

(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2014-22596
(P2014-22596A)

(43) 公開日 平成26年2月3日(2014.2.3)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
H01F 41/02 (2006.01)	H01F 41/02 G	4K018
H01F 1/057 (2006.01)	H01F 1/04 H	5E040
C22C 33/02 (2006.01)	C22C 33/02 J	5E062
H01F 1/06 (2006.01)	C22C 33/02 K	
C22C 38/00 (2006.01)	H01F 1/06 A	

審査請求 未請求 請求項の数 11 O L (全 37 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2012-160598 (P2012-160598)
(22) 出願日 平成24年7月19日 (2012.7.19)

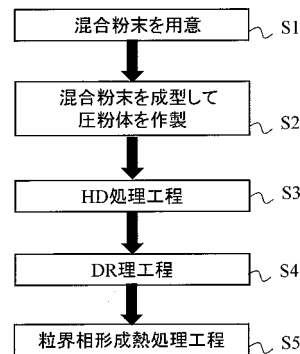
(71) 出願人 000005083
日立金属株式会社
東京都港区芝浦一丁目2番1号
(74) 代理人 100101683
弁理士 奥田 誠司
(74) 代理人 100155000
弁理士 喜多 修市
(72) 発明者 野澤 宣介
大阪府三島郡島本町江川2丁目15番17号 日立金属株式会社磁性材料研究所内
Fターム(参考) 4K018 AA27 BA18 BA20 BB04 BC12
BD01 CA02 CA04 DA21 DA31
FA08 KA22 KA45
5E040 AA04 BD01 CA01 HB03 HB09
HB11 NN01 NN18
5E062 CD04 CG03

(54) 【発明の名称】 R - F e - B系多孔質磁石の製造方法

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】良好な角型性および高い保磁力を有する R - T - B系永久磁石を提供する。

【解決手段】50%体積中心粒径が1μm以上10μm未満であり、R₂T₁₄B相を含むR-T-B系合金粉末と、粒度150μm未満のR'金属(R'はNd、Pr、Dy、Tb)またはR'-M系合金(MはAl、Ga、Co、Fe)の粉末との混合粉末を成形して圧粉体を作製し、10kPa超500kPa以下の水素雰囲気中、または水素と不活性ガスの混合雰囲気中で650以上950未満の温度で熱処理を施す。それによって水素化および不均化反応を起こすHD処理工程と、2kPa以上10kPa以下の水素雰囲気中で650以上950未満の温度で熱処理を施し、DR処理工程とを行う。その後、真空または不活性雰囲気中において650以上950未満の温度で熱処理を施し、R₂T₁₄B相結晶粒の界面近傍に粒界相を形成させる粒界相形成熟処理工程を行う。



【選択図】図1A

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

50%体積中心粒径が1 μ m以上10 μ m未満であり、 $R_2T_{14}B$ 相を含むR-T-B系合金粉末（RはNdおよび/またはPrを50原子%以上含む希土類元素、TはFe、またはFeとCo）と、粒度150 μ m未満のR'金属（R'はNd、Pr、Dy、Tbから選ばれる1種以上）またはR'-M系合金（MはAl、Ga、Co、Feから選ばれる1種以上、R'はR'-M系合金全体の20原子%以上100原子%未満）の粉末との混合粉末を用意する工程と、

前記混合粉末を成形して圧粉体を作製する工程と、

前記圧粉体に対し10kPa超500kPa以下の水素雰囲気中、または水素分圧が10kPa超500kPa以下の水素と不活性ガスの混合雰囲気中で650以上950未満の温度で熱処理を施し、それによって水素化および不均化反応を起こすHD処理工程と、

2kPa以上10kPa以下の水素雰囲気中で650以上950未満の温度で熱処理を施し、それによって脱水素および再結合反応を起こすDR処理工程と、

真空または不活性雰囲気中において650以上950未満の温度で熱処理を施し、それによって $R_2T_{14}B$ 相結晶粒の界面近傍に粒界相を形成させる粒界相形成熱処理工程と、

