-179841A)	(74) 代理人	100145403 弁理士 山尾 憲人
(43) 公開日	平成27年10月8日 (2015.10.8)	(72) 発明者	深川 智機 大阪府三島郡島本町江川2丁目15番17号 日立金属株式会社 磁性材料研究所内
審査請求日	平成28年7月21日 (2016.7.21)	(72) 発明者	坂下 信一郎 大阪府三島郡島本町江川2丁目15番17号 日立金属株式会社 磁性材料研究所内
(31) 優先権主張番号	特願2014-37838 (P2014-37838)	審査官	佐久 聖子
(32) 優先日	平成26年2月28日 (2014.2.28)		最終頁に続く
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		
早期審査対象出願			

(54) 【発明の名称】 R-T-B系焼結磁石の製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

R<sub>2</sub>T<sub>14</sub>B化合物 (Rは希土類元素の少なくとも一種でありNdを必ず含む、Tは遷移金属元素のうち少なくとも一種でありFeを必ず含む)と、

R<sub>6</sub>T<sub>13</sub>M化合物 (Rは希土類元素のうち少なくとも一種でありNdを必ず含む、Tは遷移金属元素のうち少なくとも一種でありFeを必ず含む、MはGa、Al、CuおよびSiのうち少なくとも一種でありGaを必ず含む)と、

Tiの硼化物と、

が共存する組織を有し、

任意の断面におけるR<sub>6</sub>T<sub>13</sub>M化合物の面積比率が2%以上であるR-T-B系焼結磁石の製造方法であって、

R : 27 ~ 35 質量% (Rは希土類元素のうち少なくとも一種でありNdを必ず含む)

B : 0.9 ~ 1.0 質量%、

Ga : 0.15 ~ 0.6 質量%、

残部T (Tは遷移金属元素のうち少なくとも一種でありFeを必ず含む) および不可避的不純物を含有する合金粉末を準備する工程と、

Tiの水素化物の粉末を準備する工程と、

合金粉末とTiの水素化物の粉末とを混合後の混合粉末100質量%に含有されるTiが0.3質量%以下となるように混合し混合粉末を準備する工程と、

10

20

混合粉末を成形し成形体を準備する工程と、  
成形体を焼結し R - T - B 系焼結磁石素材を準備する工程と、  
R - T - B 系焼結磁石素材に熱処理を施す工程と、  
を含むことを特徴とする R - T - B 系焼結磁石の製造方法。

【請求項 2】

R - T - B 系焼結磁石素材に熱処理を施す工程に代えて、  
Dy および / または Tb を含む金属、合金または化合物からなる RH 拡散源を準備する工程と、

RH 拡散源の Dy および / または Tb を R - T - B 系焼結磁石素材に供給、拡散させる RH 供給拡散処理を施す工程と、

RH 供給拡散処理工程後の R - T - B 系焼結磁石素材に熱処理を施す工程と、  
を含むことを特徴とする請求項 1 に記載の R - T - B 系焼結磁石の製造方法。

【請求項 3】

B : 0.91 ~ 1.0 質量%であることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の R - T - B 系焼結磁石の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は R - T - B 系焼結磁石の製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

R - T - B 系焼結磁石 ( R は希土類元素のうち少なくとも一種であり Nd を必ず含む、T は遷移金属元素のうち少なくとも一種であり Fe を必ず含む ) は永久磁石の中で最も高性能な磁石として知られており、ハードディスクドライブのボイスコイルモータ ( VCM )、電気自動車用 ( EV、HV、PHV など ) モータ、産業機器用モータなどの各種モータや家電製品などに使用されている。

【0003】

R - T - B 系焼結磁石は主として  $R_2T_{14}B$  化合物からなる主相とこの主相の粒界部分に位置する粒界相とから構成されている。主相である  $R_2T_{14}B$  化合物は高い磁化を持つ強磁性材料であり R - T - B 系焼結磁石の特性の根幹をなしている。

【0004】

R - T - B 系焼結磁石は高温で保磁力  $H_c$  (以下、単に「 $H_c$ 」という) が低下するため不可逆熱減磁が起こる。そのため、特に電気自動車用モータに使用される場合、高温下でも高い  $H_c$  を有することが要求されている。

【0005】

R - T - B 系焼結磁石において、主相である  $R_2T_{14}B$  化合物中の R に含まれる軽希土類元素 RL (主として Nd および / または Pr) の一部を重希土類元素 RH (主として Dy および / または Tb) で置換すると  $H_c$  が向上することが知られており、重希土類元素 RH の置換量の増加に伴い  $H_c$  は向上する。

【0006】

しかし、 $R_2T_{14}B$  化合物中の軽希土類元素 RL を重希土類元素 RH で置換すると R - T - B 系焼結磁石の  $H_c$  が向上する一方、残留磁束密度  $B_r$  (以下、単に「 $B_r$ 」という) が低下する。また、重希土類元素、特に Dy などは資源存在量が少ないうえ産出地が限定されているなどの理由から供給が安定しておらず、価格が大きく変動するなどの問題を有している。そのため、近年、ユーザーから重希土類元素 RH をできるだけ使用することなく  $B_r$  を低下させずに  $H_c$  を向上させることが求められている。

【0007】

特許文献 1 には従来一般に用いられてきた R - T - B 系合金に比べ B 量が相対的に少ない特定の範囲に限定するとともに Al、Ga、Cu のうちから選ばれる 1 種以上の金属元素 M を含有させることにより  $R_2T_{17}$  相を生成させ、該  $R_2T_{17}$  相を原料として生成

10

20

30

40

50

させた遷移金属リッチ相 ( $R_6 T_{13} M$ ) の体積率を十分に確保することにより、Dyの含有量を抑制しつつ保磁力の高いR-T-B系希土類焼結磁石が得られることが記載されている。

【0008】

また、R-T-B系焼結磁石の $H_{cJ}$ 向上手段として、R-T-B系焼結磁石に重希土類元素RHを含む金属、合金、化合物などを特定手段によりR-T-B系焼結磁石表面に供給し、熱処理で重希土類元素RHを磁石内部に拡散させ、 $R_2 T_{14} B$ 化合物の外殻部の軽希土類元素RLを重希土類元素RHで置換することにより、 $B_r$ の低下を抑制しつつ $H_{cJ}$ を向上させる方法が種々提案されている。

【0009】

例えば、特許文献2はR-Fe-B系希土類焼結磁石体と重希土類元素RH (Dy、HoおよびTbからなる群から選択された少なくとも1種) を含有するバルク体を処理室内に配置し、それらを700以上1000以下に加熱することにより、バルク体から重希土類元素RHをR-Fe-B系希土類焼結磁石体の表面に供給しつつ重希土類元素RHをR-Fe-B系希土類焼結磁石体の内部に拡散させる方法を開示している。

【0010】

さらに、特許文献3にはDyを4~10質量%含有するR-T-B系合金と1080以上の融点を有する高融点化合物 (Al、Ga、Mg、Nb、Si、Ti、Zrからなる群から選ばれるいずれか1つの酸化物、ホウ化物、炭化物、窒化物、又はケイ化物) とを混合し、成形、焼結することにより、Dy濃度を高くすることなく、高い保磁力が得られ、しかもDyを添加したことによる磁化 ( $B_r$ ) などの磁気特性の低下を抑制できることが記載されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0011】

【特許文献1】国際公開第2013/008756号

【特許文献2】国際公開第2007/102391号

【特許文献3】国際公開第2010/073533号

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0012】

一般に、R-T-B系焼結磁石を製造する際、B原料として、B含有量が必ずしも安定しないフェロボロン合金が用いられている。また、Bは製造工程上、含有量の変動が生じ易く、さらに、高精度に分析することが困難な元素であるため、厳密に管理することが極めて困難である。また、B量が少なくなるほど磁気特性に与える影響が大きくなり、B量の僅かな変動で磁気特性、特に $H_{cJ}$ が大きく変動 (急激に低下) してしまうことを本発明者らは見いだした。

【0013】

特許文献1に記載の発明においては、B量が相対的に少ない特定の範囲に限定されているため、前記の通り、使用原料や製造過程に起因するB量の僅かな変動により $H_{cJ}$ が大きく変動 (急激に低下) するという問題がある。また、特許文献1においては、従来と異なる新たな組成のR-T-B系合金を製造する必要があるため、合金の溶解および鑄造条件、粉碎条件、焼結条件、熱処理条件などの最適条件を全て一から見つけ出す必要があり、また、それらの各条件が現状の製造条件と異なる場合は、新たなR-T-B系合金を製造するたびに各設備の諸条件を変更する必要があるなど、製造に際して工数およびコストの増加を招くという問題がある。

【0014】

さらに、特許文献1によれば従来に比べ $H_{cJ}$ の高いR-T-B系焼結磁石が得られるものの、電気自動車用モータやハイブリッド自動車用モータなどに使用する場合に要求される高い $H_{cJ}$ を満足するためにはDyの使用は不可欠である。従って、Dyの使用量を

10

20

30

40

50

削減するためには特許文献2に開示されるようなR-T-B系焼結磁石の表面から重希土類元素を供給し、内部に拡散させる方法などを適用せざるを得ない。

【0015】

しかし、特許文献1のR-T-B系希土類焼結磁石に特許文献2に開示されるような方法を適用すると角形比 $H_k / H_{cJ}$ （以下、単に「 $H_k / H_{cJ}$ 」という。 $H_k$ はJ[磁化の大きさ]-H[磁界の強さ]曲線の第2象限において、Jが $J_r$ [残留磁化= $B_r$ ]の値に対して一定の割合の値になる位置のHの値。R-T-B系焼結磁石においては一定の割合の値として $0.9 \times J_r$  [ $0.9 \times B_r$ ]が用いられることが多い。)が大幅に低下するという問題があった。

【0016】

また、特許文献3によればDy濃度を高くすることなく高い保磁力が得られるものの、そもそもR-T-B系合金に含有されるDy量が非常に多く(R-T-B系合金中に4~10質量%)、重希土類元素RHをできるだけ使用することなく $B_r$ を低下させずに $H_{cJ}$ を向上させるというユーザーの要求を満足することができない。

【0017】

さらに、特許文献3では高融点化合物としてAl、Ga、Mg、Nb、Si、Ti、Zrからなる群から選ばれるいずれか1つの酸化物、ホウ化物、炭化物、窒化物、又はケイ化物が用いられているが、それらの化合物に含まれる酸素、ホウ素、炭素、窒素、ケイ素などは焼結後においても磁石中に残存し、得られる磁石の磁気特性を劣化させる可能性がある。

【0018】

本発明は、重希土類元素RHをできるだけ使用することなく、 $B_r$ の低下を抑制しつつ高い $H_{cJ}$ および高い $H_k / H_{cJ}$ を有するR-T-B系焼結磁石を安定かつ安価で提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0019】

本発明の態様1に係るR-T-B系焼結磁石の製造方法は、  
 R：27~35質量%（Rは希土類元素のうち少なくとも一種でありNdを必ず含む）、  
 B：0.9~1.0質量%、  
 Ga：0.15~0.6質量%、  
 残部T（Tは遷移金属元素のうち少なくとも一種でありFeを必ず含む）  
 および不可避免的不純物を含有する合金粉末を準備する工程と、  
 Tiの水素化物の粉末を準備する工程と、  
 合金粉末とTiの水素化物の粉末とを混合後の混合粉末100質量%に含有されるTiが0.3質量%以下となるように混合し混合粉末を準備する工程と、  
 混合粉末を成形し成形体を準備する工程と、  
 成形体を焼結しR-T-B系焼結磁石素材を準備する工程と、  
 R-T-B系焼結磁石素材に熱処理を施す工程と、  
 を含む。

【0020】

本発明の態様2に係るR-T-B系焼結磁石の製造方法は、態様1において、  
 R-T-B系焼結磁石素材に熱処理を施す工程に代えて、  
 Dyおよび/またはTbを含む金属、合金または化合物からなるRH拡散源を準備する工程と、  
 RH拡散源のDyおよび/またはTbをR-T-B系焼結磁石素材に供給、拡散させるRH供給拡散処理を施す工程と、  
 RH供給拡散処理工程後のR-T-B系焼結磁石素材に熱処理を施す工程と、  
 を含むことを特徴とする。

【0021】

本発明の態様3に係るR-T-B系焼結磁石の製造方法は、態様1または2において、

10

20

30

40

50

B : 0.91 ~ 1.0 質量%であることを特徴とする。

【0022】

本発明の態様4に係るR-T-B系焼結磁石の製造方法は、態様1から3のいずれかにおいて、

R-T-B系焼結磁石が、

$R_2T_{14}B$ 化合物（Rは希土類元素の少なくとも一種でありNdを必ず含む、Tは遷移金属元素のうち少なくとも一種でありFeを必ず含む）と、

$R_6T_{13}M$ 化合物（Rは希土類元素のうち少なくとも一種でありNdを必ず含む、Tは遷移金属元素のうち少なくとも一種でありFeを必ず含む、MはGa、Al、CuおよびSiのうち少なくとも一種でありGaを必ず含む）と、

Tiの硼化物と、

が共存する組織を有する。

10

【0023】

本発明の態様5に係るR-T-B系焼結磁石の製造方法は、態様4において、

R-T-B系焼結磁石の任意の断面における $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率が1%以上である。

【0024】

本発明の態様6に係るR-T-B系焼結磁石の製造方法は、態様5において、

R-T-B系焼結磁石の任意の断面における $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率が2%以上である。

20

【発明の効果】

【0025】

本発明によれば、重希土類元素RHをできるだけ使用することなく、 $B_r$ の低下を抑制しつつ高い $H_{c_j}$ および高い $H_k/H_{c_j}$ を有するR-T-B系焼結磁石を安定かつ安価で提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【0026】

【図1】実施例3のR-T-B系焼結磁石のTi量と $H_{c_j}$ との関係を示すグラフである。

。

【図2】実施例3のR-T-B系焼結磁石のTi量と $B_r$ との関係を示すグラフである。

30

【図3】実施例3のR-T-B系焼結磁石のTi量と $H_k$ との関係を示すグラフである。

【図4】実施例3のR-T-B系焼結磁石のTi量と $H_k/H_{c_j}$ との関係を示すグラフである。

【図5】実施例4のR-T-B系焼結磁石のTi量と $H_{c_j}$ との関係を示すグラフである。

。

【図6】実施例5のR-T-B系焼結磁石のFE-TEMの組織観察結果を示す写真である。

【図7】図6の部位aの電子線回折の結晶構造を特徴づける回折図形を示す写真である。

【図8】図6の部位bの電子線回折の結晶構造を特徴づける回折図形を示す写真である。

【図9】図6の部位cの電子線回折の結晶構造を特徴づける回折図形を示す写真である。

40

【図10】 $TiB_2$ のX線回折結果を示すグラフである。

【図11】 $Nd_6Fe_{13}Ga$ 合金のX線回折結果を示すグラフである。

【発明を実施するための形態】

【0027】

本発明は従来のR-T-B系焼結磁石とほぼ同様の組成（R、B、GaおよびFeなどを含み特許文献1の焼結磁石に比べB量が高い〔0.9~1.0質量%〕組成）の合金粉末にTiの水素化物の粉末（以下、「Ti水素化物粉末」という）を所定量添加することを特徴とする。これによって、重希土類元素RHをできるだけ使用することなく、 $B_r$ の低下を抑制しつつ高い $H_{c_j}$ および高い $H_k/H_{c_j}$ を有するR-T-B系焼結磁石を提供することができる。

50

## 【0028】

本発明によるR-T-B系焼結磁石が $B_r$ の低下を抑制しつつ高い $H_{cJ}$ および高い $H_k/H_{cJ}$ を有する理由は定かではないが、Ti水素化物粉末の添加によって、焼結および/または熱処理において、 $R_6T_{13}M$ 化合物(代表的には $Nd_6Fe_{13}Ga$ 化合物)と、Tiの硼化物(代表的には $TiB_2$ 化合物)が生成されることが起因していると考えられる。

## 【0029】

本発明によれば、従来のR-T-B系焼結磁石とほぼ同様の組成の合金粉末を用いるため、B量の僅かな変動により $H_{cJ}$ が大きく変動(急激に低下)することがない。また、新たな合金、新たな工程などが必要とならず、基本的に既存の製造条件をそのまま適用することができる。従って、特許文献1の焼結磁石と同等以上の高い $H_{cJ}$ を有する焼結磁石を特許文献1よりも安定かつ安価で提供することが可能となる。

## 【0030】

また、本発明によるR-T-B系焼結磁石は、RH供給拡散処理による $H_k/H_{cJ}$ の低下を抑制することができる。この理由も定かではないが、前記と同様に、Ti水素化物粉末の添加によって、焼結および/または熱処理において、 $R_6T_{13}M$ 化合物と、Tiの硼化物が生成されることが起因していると考えられる。

## 【0031】

一方、前記特許文献3においては、高融点化合物(Al、Ga、Mg、Nb、Si、Ti、Zr)からなる群から選ばれるいずれか1つの酸化物、ホウ化物、炭化物、窒化物、又はケイ化物)に含まれる酸素、ホウ素、炭素、窒素、ケイ素などが焼結後においても磁石中に残存し、得られる磁石の磁気特性を劣化させる可能性があるが、本発明にて使用するTi水素化物粉末は、焼結工程においてTiと $H_2$ (水素)とに分解し水素は磁石から焼結炉内に放出され、最終的に焼結炉外へ排出される。従って、磁気特性を劣化させる可能性がほとんどない。

## 【0032】

このように、本発明によれば、重希土類元素RHをできるだけ使用することなく、特許文献1の焼結磁石と同等以上の高い $H_{cJ}$ を有し、かつ $B_r$ の低下を抑制しつつ高い $H_k/H_{cJ}$ を有するR-T-B系焼結磁石を安定かつ安価で提供することができる。

## 【0033】

以下、本発明について説明する。以下の説明において、前記特許文献2などのようにRH供給源の重希土類元素RHをR-T-B系焼結磁石素材の表面に供給し、RHをR-T-B系焼結磁石素材の内部に拡散させることを「RH供給拡散処理」という。また、RH供給拡散処理を実施した後、RHの供給を行わずにRHをR-T-B系焼結磁石素材の内部に拡散させることを「RH拡散処理」という。さらに、焼結後のR-T-B系焼結磁石素材に施す熱処理並びにRH供給拡散処理後またはRH拡散処理後に施す熱処理を単に「熱処理」という。また、熱処理前のR-T-B系焼結磁石を「R-T-B系焼結磁石素材」といい、熱処理後のR-T-B系焼結磁石を「R-T-B系焼結磁石」という。

## 【0034】

## [1] R-T-B系焼結磁石の製造方法

## (1) 合金粉末を準備する工程

合金粉末を準備する工程において、合金粉末の組成は以下の通りである。

R: 27~35質量%、

B: 0.9~1.0質量%、

Ga: 0.15~0.6質量%、

残部Tおよび不可避的不純物を含有する。

前記組成において、各元素の含有量が前記範囲の下限未満あるいは上限を超えると $B_r$ の低下を抑制しつつ高い $H_{cJ}$ および高い $H_k/H_{cJ}$ を有するR-T-B系焼結磁石を得ることができなくなる場合がある。Bは0.91~1.0質量%がより好ましい。Gaは0.2~0.6質量%が好ましく、0.3~0.6質量%がより好ましく、0.4~0.