を含むR-T-B系多孔質磁石の製造方法。

【請求項 2】

前記R'金属またはR'-M系合金はあらかじめ水素を吸蔵させる、請求項1に記載のR-T-B系多孔質磁石の製造方法。

【請求項 3】

前記HD処理工程前の昇温工程において200以上600以下の温度を水素雰囲気中で昇温する、請求項1または2に記載のR-T-B系多孔質磁石の製造方法。

【請求項 4】

前記HD処理工程前における前記圧粉体の密度は、3.5g/cm³以上5.2g/cm³以下の範囲にある、請求項1から3のいずれかに記載のR-T-B系多孔質磁石の製造方法。

【請求項 5】

前記粒界相形成熱処理工程後における前記成形体は、3.5g/cm³以上6.5g/cm³以下の密度を有する多孔質である、請求項4に記載のR-T-B系多孔質磁石の製造方法。

【請求項 6】

前記多孔質の圧粉体は、三次元網状に連通する空隙を有し、前記圧粉体を構成する個々の粉末粒子は隣接する粉末粒子と結合している、請求項5に記載のR-T-B系多孔質磁石の製造方法。

【請求項 7】

前記混合粉末における前記R-T-B系合金粉末と前記R'金属またはR'-M系合金の粉末との混合比率は、重量比で（R-T-B系合金粉末）：（R'金属またはR'-M系合金粉末）=m：1（5m100）である、請求項1から6のいずれかに記載のR-T-B系多孔質磁石の製造方法。

【請求項 8】

前記混合粉末を用意する工程は、

前記R-T-B系合金粉末を準備する工程と、

前記R'金属またはR'-M系合金の粉末を準備する工程と、

前記R-T-B系合金粉末と前記R'金属またはR'-M系合金の粉末とを混合する工程と、

を含む、請求項1から7のいずれかに記載のR-T-B系多孔質磁石の製造方法。

【請求項 9】

10

20

30

40

50

前記混合粉末を用意する工程は、

R - T - B系合金とR'金属またはR' - M系合金との混合物を、50%体積中心粒径が1 μm以上10 μm未満の粉末に粉碎する工程を含む、請求項1から8のいずれかに記載のR - T - B系多孔質磁石の製造方法。

【請求項10】

請求項1から9のいずれかに記載の製造方法によって製造されたR - T - B系多孔質磁石を準備する工程と、

熱間圧縮成型によって前記R - T - B系多孔質磁石の密度を高めて高密度磁石を形成する工程と、

を含む、R - T - B系高密度磁石の製造方法。

10

【請求項11】

前記高密度磁石の密度は、7.0 g/cm³以上7.6 g/cm³以下の範囲にある、請求項10に記載のR - T - B系高密度磁石の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本願はR - Fe - B系多孔質磁石の製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

高性能永久磁石として代表的なR - T - B系永久磁石（RはNdおよび/またはPrを含む希土類元素、TはFeまたはFeの一部をCoおよび/またはNiで置換したもの、Bはホウ素）は、三元系正方晶化合物であるR₂T₁₄B相（Nd₂Fe₁₄B型化合物相）を主相として含み、優れた磁気特性を発揮するため、様々な用途に用いられている。

20

【0003】

中でも、近年、ハイブリッド自動車や電気自動車などの駆動モータなど、高温で使用されるR - T - B系永久磁石の需要が拡大している。このような製品に用いられるR - T - B系永久磁石には高い保磁力が要求される。R - T - B系永久磁石の保磁力を高める方法として、R - T - B系永久磁石のRの一部をDyやTbなどの重希土類元素とすることにより、R₂T₁₄B相（主相）の結晶磁気異方性を高めることが一般的に知られている。しかし、DyやTbなどの重希土類元素は地殻存在量が小さな希少元素であり、今後資源枯渇のリスクが顕在化する可能性がある懸念されており、DyやTbを使用せずにR - T - B系永久磁石の保磁力を高める技術が求められている。

30

【0004】

R - T - B系永久磁石のなかでも粉末冶金法で作製されるR - T - B系焼結磁石において、原料粉末の粉碎粒径を微細化することでDyやTbを使用せずに保磁力が向上することが非特許文献1などにより知られている。また、R₂T₁₄B相の結晶粒径を粉末冶金法では困難なサブミクロンサイズまで微細化する方法として知られるHDDR（Hydrogenation - Disproportionation - Desorption - Recombination）処理法は、R - T - B系永久磁石においてDyやTbを使用せずにさらに高い保磁力が得られる可能性をもった技術として注目されており、例えば非特許文献2に開示されている。

40

【0005】

HDDR処理法は水素化（Hydrogenation）および不均化（Disproportionation）と、脱水素（Desorption）および再結合（Recombination）とを順次実行するプロセスを意味しており、主にR - T - B系異方性ボンド磁石用の磁石粉末の製造方法として採用されている。公知のHDDR処理によれば、まず、R - T - B系合金のインゴットまたは粉末を、H₂ガス雰囲気、またはH₂ガスと不活性ガスとの混合雰囲気中で温度700 ~ 1000 に保持し、上記のインゴットまたは粉末に水素を吸蔵させる。その後、例えばH₂圧力が13 Pa以下の真空雰囲気、またはH₂分圧が13 Pa以下の不活性雰囲気中で温度700 ~ 1000 で脱水素処

50

理し、次いで冷却する。

【0006】

上記処理において、典型的には以下の反応が進行する。

【0007】

まず、所定温度で水素を吸蔵させる熱処理により、水素化および不均化反応が進行して微細組織が形成される。水素化および不均化反応の両方をあわせて「HD反応」と呼ぶ。典型的なHD反応では、 $Nd_2Fe_{14}B + 2H_2 \rightarrow 2NdH_2 + 12Fe + Fe_2B$ の反応が進行する。

【0008】

次いで、所定温度で水素を放出させる熱処理により、脱水素ならびに再結合反応が進行する。脱水素ならびに再結合反応をあわせて「DR反応」と呼ぶ。典型的なDR反応では、例えば $2NdH_2 + 12Fe + Fe_2B \rightarrow Nd_2Fe_{14}B + 2H_2$ の反応が進行する。こうして、微細な $R_2T_{14}B$ 結晶相を含む合金が得られる。

10

【0009】

なお、本明細書ではHD反応を起こすための熱処理を「HD処理」、DR反応を起こすための熱処理を「DR処理」と称する。また、HD処理およびDR処理の両方を行うことを「HDDR処理」と称する。

【0010】

HDDR処理で得られたR-T-B系HDDR磁石粉末（以下、「HDDR磁粉」と称する）は、結晶粒径が $0.1\mu m \sim 1\mu m$ であり、粉末ながら大きな保磁力を有し、磁気的な異方性を示している。しかし、HDDR処理のみではハイブリッド自動車や電気自動車の駆動モータなどでの使用に耐えうる保磁力を有する磁粉を得ることが困難であった。また、ポンド磁石用のHDDR磁粉は減磁曲線の角型性が悪く耐熱性に乏しかった。

20

【0011】

これに対し、得られたHDDR磁粉に別の材料を混合または被覆して熱処理することにより保磁力を向上させる方法がこれまでにいくつか提案されている。

【0012】

特許文献1では、Dy、Tb、Ho、Er、Tm、Gd、Nd、Sm、Pr、Ce、La、Y、Zr、Cr、Mo、V、Ga、Zn、Cu、Mg、Li、Al、Mn、Nb、Tiの中から選択される少なくとも一種の金属蒸気を、磁粉に付着させて熱処理・拡散を行うことにより、磁気特性、耐食性および耐候性が向上することが開示されている。Dy、Tb等が磁粉の粒界に拡散することにより、磁気特性の優れた磁石が得られると記載されている。