10

20

30

40

50

6質量%がさらに好ましく、0.4~0.5質量%が最も好ましい。

【0035】

Rは希土類元素のうち少なくとも一種でありNdを必ず含む。Nd以外の希土類元素としてはPrがあげられる。さらに少量のDy、Tb、GdおよびHoのうち少なくとも一種を含有してもよい。Dy、Tb、GdおよびHoのうち少なくとも一種の含有量はR-T-B系焼結磁石全体の1.0質量%以下であることが好ましい。Bの一部はCで置換することができる。Tは遷移金属元素のうち少なくとも一種でありFeを必ず含む。Fe以外の遷移金属元素としてはCoがあげられる。さらに少量のV、Cr、Mn、Ni、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、Wなどを含有してもよい。

【0036】

上記以外の元素としてCu、Alを含有してもよい。Cu、Alは磁気特性向上などを目的として積極的に添加してもよいし、使用原料や合金粉末の製造過程において不可避免的に導入されるものを活用してもよい(不純物としてCu、Alを含有する原料を使用してもよい)。Cu、Alともにその含有量(積極的に添加する量と不可避免の不純物として混入する量の合計)はそれぞれ0.5質量%以下であることが好ましい。

【0037】

合金粉末を準備する工程は、前記組成となるように各元素の原料を秤量し、公知の製造方法により粉末となす。例えば、ストリップキャスト法により合金を作製し、得られた合金を水素粉砕法により粗粉碎粉末となす。あるいは該粗粉碎粉末をジェットミルなどにより微粉碎し微粉碎粉末となす。合金粉末は粗粉碎粉末、微粉碎粉末のいずれであってもよい。

【0038】

(2) Tiの水素化物の粉末を準備する工程

Ti水素化物粉末は市販のものを利用することができる。市販のTi水素化物粉末の粒径は、例えば気流分散式レーザー回折法による測定で得られる体積中心値であるD50で50μm程度である。Ti水素化物粉末は金属(Tiメタル)の状態に比べ非常に安定な物質であり、しかも、ジェットミルなどで粉碎することが可能であるため、市販のTi水素化物粉末をジェットミルなどにより微粉碎し微粉碎粉末(D50で5μm以下)となしても比較的安全に取り扱うことができるという利点を有する。

【0039】

また、先述の通り、前記特許文献3においては、高融点化合物(Al、Ga、Mg、Nb、Si、Ti、Zr)からなる群から選ばれるいずれか1つの酸化物、ホウ化物、炭化物、窒化物、又はケイ化物)に含まれる酸素、ホウ素、炭素、窒素、ケイ素などが焼結後においても磁石中に残存し、得られる磁石の磁気特性を劣化させる可能性があるが、本発明にて使用するTi水素化物粉末は、焼結工程においてTiとH<sub>2</sub>(水素)とに分解し水素は磁石から焼結炉内に放出され、最終的に焼結炉外へ排出される。従って、磁気特性を劣化させる可能性がほとんどないという利点を有する。また、これによってR-T-B系焼結磁石の酸素含有量、炭素含有量、窒素含有量の増加を抑制することができ、例えば、酸素含有量2000ppm以下、炭素含有量1500ppm以下、窒素含有量1000ppm以下のR-T-B系焼結磁石を製造することができ、より一層磁気特性を向上させることができる。

【0040】

(3) 混合粉末を準備する工程

前記によって準備した合金粉末とTi水素化物粉末は、混合後の混合粉末100質量%に含有されるTiが0.3質量%以下となるように混合し、混合粉末となす。混合後の混合粉末100質量%に含有されるTiが0.3質量%を超えるとB<sub>r</sub>の低下を抑制しつつ高いH<sub>cj</sub>および高いH<sub>k</sub>/H<sub>cj</sub>を有するR-T-B系焼結磁石を得ることができなくなる。Tiの混合量は0.05~0.3質量%が好ましく、0.12~0.3質量%がより好ましく、0.18~0.3質量%がさらに好ましく、0.22~0.3質量%が最も好ましい。混合は粗粉碎粉末からなる合金粉末と(未粉碎の)Ti水素化物粉末とを混合

10

20

30

40

50

した後ジェットミルなどにより微粉碎することが好ましい。混合後に微粉碎することによってより均一に混合することができるとともに合金粉末およびTi水素化物粉末の微粉碎粉末からなる混合粉末を、従来と同様の工程で新たな工程を追加することなく準備することができる。もちろん合金粉末とTi水素化物粉末を別々に微粉碎した後公知の混合手段によって混合して混合粉末を準備してもよい。この場合、混合は乾式、湿式のいずれであってもよい。

#### 【0041】

##### (4) 成形体を準備する工程

前記混合粉末を成形し成形体となす。成形は公知の成形手段で行う。例えば、金型のキャビティー内に乾燥した合金粉末を供給し磁界中で成形する乾式成形法、あるいは金型のキャビティー内に合金粉末を含むスラリーを注入しスラリーの分散媒を排出しながら合金粉末を磁界中で成形する湿式成形法などを適用することができる。

10

#### 【0042】

##### (5) R-T-B系焼結磁石素材を準備する工程

前記成形体を焼結しR-T-B系焼結磁石素材(焼結体)となす。焼結は公知の焼結手段で行う。例えば、焼結温度1000以上1180以下、焼結時間1時間から10時間程度、真空雰囲気中あるいは不活性ガス(ヘリウムやアルゴンなど)中で焼結する方法などを適用することができる。

#### 【0043】

##### (6) R-T-B系焼結磁石素材に熱処理を施す工程

前記R-T-B系焼結磁石素材に熱処理を施しR-T-B系焼結磁石となす。熱処理の温度、時間、雰囲気などは公知の条件を適用することができる。例えば、比較的低い温度(400以上600以下)のみでの熱処理(一段熱処理)、あるいは比較的高い温度(700以上焼結温度以下(例えば1050以下))で熱処理を行った後比較的低い温度(400以上600以下)で熱処理する(二段熱処理)などの条件を採用することができる。好ましい条件としては、730以上1020以下で5分から500分程度の熱処理を施し、冷却後(室温または440以上550以下まで冷却後)、さらに440以上550以下で5分から500分程度熱処理することが挙げられる。熱処理雰囲気は、真空雰囲気あるいは不活性ガス(ヘリウムやアルゴンなど)で行うことが好ましい。

20

30

#### 【0044】

R-T-B系焼結磁石の $H_c$ をさらに向上させるためにRH供給拡散処理を施す場合は、前記R-T-B系焼結磁石素材に熱処理を施す工程に代えて以下の工程を実施する。

#### 【0045】

##### (7) RH拡散源を準備する工程

Dyおよび/またはTbを含む金属、合金または化合物からなるRH拡散源を準備する工程は、前記特許文献2などの公知のRH供給拡散処理に開示される工程を適用することができる。

#### 【0046】

##### (8) RH供給拡散処理を施す工程

RH拡散源のDyおよび/またはTbをR-T-B系焼結磁石素材に供給、拡散させるRH供給拡散処理を施す工程は、前記特許文献2などの公知のRH供給拡散処理に開示される工程を適用することができる。なお、RH供給拡散処理は、特許文献2のように、RH拡散源から重希土類元素RHをR-T-B系焼結磁石素材の表面に供給しつつ内部に拡散させる方法でもよいし、RHを含む金属、合金、化合物などを成膜(乾式法または湿式法)や塗布により予めR-T-B系焼結磁石素材の表面に存在させた後、熱処理によってR-T-B系焼結磁石素材内部に拡散させる方法でもよい。

40

#### 【0047】

前記RH供給拡散処理によってR-T-B系焼結磁石素材内部に供給されたDyおよび/またはTbをさらに内部へ拡散させる目的でRH拡散処理を行ってもよい。RH拡散処

50

理はRH供給拡散処理を実施した後、新たにRH拡散源からDyおよび/またはTbの供給を行わずに加熱を行う。例えば、RH供給拡散処理を実施した後、引き続きRH拡散処理を行う場合は、新たにRH供給源からDyおよび/またはTbが供給されない条件下で、好ましくは700以上1000以下、より好ましくは800以上950以下で実施する。あるいは、RH供給拡散処理を実施した後、R-T-B系焼結磁石素材のみを回収した場合は、当該R-T-B系焼結磁石素材に対して大気圧以下の真空または不活性ガス雰囲気中で、好ましくは700以上1000以下、より好ましくは800以上950以下で実施する。処理時間は例えば10分から24時間程度、より好ましくは1時間から6時間程度である。RH拡散処理によりR-T-B系焼結磁石素材内部においてDyおよび/またはTbの拡散が生じ、表層付近に供給されたDyおよび/またはTbがさらに奥深くに拡散し、磁石全体として $H_c$ を高めることができる。

10

【0048】

(9) R-T-B系焼結磁石素材に熱処理を施す工程

RH供給拡散処理工程後(RH供給拡散処理工程後にRH拡散工程を行ってもよい)のR-T-B系焼結磁石素材に熱処理を施しR-T-B系焼結磁石となす。この熱処理は上記(6)の熱処理と同様である。

【0049】

[2] R-T-B系焼結磁石

前記の通り、Ti水素化物粉末の添加によって、焼結および/または熱処理(熱処理を施す工程に代えてRH供給拡散処理および熱処理を施す場合も含む)において、 $R_6T_1$  M化合物(代表的には $Nd_6Fe_{13}Ga$ 化合物)と、Tiの硼化物(代表的にはTiB<sub>2</sub>化合物)が生成される。すなわち、本発明のR-T-B系焼結磁石の製造方法によって得られるR-T-B系焼結磁石は、 $R_2T_{14}B$ 化合物と、 $R_6T_{13}M$ 化合物と、Tiの硼化物と、が共存する組織を有する。

20

【0050】

$R_2T_{14}B$ 化合物において、Rは希土類元素のうち少なくとも一種でありNdを必ず含む。Nd以外の希土類元素としてはPrがあげられる。さらに少量のDy、Tb、GdおよびHoのうち少なくとも一種を含有してもよい。Tは遷移金属元素のうち少なくとも一種でありFeを必ず含む。Fe以外の遷移金属元素としてはCoがあげられる。Bの一部はCで置換することができる。

30

【0051】

$R_6T_{13}M$ 化合物において、Rは希土類元素のうち少なくとも一種でありNdを必ず含む。Nd以外の希土類元素としてはPrがあげられる。さらに少量のDy、Tb、GdおよびHoのうち少なくとも一種を含有してもよい。Tは遷移金属元素のうち少なくとも一種でありFeを必ず含む。Fe以外の遷移金属元素としてはCoがあげられる。Mは主としてGaである。 $R_6T_{13}M$ 化合物は代表的には $Nd_6Fe_{13}Ga$ 化合物である。 $R_6T_{13}M$ 化合物は $La_6Co_{11}Ga_3$ 型結晶構造を有する。 $R_6T_{13}M$ 化合物はその状態によっては $R_6T_{13}M_{1+x}$ 化合物(は典型的には2以下)になっている場合がある。なお、MとしてGaのみを用いた場合においてもR-T-B系焼結磁石中にAl、CuおよびSiが含有される場合 $R_6T_{13}(Ga_{1-x-y-z}Cu_xAl_ySi_z)_{1+x}$ になっている場合がある。