30

【0013】

特許文献2には、HDDR磁粉とR'-Al系合金を混合して熱処理することで重希土類元素を用いずに保磁力が向上することが開示されている。

【0014】

また、特許文献3は、HDDR磁石粉末をアルミニウム膜で被覆した後、 $450 \sim 600$ で熱処理を行うことを開示している。

【0015】

また、HDDR磁粉の角型性を改善しつつ、バルク磁石を得る方法として特許文献4に平均粒径 $10\mu m$ 未満のR-Fe-B系希土類合金粉末を圧粉体としてHDDR処理する方法が開示されている。

40

【先行技術文献】

【特許文献】

【0016】

【特許文献1】特開2008-69415号公報

【特許文献2】特開2012-49492号公報

【特許文献3】特開2005-15918号公報

【特許文献4】国際公開第2007/135981号

50

【非特許文献】

【0017】

【非特許文献1】小林久理真，高野隆之，佐川真人，電気学会マグネティックス研究会資料，MAG 05 118 (2005)

【非特許文献2】広沢哲，西内武司，大久保忠勝，Li Wanfang，宝野和博，山崎二郎，竹澤昌晃，隅山兼治，山室佐益，日本金属学会誌 vol. 73 p. 135 (2009)

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0018】

HDDR磁粉にR'-M系合金を拡散させた上記の磁粉は角型性に劣る。また、従来の多孔質磁石は必ずしも十分に高い保磁力を有していない。

【0019】

本発明の実施形態によれば、従来のHDDR磁粉にR'-M系合金を拡散させた磁粉と比べて良好な角型性を示し、かつ従来の多孔質磁石に比べて高い保磁力を有するR-T-B系永久磁石を提供することができる。

【課題を解決するための手段】

【0020】

本発明の実施形態において、R-T-B系多孔質磁石の製造方法は、50%体積中心粒径が1 μ m以上10 μ m未満であり、R₂T₁₄B相を含むR-T-B系合金粉末(RはNdおよび/またはPrを50原子%以上含む希土類元素、TはFe、またはFeとCo)と、粒度150 μ m未満のR'金属(R'はNd、Pr、Dy、Tbから選ばれる1種以上)またはR'-M系合金(MはAl、Ga、Co、Feから選ばれる1種以上、R'はR'-M系合金全体の20原子%以上100原子%未満)の粉末との混合粉末を用意する工程と、前記混合粉末を成形して圧粉体を作製する工程と、前記圧粉体に対し10kPa超500kPa以下の水素雰囲気中、または水素分圧が10kPa超500kPa以下の水素と不活性ガスの混合雰囲気中で650以上950未満の温度で熱処理を施し、それによって水素化および不均化反応を起こすHD処理工程と、2kPa以上10kPa以下の水素雰囲気中で650以上950未満の温度で熱処理を施し、それによって脱水素および再結合反応を起こすDR処理工程と、真空または不活性雰囲気中において650以上950未満の温度で熱処理を施し、それによってR₂T₁₄B相結晶粒の界面近傍に粒界相を形成させる粒界相形成熱処理工程とを含む。

【0021】

ある実施形態において、前記R'金属またはR'-M系合金はあらかじめ水素を吸蔵させる。

【0022】

ある実施形態において、前記HD処理工程前の昇温工程において200以上600以下の温度を水素雰囲気中で昇温する。

【0023】

ある実施形態において、前記HD処理工程前における前記圧粉体の密度は、3.5g/cm³以上5.2g/cm³以下の範囲にある。

【0024】

ある実施形態において、前記粒界相形成熱処理工程後における前記成形体は、3.5g/cm³以上6.5g/cm³以下の密度を有する多孔質である。

【0025】

ある実施形態において、前記多孔質の圧粉体は、三次元網状に連通する空隙を有し、前記圧粉体を構成する個々の粉末粒子は隣接する粉末粒子と結合している。

【0026】

ある実施形態において、前記混合粉末における前記R-T-B系合金粉末と前記R'金属またはR'-M系合金の粉末との混合比率は、重量比で(R-T-B系合金粉末):(

10

20

30

40

50

R' 金属または R' - M 系合金粉末) = m : 1 (5 m 1 0 0) である。

【 0 0 2 7 】

ある実施形態において、前記混合粉末を用意する工程は、前記 R - T - B 系合金粉末を準備する工程と、前記 R' 金属または R' - M 系合金の粉末を準備する工程と、前記 R - T - B 系合金粉末と前記 R' 金属または R' - M 系合金の粉末とを混合する工程とを含む。

【 0 0 2 8 】

ある実施形態において、前記混合粉末を用意する工程は、R - T - B 系合金と R' 金属または R' - M 系合金との混合物を、50% 体積中心粒径が 1 μm 以上 10 μm 未満の粉末に粉砕する工程を含む。

【 0 0 2 9 】

本発明の実施形態において、R - T - B 系高密度磁石の製造方法は、上記いずれかの製造方法によって製造された R - T - B 系多孔質磁石を準備する工程と、熱間圧縮成型によって前記 R - T - B 系多孔質磁石の密度を高めて高密度磁石を形成する工程とを含む。

【 0 0 3 0 】

ある実施形態において、前記高密度磁石の密度は、7.0 g / cm³ 以上 7.6 g / cm³ 以下の範囲にある。

【 発明の効果 】

【 0 0 3 1 】

本発明の実施形態によれば、R' 金属または R' - M 系合金の少なくとも一部の R - T - B 系合金への拡散を抑制しつつ R - T - B 系合金粉末の脱水素反応と再結合反応を進行させることができる。

【 図面の簡単な説明 】

【 0 0 3 2 】

【 図 1 A 】 本発明による R - T - B 系多孔質磁石の製造方法の一例を示すフローチャートである。

【 図 1 B 】 本発明の実施形態で好適に使用され得るホットプレス装置を示す図である。

【 図 2 】 比較例 1 の研磨面の走査型電子顕微鏡による反射電子像 (1 0 0 0 倍) とエネルギー分散型 X 線分析装置 (E D X) による Nd、Al、Fe の元素マッピング像 (1 0 0 0 倍) である。

【 図 3 】 実施例 1 の研磨面の走査型電子顕微鏡による反射電子像 (1 0 0 0 倍) とエネルギー分散型 X 線分析装置 (E D X) による Nd、Al、Fe の元素マッピング像 (1 0 0 0 倍) である。

【 図 4 】 比較例 1 の研磨面の走査型電子顕微鏡による反射電子像 (5 0 0 0 倍) である。

【 図 5 】 実施例 1 の研磨面の走査型電子顕微鏡による反射電子像 (5 0 0 0 倍) である。

【 図 6 】 比較例 2 の研磨面の走査型電子顕微鏡による反射電子像 (4 0 0 倍) である。

【 図 7 】 比較例 2 の研磨面の走査型電子顕微鏡による反射電子像 (1 0 0 0 0 倍) である。

【 図 8 】 比較例 3 の研磨面の走査型電子顕微鏡による反射電子像 (4 0 0 倍) である。

【 図 9 】 比較例 3 の研磨面の走査型電子顕微鏡による反射電子像 (9 5 0 0 倍) である。

【 発明を実施するための形態 】

【 0 0 3 3 】

HDDR 磁粉は、ボンド磁石として用いられるため、約 75 μm という比較的粗い粒度の原料粉末から作製される。このため、均一な HDDR 処理が困難で組織が不均質となり、その結果、減磁曲線の角型性が悪かった。また、特許文献 2 に記載されているように HDDR 磁粉と R' - Al 系合金粉末を混合し熱処理すると、R' - Al 系合金が R₂T₁₄B 相の結晶粒界に拡散し、保磁力が向上するが、R' - Al 系合金を HDDR 磁粉に拡散させた後も減磁曲線の角型性は改善せず、H_k / H_{cJ} で 0.3 程度であった。なお、H_k は磁化が B_r × 0.9 となる磁界 H の値であり、H_k / H_{cJ} が高いほど、減磁曲線の角型性に優れている。以下、減磁曲線の角型性を単に「角型性」と称する場合がある。