40

【0052】

本発明のR-T-B系焼結磁石の製造方法によって得られるR-T-B系焼結磁石には、その任意の断面において $R_6T_{13}M$ 化合物が面積比率で1%以上含まれている。さらに、より高い $H_c$ を有する場合は $R_6T_{13}M$ 化合物が面積比率で2%以上含まれている。なお、 $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率は、後述する実施例に示す通り、R-T-B系焼結磁石の任意の断面のFE-SEM(電界放射型走査電子顕微鏡)による反射電子像(BSE像)の画像を市販の画像解析ソフトにより解析することにより求めることができる。なお、本明細書において「任意の断面」とは、例えば、中心部を含む断面のように本発明に係るR-T-B系焼結磁石の典型的な特徴が示されるといふ合理的期待の基に選択され

50

る任意の断面を意味し、本発明の特徴が示されないように恣意的に選択した断面を含むものではない。

【0053】

Tiの硼化物は代表的にはTiB<sub>2</sub>化合物である。TiB<sub>2</sub>化合物とともにTiB化合物が存在する場合もある。なお、前記特許文献3の実施例には、高融点化合物がTiCであるとき、TiCが焼結中にR-T-B系希土類永久磁石の材料中のBと反応してTiB<sub>2</sub>が生成し粒界に存在することが記載されている。しかしながら、TiCから分離したC(炭素)は焼結後においても磁石中に残存し、得られる磁石の磁気特性を劣化させる可能性がある。また、特許文献3の実施例においてはGa含有量が0.08質量%であるため、前記R<sub>6</sub>T<sub>13</sub>M化合物がほとんど生成されていないと考えられる。従って、特許文献3においては、本発明のような、R<sub>2</sub>T<sub>14</sub>B化合物と、R<sub>6</sub>T<sub>13</sub>M化合物と、Tiの硼化物と、が共存する組織を有するR-T-B系焼結磁石は得られていないと考えられる。

10

【実施例】

【0054】

本発明を実施例によりさらに詳細に説明するが、本発明はそれらに限定されるものではない。

【0055】

実施例1

表1のA、Bに示す合金組成となるように各元素の原料を秤量し、ストリップキャスト法により合金を作製した。得られた各合金を水素粉砕法により粗粉砕し粗粉砕粉末を得た。得られた合金Aの粗粉砕粉末に混合後の混合粉末の組成が表2の試料No.2~6に示す組成となるようにTiH<sub>2</sub>を混合し混合粉末(粗粉砕粉末の混合粉末)を準備した。なお、試料No.1は合金Aの粗粉砕粉末、試料No.7は合金Bの粗粉砕粉末であり、いずれもTiH<sub>2</sub>は混合されていない。前記試料No.2~6の混合粉末および試料No.1、7の粗粉砕粉末をそれぞれジェットミルにより微粉砕し、粒径D50(気流分散式レーザー回折法による測定で得られる体積中心値、以下同様)が4.2μmの試料No.2~6の混合粉末(微粉砕粉末の混合粉末)および試料No.1、7の微粉砕粉末を準備した。

20

【0056】

【表1】

合金 No.	合金の組成(質量%)							
	Nd	Pr	B	Ga	Co	Al	Cu	Fe
A	25.0	5.8	0.95	0.4	0.5	0.12	0.10	残部
B	25.0	5.8	0.88	0.4	0.5	0.12	0.10	残部

30

【0057】

【表 2】

試料 No.	合金 No.	混合粉末の組成(質量%)									備考
		Nd	Pr	B	Ga	Co	Al	Cu	Ti	Fe	
1	A	25.0	5.8	0.95	0.4	0.5	0.12	0.10	—	残部	比較例
2	A	25.0	5.8	0.95	0.4	0.5	0.12	0.10	0.18	残部	本発明例
3	A	25.0	5.8	0.95	0.4	0.5	0.12	0.10	0.22	残部	本発明例
4	A	25.0	5.8	0.95	0.4	0.5	0.12	0.10	0.25	残部	本発明例
5	A	25.0	5.8	0.95	0.4	0.5	0.12	0.10	0.27	残部	本発明例
6	A	25.0	5.8	0.95	0.4	0.5	0.12	0.10	0.30	残部	本発明例
7	B	25.0	5.8	0.88	0.4	0.5	0.12	0.10	—	残部	比較例

## 【0058】

試料 No. 2 ~ 6 の混合粉末および試料 No. 1、7 の微粉碎粉末を直角磁界成形装置（横磁界成形装置）にて磁界強度  $0.8 \text{ MA/m}$ 、圧力  $49 \text{ MPa}$  ( $0.5 \text{ ton/cm}^2$ ) で厚み  $12 \text{ mm} \times$  幅  $26 \text{ mm} \times$  長さ  $55 \text{ mm}$ （幅方向が磁界印加方向）の成形体をそれぞれ 2 個成形した後、得られた成形体を  $1030$  で 4 時間焼結し、試料 No. 2 ~ 6 の混合粉末および試料 No. 1、7 の微粉碎粉末に基づく R - T - B 系焼結磁石素材（以下、「試料 No. \*\* の R - T - B 系焼結磁石素材」という、以下同様）をそれぞれ 2 個準備した。

## 【0059】

試料 No. 1 ~ 7 の R - T - B 系焼結磁石の磁気特性を測定するため、試料 No. 1 ~ 7 の R - T - B 系焼結磁石素材のそれぞれ 2 個のうち 1 個に、真空雰囲気下、 $880$  の温度で 3 時間の熱処理を施し、冷却後、さらに  $500$  で 2 時間、真空雰囲気下で熱処理を行った。得られた試料 No. 1 ~ 7 の R - T - B 系焼結磁石素材に基づく R - T - B 系焼結磁石（以下、「試料 No. \*\* の R - T - B 系焼結磁石」という、以下同様）をそれぞれ切断および研削し厚み  $7.0 \text{ mm} \times$  幅  $7.0 \text{ mm} \times$  長さ  $7.0 \text{ mm}$  に加工した。加工後の試料 No. 1 ~ 7 の R - T - B 系焼結磁石の磁気特性を B - H トレーサによって測定した。測定結果を表 3 に示す。なお、 $H_k / H_{cJ}$  において、 $H_k$  は  $J$ （磁化の大きさ） -  $H$ （磁界の強さ）曲線の第 2 象限において、 $J$  が  $0.9 \times J_r$ （ $J_r$  は残留磁化、 $J_r = B_r$ ）の値になる位置の  $H$  の値（以下同様）である。

## 【0060】

【表 3】

試料 No.	$B_r$ (T)	$H_{cJ}$ (kA/m)	$H_k$ (kA/m)	$H_k/H_{cJ}$	備考
1	1.410	1175	1139	0.97	比較例
2	1.399	1313	1282	0.98	本発明例
3	1.389	1451	1426	0.98	本発明例
4	1.393	1454	1425	0.98	本発明例
5	1.396	1450	1422	0.98	本発明例
6	1.385	1394	1372	0.98	本発明例
7	1.380	1450	1420	0.98	比較例

## 【0061】

表 3 の通り、合金粉末に  $TiH_2$  を混合、成形、焼結および熱処理した R - T - B 系焼

結磁石（試料No. 2～6、本発明例）はTiH<sub>2</sub>粉末を混合しないもの（試料No. 1、比較例）に比べ、H<sub>cJ</sub>が大きく向上することが分かる。また、混合粉末100質量%に含有されるTi量が0.22～0.27の範囲で特にH<sub>cJ</sub>が向上していることが分かる。さらに、TiH<sub>2</sub>の添加によりB<sub>r</sub>は若干低下するもののH<sub>cJ</sub>の向上効果に対するB<sub>r</sub>の低下はそれほど大きくない。すなわち、B<sub>r</sub>の低下を抑制しつつH<sub>cJ</sub>が向上している。さらに、H<sub>k</sub>/H<sub>cJ</sub>はいずれの試料も0.98という高い値を有している。なお、試料No. 7は特許文献1の再現例であり、他の試料に比べB量が低い（0.88質量%）。表3の通り、RH供給拡散処理前の試料No. 7のR-T-B系焼結磁石のH<sub>cJ</sub>およびB<sub>r</sub>は本発明とほぼ同じであるが前記の通り、特許文献1によるR-T-B系焼結磁石においては、使用原料や製造過程に起因するB量の僅かな変動によりH<sub>cJ</sub>が大きく変動（急激に低下）するという問題がある。

10

## 【0062】

次に、試料No. 1～7のR-T-B系焼結磁石素材の2個のうち1個をそれぞれ切断および研削し厚み7.4mm×幅7.4mm×長さ7.4mmに加工した。加工後の試料No. 1～7のR-T-B系焼結磁石素材のそれぞれについて、Mo板上に、板状のDyメタルからなるRH拡散源、保持部材、R-T-B系焼結磁石素材、保持部材、板状のDyメタルからなるRH拡散源の順で積層することにより、7種類の積層体を準備した。なお、保持部材にはMo製の平織り金網を用いた。前記7種類の積層体を熱処理炉内へ装入し、圧力0.1Paの真空雰囲気下、880の温度で5.5時間RH供給拡散処理を行った。その後炉内を冷却し、試料No. 1～7のR-T-B系焼結磁石素材のみを取り出した。RH供給拡散処理後の試料No. 1～7のR-T-B系焼結磁石素材を、真空雰囲気下、880の温度で5時間RH拡散処理を行い、冷却後、500で2時間、真空雰囲気下で熱処理を行い、No. 1～7のR-T-B系焼結磁石を得た。得られた試料No. 1～7のR-T-B系焼結磁石の全面を0.2mmずつ研削し厚み7.0mm×幅7.0mm×長さ7.0mmに加工した。加工後の試料No. 1～7のR-T-B系焼結磁石の磁気特性をパルスB-Hトレーサによって測定した。測定結果を表4に示す。

20

## 【0063】

## 【表4】

試料 No.	B <sub>r</sub> (T)	H <sub>cJ</sub> (kA/m)	H <sub>k</sub> (kA/m)	H <sub>k</sub> /H <sub>cJ</sub>	備考
1	1.390	1711	1545	0.90	比較例
2	1.384	1792	1639	0.92	本発明例
3	1.378	1801	1654	0.92	本発明例
4	1.369	1805	1669	0.92	本発明例
5	1.379	1805	1657	0.92	本発明例
6	1.364	1790	1646	0.92	本発明例
7	1.353	1791	1540	0.86	比較例

30

40

## 【0064】

表4の通り、合金粉末にTiH<sub>2</sub>を混合、成形および焼結したR-T-B系焼結磁石素材にRH供給拡散処理、RH拡散処理および熱処理を施したR-T-B系焼結磁石（試料No. 2～6、本発明例）は、TiH<sub>2</sub>粉末を混合しないもの（試料No. 1、比較例）に比べ、高いH<sub>cJ</sub>を有していることが分かる。また、RH供給拡散処理後においてもB<sub>r</sub>およびH<sub>k</sub>/H<sub>cJ</sub>の低下は僅かであり、高いB<sub>r</sub>および高いH<sub>k</sub>/H<sub>cJ</sub>を有していることが分かる。一方、特許文献1の再現例である試料No. 7のR-T-B系焼結磁石はRH供給拡散前に比べH<sub>k</sub>/H<sub>cJ</sub>が大幅に低下している。

## 【0065】

50

## 実施例 2

表 5 の C に示す合金組成となるように各元素の原料を秤量し、ストリップキャストリング法により合金を作製した。得られた合金を水素粉砕法により粗粉砕し粗粉砕粉末を得た。得られた合金 C の粗粉砕粉末に混合後の混合粉末の組成が表 6 に示す組成となるように  $TiH_2$  を混合し、試料 No. 8 ~ 11 の混合粉末 (粗粉砕粉末の混合粉末) を準備した。前記試料 No. 8 ~ 11 の混合粉末をそれぞれジェットミルにより微粉砕し、粒径 D50 が  $4.2 \mu m$  の試料 No. 8 ~ 11 の混合粉末 (微粉砕粉末の混合粉末) を準備した。

【 0 0 6 6 】

【表 5】

合金 No.	合金の組成(質量%)							
	Nd	Pr	B	Ga	Co	Al	Cu	Fe
C	25.0	5.8	0.93	0.2	2.0	0.12	0.10	残部

【 0 0 6 7 】

【表 6】

試料 No.	合金 No.	混合粉末の組成(質量%)									備考
		Nd	Pr	B	Ga	Co	Al	Cu	Ti	Fe	
8	C	25.0	5.8	0.93	0.2	2.0	0.12	0.10	0.12	残部	本発明例
9	C	25.0	5.8	0.93	0.2	2.0	0.12	0.10	0.18	残部	本発明例
10	C	25.0	5.8	0.93	0.2	2.0	0.12	0.10	0.24	残部	本発明例
11	C	25.0	5.8	0.93	0.2	2.0	0.12	0.10	0.30	残部	本発明例

【 0 0 6 8 】

試料 No. 8 ~ 11 の混合粉末を実施例 1 と同様な方法により成形、焼結し、試料 No. 8 ~ 11 の混合粉末に基づく R - T - B 系焼結磁石素材をそれぞれ 2 個準備した。試料 No. 8 ~ 11 の R - T - B 系焼結磁石の磁気特性を測定するため、試料 No. 8 ~ 11 の R - T - B 系焼結磁石素材のそれぞれ 2 個のうち 1 個に実施例 1 と同様の熱処理および加工を行った。得られた試料 No. 8 ~ 11 の R - T - B 系焼結磁石の磁気特性を B - H トレーサによって測定した。測定結果を表 7 に示す。

【 0 0 6 9 】

【表 7】

試料 No.	$B_r$ (T)	$H_{cJ}$ (kA/m)	$H_k$ (kA/m)	$H_k/H_{cJ}$	備考
8	1.413	1283	1261	0.98	本発明例
9	1.400	1313	1278	0.97	本発明例
10	1.394	1297	1259	0.97	本発明例
11	1.390	1277	1246	0.98	本発明例

【 0 0 7 0 】

本実施例は実施例 1 の合金 A の組成と B 量 (0.95 を 0.93 に)、Ga 量 (0.4 を 0.2 に) および Co 量 (0.5 を 2.0 に) を異ならせた例である。表 7 の通り、合金 A に基づく R - T - B 系焼結磁石の磁気特性に比べて若干劣るものの、優れた磁気特性が得られている。

【 0 0 7 1 】

次に、試料 No. 8 ~ 11 の R - T - B 系焼結磁石素材の 2 個のうち 1 個を実施例 1 と

10

20

30

40

50

同様の形状に加工した後、実施例 1 と同様の方法により R H 供給拡散処理、R H 拡散処理および熱処理を行った。得られた試料 No. 8 ~ 11 の R - T - B 系焼結磁石を実施例 1 と同様に加工した後、パルス B - H トレーサによって磁気特性を測定した。測定結果を表 8 に示す。

【 0 0 7 2 】

【表 8】

試料 No.	$B_r$ (T)	$H_{cJ}$ (kA/m)	$H_k$ (kA/m)	$H_k/H_{cJ}$	備考
8	1.395	1769	1609	0.91	本発明例
9	1.386	1807	1661	0.92	本発明例
10	1.387	1778	1628	0.92	本発明例
11	1.381	1761	1606	0.91	本発明例

10

【 0 0 7 3 】

表 8 の通り、合金粉末に  $TiH_2$  を混合、成形および焼結した R - T - B 系焼結磁石素材に R H 供給拡散処理を施した R - T - B 系焼結磁石は、 $B_r$  の低下を抑制しつつ高い  $H_{cJ}$  および高い  $H_k / H_{cJ}$  を有していることが分かる。

【 0 0 7 4 】

実施例 3

表 9 の D ~ F に示す合金組成となるように各元素の原料を秤量し、ストリップキャスト法により合金を作製した。得られた各合金を水素粉碎法により粗粉碎し粗粉碎粉末を得た。得られた合金 D ~ F の粗粉碎粉末に混合後の混合粉末の組成が表 10 に示す組成となるように  $TiH_2$  を混合し、試料 No. 13 ~ 15、17 ~ 20、22 ~ 25 の混合粉末（粗粉碎粉末の混合粉末）を準備した。なお、試料 No. 12 は合金 D の粗粉碎粉末、試料 No. 16 は合金 E の粗粉碎粉末、試料 No. 21 は合金 F の粗粉碎粉末であり、いずれも  $TiH_2$  は混合されていない。前記各混合粉末および粗粉碎粉末をそれぞれジェットミルにより微粉碎し、粒径  $D_{50}$  が  $4.2 \mu m$  の試料 No. 13 ~ 15、17 ~ 20、22 ~ 25 の混合粉末（微粉碎粉末の混合粉末）および試料 No. 12、16 および 21 の微粉碎粉末を準備した。

20

30

【 0 0 7 5 】

【表 9】

合金 No.	合金の組成(質量%)							
	Nd	Pr	B	Ga	Co	Al	Cu	Fe
D	25.0	5.8	0.91	0.4	2.0	0.12	0.10	残部
E	25.0	5.8	0.93	0.4	2.0	0.12	0.10	残部
F	25.0	5.8	0.96	0.4	2.0	0.12	0.10	残部

40

【 0 0 7 6 】

【表 10】

試料 No.	合金 No.	混合粉末の組成(質量%)									備考
		Nd	Pr	B	Ga	Co	Al	Cu	Ti	Fe	
12	D	25.0	5.8	0.91	0.4	2.0	0.12	0.10	—	残部	比較例
13	D	25.0	5.8	0.91	0.4	2.0	0.12	0.10	0.06	残部	本発明例
14	D	25.0	5.8	0.91	0.4	2.0	0.12	0.10	0.14	残部	本発明例
15	D	25.0	5.8	0.91	0.4	2.0	0.12	0.10	0.21	残部	本発明例
16	E	25.0	5.8	0.93	0.4	2.0	0.12	0.10	—	残部	比較例
17	E	25.0	5.8	0.93	0.4	2.0	0.12	0.10	0.12	残部	本発明例
18	E	25.0	5.8	0.93	0.4	2.0	0.12	0.10	0.18	残部	本発明例
19	E	25.0	5.8	0.93	0.4	2.0	0.12	0.10	0.25	残部	本発明例
20	E	25.0	5.8	0.93	0.4	2.0	0.12	0.10	0.31	残部	比較例
21	F	25.0	5.8	0.96	0.4	2.0	0.12	0.10	—	残部	比較例
22	F	25.0	5.8	0.96	0.4	2.0	0.12	0.10	0.12	残部	本発明例
23	F	25.0	5.8	0.96	0.4	2.0	0.12	0.10	0.18	残部	本発明例
24	F	25.0	5.8	0.96	0.4	2.0	0.12	0.10	0.25	残部	本発明例
25	F	25.0	5.8	0.96	0.4	2.0	0.12	0.10	0.31	残部	比較例

## 【0077】

試料No. 13～15、17～20、22～25の混合粉末および試料No. 12、16および21の微粉碎粉末を実施例1と同様な方法により成形、焼結し、試料No. 13～15、17～20、22～25の混合粉末および試料No. 12、16および21の微粉碎粉末に基づくR-T-B系焼結磁石素材を準備した。

## 【0078】

試料No. 12～25のR-T-B系焼結磁石の磁気特性を測定するため、試料No. 12～25のR-T-B系焼結磁石素材に実施例1と同様の熱処理および加工を行った。得られた試料No. 12～25のR-T-B系焼結磁石の磁気特性をB-Hトレーサによって測定した。測定結果を図1～図4並びに表11に示す。図1は横軸がTi量、縦軸が $H_c$ の測定結果を示し、図2は横軸がTi量、縦軸が $B_r$ の測定結果を示し、図3は横軸がTi量、縦軸が $H_k$ の測定結果を示し、図4は横軸がTi量、縦軸が $H_k/H_c$ の測定結果を示す。図1～図4において丸形のプロットが試料No. 12～15、三角形のプロットが試料No. 16～20、菱形のプロットが試料No. 21～25を示す。

## 【0079】

10

20

30

【表 1 1】

試料 No.	$B_r$ (T)	$H_{cJ}$ (kA/m)	$H_k$ (kA/m)	$H_k/H_{cJ}$	備考
12	1.402	1201	1163	0.97	比較例
13	1.396	1311	1270	0.97	本発明例
14	1.386	1414	1364	0.96	本発明例
15	1.383	1434	1372	0.96	本発明例
16	1.409	1175	1139	0.97	比較例
17	1.405	1228	1209	0.99	本発明例
18	1.391	1393	1370	0.98	本発明例
19	1.382	1389	1363	0.98	本発明例
20	1.381	1301	1281	0.98	比較例
21	1.402	1150	1112	0.97	比較例
22	1.407	1168	1148	0.98	本発明例
23	1.394	1287	1258	0.98	本発明例
24	1.389	1361	1335	0.98	本発明例
25	1.388	1338	1314	0.98	比較例

10

20

## 【0080】

本実施例は合金のB量を変化させた例である。図1に示す通り、合金粉末にTiH<sub>2</sub>を混合、成形、焼結および熱処理したR-T-B系焼結磁石(試料No.13~15、17~20、22~25、本発明例)は、いずれのB量においてもTiH<sub>2</sub>粉末を混合しないもの(試料No.12、16および21、比較例)に比べ、H<sub>cJ</sub>が大きく向上することが分かる。また、混合粉末100質量%に含有されるTi量が0.18~0.25の範囲で特にH<sub>cJ</sub>が向上していることが分かる。

30

## 【0081】

また、図2に示す通り、本発明によるR-T-B系焼結磁石はB<sub>r</sub>が低下するもののH<sub>cJ</sub>の向上効果に対するB<sub>r</sub>の低下はそれほど大きくない。すなわち、B<sub>r</sub>の低下を抑制しつつH<sub>cJ</sub>が向上している。さらに、図3に示す通りH<sub>k</sub>も高く、図4に示す通りH<sub>k</sub>/H<sub>cJ</sub>はいずれの試料も0.95を超える高い値を有している。

## 【0082】

## 実施例4

実施例3の合金Eの粗粉碎粉末に、混合後の混合粉末100質量%に含有されるTiが0~0.3(TiH<sub>2</sub>は0~0.31、TiO<sub>2</sub>は0~0.18)となるようにTiH<sub>2</sub>、TiO<sub>2</sub>、TiB<sub>2</sub>、TiCおよびTiNの各粉末を混合し、実施例1と同様の方法で微粉碎、成形、焼結および熱処理を行いR-T-B系焼結磁石を得た。得られたR-T-B系焼結磁石のH<sub>cJ</sub>をB-Hトレーサによって測定した。測定結果を図5並びに表12に示す。図5は横軸がTi量、縦軸がH<sub>cJ</sub>の測定結果を示し、丸形のプロットがTiH<sub>2</sub>、三角形のプロットがTiO<sub>2</sub>、菱形のプロットがTiB<sub>2</sub>、四角のプロットがTiC、×印のプロットがTiNを混合した場合を示す。

40

## 【0083】

【表 1 2】

試料 No.	混合化合物	Ti量 (質量%)	H <sub>cj</sub> (kA/m)	備考
26	なし	0	1175	比較例
27	TiH <sub>2</sub>	0.12	1228	本発明例
28		0.18	1393	本発明例
29		0.25	1389	本発明例
30		0.31	1301	本発明例
31	TiO <sub>2</sub>	0.03	1143	比較例
32		0.06	1178	比較例
33		0.12	1274	比較例
34		0.18	1243	比較例
35	TiB <sub>2</sub>	0.12	1224	比較例
36		0.18	1224	比較例
37		0.24	1208	比較例
38		0.30	1219	比較例
39	TiC	0.12	1159	比較例
40		0.18	1332	比較例
41		0.24	1275	比較例
42		0.30	1158	比較例
43	TiN	0.12	997	比較例
44		0.18	1114	比較例
45		0.24	1062	比較例
46		0.30	925	比較例

10

20

30

## 【0084】

図5に示す通り、TiH<sub>2</sub>を混合した場合にH<sub>cj</sub>が大きく向上していることが分かる。前記の通り、TiO<sub>2</sub>、TiB<sub>2</sub>、TiCおよびTiNに含まれる酸素、ホウ素、炭素、窒素などは焼結後においても磁石中に残存し、得られる磁石の磁気特性を劣化させている可能性がある。本発明にて使用するTiH<sub>2</sub>は、焼結工程においてTiとH<sub>2</sub>(水素)とに分解し水素は磁石から焼結炉内に放出され、最終的に焼結炉外へ排出される。従って、磁気特性を劣化させる可能性がほとんどない。

## 【0085】

## 実施例5

実施例3の試料No.18のR-T-B系焼結磁石についてFE-TEM(電界放射型透過電子顕微鏡、HF-2100、株式会社日立ハイテクノロジーズ製)による組織観察を行った。その結果(DF-STEM像)を図6に示す。また、図6に示す部位a、b、cについてEDS(エネルギー分散型X線分光法)による組成分析を行った。その結果を表13に示す。なお、部位aおよびbについてはBの分析は行っていない。また、部位a、b、cについて電子線回折の結晶構造を特徴づける回折図形を撮影した。その結果を図7~9に示す。図7が部位a、図8が部位b、図9が部位cの回折図形である。

## 【0086】

さらに、化合物を同定するためR<sub>6</sub>T<sub>13</sub>M化合物とTiの硼化物の標準試料について

40

50

前記と同様にEDSにより組成分析を行った。その結果を表14に示す。Tiの硼化物の標準試料としては市販のTiB<sub>2</sub>を用いた。まず念のため市販のTiB<sub>2</sub>をX線回折装置によりX線回折しTiB<sub>2</sub>化合物に間違いがないことを確認した。X線回折の結果を図10に示す。R<sub>6</sub>T<sub>13</sub>M化合物の標準試料としては、RとしてNdを、TとしてFeを、MとしてGaを用い、Nd<sub>6</sub>Fe<sub>13</sub>Ga化合物の質量%の理論値であるNd:52.1、Fe:43.7、Ga:4.2となるようにNd、Fe、Gaを秤量、溶解して合金を作製した。得られた合金の分析結果を表15に示す。この合金のX線回折を測定しLa<sub>6</sub>Co<sub>11</sub>Ga<sub>3</sub>型結晶構造のNd<sub>6</sub>Fe<sub>13</sub>Ga化合物に間違いがないことを確認した。X線回折の結果を図11に示す。

【0087】

10

【表13】

部位	組成分析結果(質量%)							
	Fe	Nd	Pr	Ga	Co	Cu	Ti	B
a	59.2	29.0	7.3	0.7	1.9	0.2	0.1	-
b	31.5	46.6	15.9	3.5	1.1	0.2	0.2	-
c	0	0	0	0	0	0	18.8	77.3

【0088】

20

【表14】

標準試料	組成分析結果(質量%)							
	Fe	Nd	Pr	Ga	Co	Cu	Ti	B
Nd <sub>6</sub> Fe <sub>13</sub> Ga	32.1	64.5	0	4.6	0	0	0	0
TiB <sub>2</sub>	0	0	0	0	0	0	19.6	80.4

【0089】

30

【表15】

標準試料	組成(質量%)			
		Nd	Fe	Ga
Nd <sub>6</sub> Fe <sub>13</sub> Ga	理論値	52.1	43.7	4.2
	分析値	53.3	42.4	4.2

【0090】

表13の部位aのEDSによる組成分析結果ならびに図7示す部位aの電子線回折の結晶構造を特徴づける回折図形の結果から、部位aはNd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B化合物であることを確認した。

40

【0091】

また、表13～表15の組成分析結果ならびに図8に示す部位bの電子線回折の結晶構造を特徴づける回折図形の結果から、部位bはNd<sub>6</sub>Fe<sub>13</sub>Ga化合物であると同定した。すなわち、部位bのEDSによる組成分析結果と標準試料の組成分析結果とでNd量が若干異なるものの、構成元素がR(NdとPr)とFeとGaを主体としていること、図8に示す部位bの電子線回折の結晶構造を特徴づける回折図形の結果がNd<sub>6</sub>Fe<sub>13</sub>Ga化合物の結晶構造と同様であることから、部位bがNd<sub>6</sub>Fe<sub>13</sub>Ga化合物であると同定した。

【0092】

50

さらに、表13～表15の組成分析結果ならびに図9に示す部位cの電子線回折の結晶構造を特徴づける回折図形の結果から、部位cは $TiB_2$ 化合物であると同一化した。すなわち、部位cのEDSによる組成分析結果と標準試料の組成分析結果とが類似しており、構成元素がTiとBとからなること、図9に示す部位cの電子線回折の結晶構造を特徴づける回折図形の結果が $TiB_2$ 化合物の結晶構造と同様であることから、部位cが $TiB_2$ 化合物であると同一化した。

【0093】

以上の通り、Ti水素化物粉末の添加によって、焼結および/または熱処理において、 $R_6T_{13}M$ 化合物（代表的には $Nd_6Fe_{13}Ga$ 化合物）と、Tiの硼化物（代表的には $TiB_2$ 化合物）が生成される。すなわち、本発明のR-T-B系焼結磁石の製造方法によって得られるR-T-B系焼結磁石は、 $R_2T_{14}B$ 化合物と、 $R_6T_{13}M$ 化合物と、Tiの硼化物と、が共存する組織を有していることが明らかである。

【0094】

実施例6

実施例1の試料No. 1～7のR-T-B系焼結磁石（RH供給拡散処理、RH拡散処理が施されていないR-T-B系焼結磁石）の任意の断面について、鏡面加工を施した後、その鏡面の一部をクロスセクションポリッシャ（SM-09010、日本電子株式会社製）によってイオンビーム加工を施した。次に、その加工面をFE-SEM（電界放射型走査電子顕微鏡、JSM-7001F、日本電子株式会社製）によって観察（加速電圧5kV、ワーキングディスタンス4mm、TTLモード、倍率2000倍）した。そして、FE-SEMによる反射電子像（BSE像）を画像解析ソフト（Scandium、OLYMPUS SOFT IMAGING SOLUTIONS GMBH製）により解析し、 $R_6T_{13}M$ 化合物（代表的には $Nd_6Fe_{13}Ga$ 化合物）の面積比率を求めた。FE-SEMによるBSE像はその領域を構成する元素の平均原子番号が大きいほど明るく表示され、元素の原子番号が小さいほど暗く表示される。例えば、粒界相（希土類リッチ相）は明るく表示され、主相（ $R_2T_{14}B$ 相）や酸化物などは暗く表示される。 $R_6T_{13}M$ 化合物はその中間くらいの明るさで表示される。画像解析ソフトによる解析は、画像処理によりBSE像の明るさを横軸、頻度（面積）を縦軸としたグラフを作成し、EDS（エネルギー分散型X線分光法）により $R_6T_{13}M$ 化合物を探索し、前記グラフ内の特定の明るさと対応させ、 $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率を求めた。この解析を断面上の異なる5視野（各視野の広さは $45\mu m \times 60\mu m$ ）のBSE像についてそれぞれ行い、その平均値を $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率とした。その結果を表16に示す。

【0095】

【表16】

試料 No.	$R_6T_{13}M$ の面積比率 (%)	備考
1	1.50	比較例
2	1.58	本発明例
3	2.58	本発明例
4	2.31	本発明例
5	2.73	本発明例
6	2.57	本発明例
7	2.65	比較例

【0096】

合金粉末に $TiH_2$ を混合、成形、焼結および熱処理したR-T-B系焼結磁石（試料No. 2～6、本発明例）は、前記の通り、 $R_2T_{14}B$ 化合物と、 $R_6T_{13}M$ 化合物

と、Tiの硼化物とが共存する組織を有し、表16の通り、 $R_6T_{13}M$ 化合物が面積比率で1%以上存在しており、特により高い $H_{cJ}$ を有する場合は $R_6T_{13}M$ 化合物が面積比率で2%以上存在している。一方、 $TiH_2$ 粉末を混合しないもの(試料No.1、比較例)および特許文献1の再現例である試料No.7(比較例)は、 $R_6T_{13}M$ 化合物は面積比率で1%以上存在しているものの、Tiの硼化物は生成されていない。本発明によるR-T-B系焼結磁石が $B_r$ の低下を抑制しつつ高い $H_{cJ}$ および高い $H_k/H_c$ を有するのは、 $R_2T_{14}B$ 化合物と、 $R_6T_{13}M$ 化合物と、Tiの硼化物とが共存する組織並びに $R_6T_{13}M$ 化合物の存在量に起因するものと考えられる。

【0097】

実施例7

実施例2の試料No.8~11のR-T-B系焼結磁石(RH供給拡散処理、RH拡散処理が施されていないR-T-B系焼結磁石)について、実施例6と同様の方法により $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率を求めた。その結果を表17に示す。

【0098】

【表17】

試料 No.	$R_6T_{13}M$ の面積比率 (%)	備考
8	1.22	本発明例
9	1.93	本発明例
10	1.11	本発明例
11	1.93	本発明例

【0099】

合金粉末に $TiH_2$ を混合、成形、焼結および熱処理したR-T-B系焼結磁石(試料No.8~11、本発明例)は、前記の通り、 $R_2T_{14}B$ 化合物と、 $R_6T_{13}M$ 化合物と、Tiの硼化物とが共存する組織を有し、表17の通り、 $R_6T_{13}M$ 化合物が面積比率で1%以上存在している。

【0100】

実施例8

表18のG、Hに示す合金組成となるように各元素の原料を秤量し、ストリップキャスト法により合金を作製した。得られた各合金を水素粉砕法により粗粉砕し粗粉砕粉末を得た。得られた合金Gの粗粉砕粉末に混合後の混合粉末の組成が表19の試料No.48~52に示す組成となるように $TiH_2$ を混合し混合粉末(粗粉砕粉末の混合粉末)を準備した。なお、試料No.47は合金Gの粗粉砕粉末、試料No.53は合金Hの粗粉砕粉末であり、いずれも $TiH_2$ は混合されていない。前記試料No.48~52の混合粉末および試料No.47、53の粗粉砕粉末をそれぞれジェットミルにより微粉砕し、粒径 $D_{50}$ (気流分散式レーザー回折法による測定で得られる体積中心値、以下同様)が $4.2\mu m$ の試料No.48~52の混合粉末(微粉砕粉末の混合粉末)および試料No.47、53の微粉砕粉末を準備した。

【0101】

【表18】

合金 No.	合金の組成(質量%)							
	Nd	Pr	B	Ga	Co	Al	Cu	Fe
G	23.1	7.7	0.94	0.5	0.5	0.10	0.15	残部
H	23.1	7.7	0.89	0.5	0.5	0.10	0.15	残部

10

20

30

40

50

【 0 1 0 2 】

【表 1 9】

試料 No.	合金 No.	混合粉末の組成(質量%)									備考
		Nd	Pr	B	Ga	Co	Al	Cu	Ti	Fe	
47	G	23.1	7.7	0.94	0.5	0.5	0.10	0.15	—	残部	比較例
48	G	23.1	7.7	0.94	0.5	0.5	0.10	0.15	0.16	残部	本発明例
49	G	23.1	7.7	0.94	0.5	0.5	0.10	0.15	0.19	残部	本発明例
50	G	23.1	7.7	0.94	0.5	0.5	0.10	0.15	0.22	残部	本発明例
51	G	23.1	7.7	0.94	0.5	0.5	0.10	0.15	0.24	残部	本発明例
52	G	23.1	7.7	0.94	0.5	0.5	0.10	0.15	0.27	残部	本発明例
53	H	23.1	7.7	0.89	0.5	0.5	0.10	0.15	—	残部	比較例

10

【 0 1 0 3 】

試料 No. 48 ~ 52 の混合粉末および試料 No. 47、53 の粗粉碎粉末を実施例 1 と同様な方法により成形、焼結し、試料 No. 48 ~ 52 の混合粉末および試料 No. 47、53 の粗粉碎粉末に基づく R - T - B 系焼結磁石素材を準備した。試料 No. 47 ~ 53 の R - T - B 系焼結磁石の磁気特性を測定するため、試料 No. 47 ~ 53 の R - T - B 系焼結磁石素材に実施例 1 と同様の熱処理および加工を行った。得られた試料 No. 47 ~ 53 の R - T - B 系焼結磁石の磁気特性を B - H トレーサによって測定した。測定結果を表 20 に示す。また、実施例 6 と同様の方法により  $R_6T_{13}M$  化合物の面積比率を求めた。その結果を表 20 に示す。

20

【 0 1 0 4 】

【表 2 0】

試料 No.	$B_r$ (T)	$H_{cJ}$ (kA/m)	$H_k$ (kA/m)	$H_k/H_{cJ}$	$R_6T_{13}M$ の面積比率 (%)	備考
47	1.410	1205	1181	0.98	1.80	比較例
48	1.396	1305	1278	0.98	2.00	本発明例
49	1.392	1428	1402	0.98	2.43	本発明例
50	1.390	1501	1473	0.98	2.70	本発明例
51	1.380	1523	1493	0.98	2.90	本発明例
52	1.379	1509	1479	0.98	3.12	本発明例
53	1.380	1522	1370	0.90	3.00	比較例

30

【 0 1 0 5 】

本実施例は実施例 1 の合金 A の組成を変化させたものであり、特に Ga 量を 0.4 質量 % から 0.5 質量 % に増加させた例である。表 20 の通り、合金粉末に  $TiH_2$  を混合、成形、焼結および熱処理した R - T - B 系焼結磁石 (試料 No. 48 ~ 52、本発明例) は、 $TiH_2$  粉末を混合しないもの (試料 No. 47、比較例) に比べ、高い  $H_{cJ}$  を有していることが分かる。一方、特許文献 1 の再現例である試料 No. 53 の R - T - B 系焼結磁石は  $H_{cJ}$  および  $B_r$  は本発明例と同程度であるが  $H_k / H_{cJ}$  が大きく低下している。

40

【 0 1 0 6 】

また、本実施例による R - T - B 系焼結磁石は、Ti 量が 0.22 ~ 0.27 の範囲で、 $B_r$  の低下を抑制しつつ 1500 kA/m 以上の高い  $H_{cJ}$  を有している。例えば、T

50

i量が同じ0.22の本実施例の試料No. 50と実施例1の試料No. 3とを比較すると、 $H_c$ が50 kA/m程度向上しているのに $B_r$ はほとんど低下していない。

## 【0107】

さらに、合金粉末にTiH<sub>2</sub>を混合、成形、焼結および熱処理したR-T-B系焼結磁石(試料No. 48~52、本発明例)は、前記の通り、R<sub>2</sub>T<sub>14</sub>B化合物と、R<sub>6</sub>T<sub>13</sub>M化合物と、Tiの硼化物とが共存する組織を有し、表32の通り、R<sub>6</sub>T<sub>13</sub>M化合物が面積比率で2%以上存在している。

## 【0108】

## 実施例9

表21のI、Jに示す合金組成となるように各元素の原料を秤量し、ストリップキャスト法により合金を作製した。得られた各合金を水素粉砕法により粗粉砕し粗粉砕粉末を得た。得られた合金Iの粗粉砕粉末に混合後の混合粉末の組成が表22の試料No. 55~59に示す組成となるようにTiH<sub>2</sub>を混合し混合粉末(粗粉砕粉末の混合粉末)を準備した。なお、試料No. 54は合金Iの粗粉砕粉末、試料No. 60は合金Jの粗粉砕粉末であり、いずれもTiH<sub>2</sub>は混合されていない。前記試料No. 55~59の混合粉末および試料No. 54、60の粗粉砕粉末をそれぞれジェットミルにより微粉砕し、粒径D50(気流分散式レーザー回折法による測定で得られる体積中心値、以下同様)が4.2 μmの試料No. 55~59の混合粉末(微粉砕粉末の混合粉末)および試料No. 54、60の微粉砕粉末を準備した。

## 【0109】

## 【表21】

合金 No.	合金の組成(質量%)							
	Nd	Pr	B	Ga	Co	Al	Cu	Fe
I	23.1	7.7	0.94	0.5	0.5	0.30	0.15	残部
J	23.1	7.7	0.88	0.5	0.5	0.30	0.15	残部

## 【0110】

## 【表22】

試料 No.	合金 No.	混合粉末の組成(質量%)									備考
		Nd	Pr	B	Ga	Co	Al	Cu	Ti	Fe	
54	I	23.1	7.7	0.94	0.5	0.5	0.30	0.15	—	残部	比較例
55	I	23.1	7.7	0.94	0.5	0.5	0.30	0.15	0.16	残部	本発明例
56	I	23.1	7.7	0.94	0.5	0.5	0.30	0.15	0.19	残部	本発明例
57	I	23.1	7.7	0.94	0.5	0.5	0.30	0.15	0.22	残部	本発明例
58	I	23.1	7.7	0.94	0.5	0.5	0.30	0.15	0.24	残部	本発明例
59	I	23.1	7.7	0.94	0.5	0.5	0.30	0.15	0.27	残部	本発明例
60	J	23.1	7.7	0.88	0.5	0.5	0.30	0.15	—	残部	比較例

## 【0111】

試料No. 55~59の混合粉末および試料No. 54、60の粗粉砕粉末を実施例1と同様な方法により成形、焼結し、試料No. 55~59の混合粉末および試料No. 54、60の粗粉砕粉末に基づくR-T-B系焼結磁石素材を準備した。試料No. 54~60のR-T-B系焼結磁石の磁気特性を測定するため、試料No. 54~60のR-T-B系焼結磁石素材に実施例1と同様の熱処理および加工を行った。得られた試料No. 54~60のR-T-B系焼結磁石の磁気特性をB-Hトレーサによって測定した。測定

結果を表 2 3 に示す。また、実施例 6 と同様の方法により  $R_6T_{13}M$  化合物の面積比率を求めた。その結果を表 2 3 に示す。

【 0 1 1 2 】

【表 2 3】

試料 No.	$B_r$ (T)	$H_{cJ}$ (kA/m)	$H_k$ (kA/m)	$H_k/H_{cJ}$	$R_6T_{13}M$ の面積比率 (%)	備考
54	1.380	1240	1215	0.98	1.70	比較例
55	1.363	1359	1334	0.98	1.90	本発明例
56	1.373	1497	1443	0.96	2.63	本発明例
57	1.360	1546	1490	0.96	3.02	本発明例
58	1.361	1540	1514	0.98	3.14	本発明例
59	1.357	1512	1478	0.98	3.07	本発明例
60	1.361	1542	1357	0.88	3.11	比較例

10

【 0 1 1 3 】

本実施例は実施例 8 の合金 G の Al 量を 0 . 1 質量 % から 0 . 3 質量 % に増加させた例である。表 2 3 の通り、合金粉末に  $TiH_2$  を混合、成形、焼結および熱処理した R - T - B 系焼結磁石 ( 試料 No . 5 5 ~ 5 9 、本発明例 ) は、 $TiH_2$  粉末を混合しないもの ( 試料 No . 5 4 、比較例 ) に比べ、高い  $H_{cJ}$  を有していることが分かる。一方、特許文献 1 の再現例である試料 No . 6 0 の R - T - B 系焼結磁石は  $H_{cJ}$  および  $B_r$  は本発明例と同程度であるが  $H_k / H_{cJ}$  が大きく低下している。

20

【 0 1 1 4 】

また、本実施例による R - T - B 系焼結磁石は、Ti 量が 0 . 1 9 質量 % で約 1 5 0 0 k A / m 、Ti 量が 0 . 2 2 ~ 0 . 2 7 質量 % の範囲で 1 5 0 0 k A / m 以上の高い  $H_{cJ}$  を有している。さらに、本実施例による R - T - B 系焼結磁石は、前記の通り、 $R_2T_{14}B$  化合物と、 $R_6T_{13}M$  化合物と、Ti の硼化物とが共存する組織を有し、表 2 3 の通り、 $R_6T_{13}M$  化合物が面積比率で 1 . 9 % 以上、特により高い  $H_{cJ}$  を有する試料 No . 5 6 ~ 5 9 では  $R_6T_{13}M$  化合物が面積比率で 2 % 以上存在している。

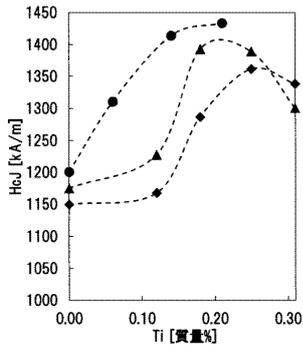
30

【産業上の利用可能性】

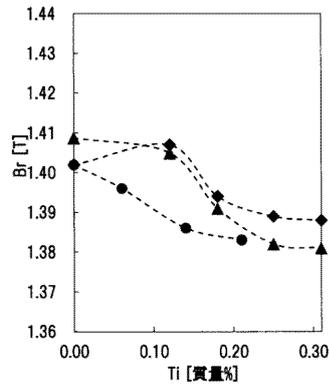
【 0 1 1 5 】

本発明により得られた R - T - B 系焼結磁石は、ハードディスクドライブのボイスコイルモータ ( V C M ) や、電気自動車用モータ、ハイブリッド自動車用モータなどの各種モータ、家電製品などに好適に利用することができる。

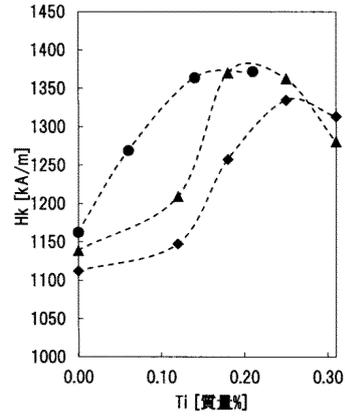
【 図 1 】



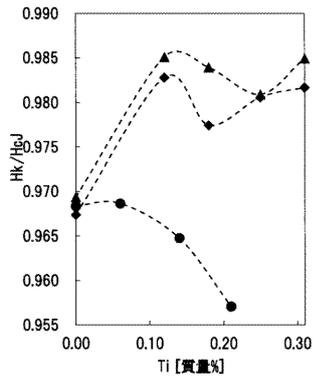
【 図 2 】



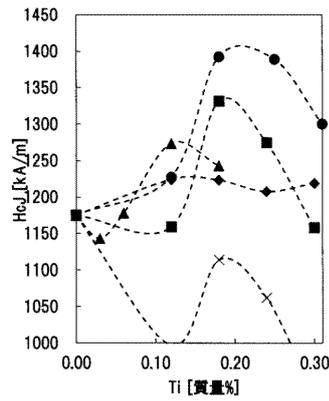
【 図 3 】



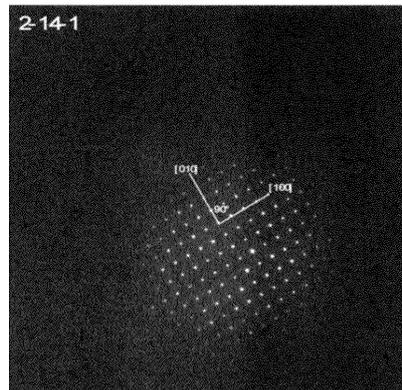
【 図 4 】



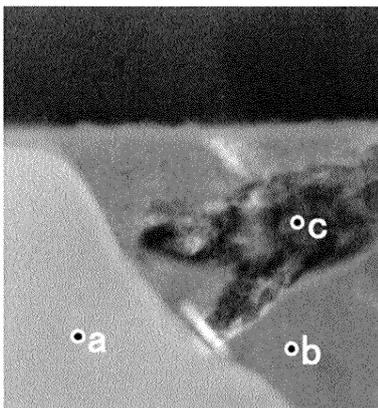
【 図 5 】



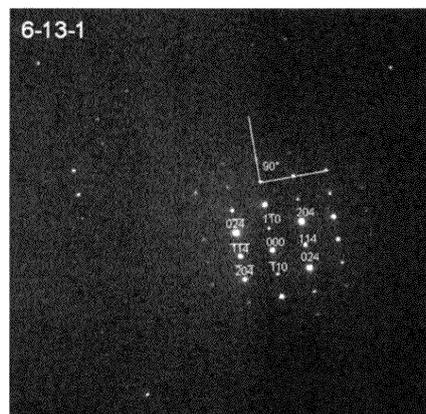
【 図 7 】



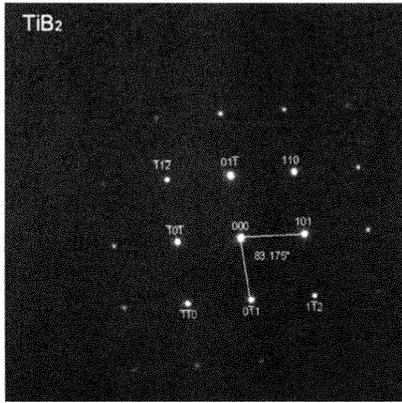
【 図 6 】



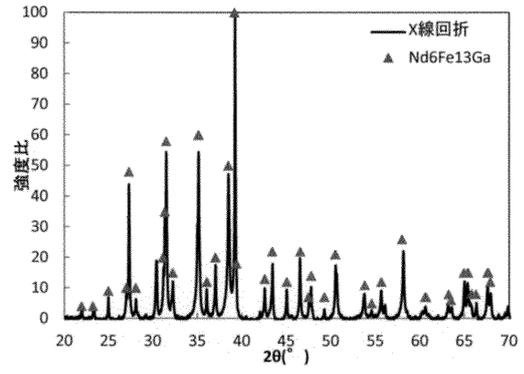
【 図 8 】



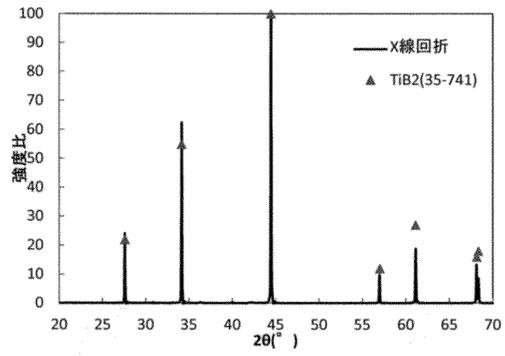
【 図 9 】



【 図 1 1 】



【 図 1 0 】



---

フロントページの続き

- (56)参考文献 特開平02-298231(JP,A)  
国際公開第2007/102391(WO,A1)  
特開2008-264875(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

B22F 1/00 - 8/00、  
C22C 1/04 - 1/05、 5/00 - 25/00、  
27/00 - 28/00、 30/00 - 30/06、 33/02、  
35/00 - 45/10、  
H01F 1/00 - 1/117、 1/40、  
41/00 - 41/04、 41/08 - 41/10