10

20

30

40

50

【0034】

本発明者は、前述した背景技術を踏まえ、特許文献4の製造方法によって製造される角型性に優れた多孔質磁石に対してR'-M系合金を拡散させ、角型性に優れ、かつ保磁力の高い磁石を作製しようと試みた。しかしながら、多孔質磁石はバルク体であるために、大きな磁石に対してR'-M系合金を内部まで拡散させることは困難であり、磁石の内部と外部で磁気特性のばらつきが生じてしまった。

【0035】

次に、本発明者らは多孔質磁石に均一にR'-M系合金を拡散させるために、HDDR処理前のR-T-B系合金粉末にあらかじめR'-M系合金粉末を混合しておいてからHDDR処理することを試みた。それによって得られた多孔質磁石は角型性に優れ、かつR'-M系合金を混合していない多孔質磁石に対して保磁力は向上した。しかしながら、HDDR処理した後でR'-M系合金を拡散させた多孔質磁石と比べ十分に保磁力が向上したとは言えなかった。その要因として、あらかじめ混合しておいたR'-M系合金がDR処理の $R_2T_{14}B$ 相が生成する前の段階でほとんど拡散してしまっていたことがわかった。 $R_2T_{14}B$ 相の粒界相は、DR処理の後に形成される。このため、R'-M系合金は、 $R_2T_{14}B$ 相の結晶粒界に優先的に拡散せず、粒界組織が不均質になってしまうことも分かった。

10

【0036】

本発明者らは、DR処理の雰囲気から従来の真空または不活性ガス雰囲気から、2kPa以上10kPa以下の水素雰囲気に替えてみた。そして、R'-M系合金の拡散を進行させずにR-T-B系合金粉末のDR処理だけを進行させ、R-T-B系合金粉末のDR処理完了後に真空または不活性ガス雰囲気で熱処理することで、R'-M系合金を $R_2T_{14}B$ 相の結晶粒界に優先的に拡散させた。それによって従来のHDDR磁粉にR'-M系合金を拡散させた磁粉と比べて良好な角型性を示し、かつ従来の多孔質磁石に比べて高い保磁力を有するR-T-B系永久磁石が得られることを見出した。

20

【0037】

図1Aは、本発明によるR-T-B系多孔質磁石の製造方法の一例を示すフローチャートである。

【0038】

図1Aに示す例では、まず、R-T-B系合金粉末（第1粉末）と、R'金属またはR'-M系合金の粉末（第2粉末）との混合粉末を用意する（ステップS1）。R-T-B系合金粉末は、50%体積中心粒径が1 μ m以上10 μ m未満であり、 $R_2T_{14}B$ 相を含むR-T-B系合金の粉末である。RはNdおよび/またはPrを50原子%以上含む希土類元素、TはFe、またはFeとCoである。R'金属またはR'-M系合金の粉末は、粒度150 μ m未満のR'金属またはR'-M系合金の粉末である。R'はNd、Pr、Dy、Tbから選ばれる1種以上、MはAl、Ga、Co、Feから選ばれる1種以上である。R'-M系合金の粉末において、R'はR'-M系合金全体の20原子%以上100原子%未満である。

30

【0039】

次に、このような混合粉末を成型することによって成型体（圧粉体）を作製する（ステップS2）。

40

【0040】

こうして作製した圧粉体に対し、10kPa超500kPa以下の水素雰囲気中、または水素分圧が10kPa超500kPa以下の水素と不活性ガスの混合雰囲気中で650以上950未満の温度で熱処理を施し、それによって水素化および不均化反応を起こすHD処理工程を行う（ステップS3）。

【0041】

次に、HD処理工程を終えた圧粉体に対して、2kPa以上10kPa以下の水素雰囲気中で650以上950未満の温度で熱処理を施し、それによって脱水素および再結合反応を起こすDR処理工程を行う（ステップS4）。

50

【0042】

その後、DR処理工程を終えた圧粉体に対して、真空または不活性雰囲気中において650以上950未満の温度で熱処理を施し、それによって $R_2T_{14}B$ 相結晶粒の界面近傍に粒界相を形成させる粒界相形成熱処理工程を行う(ステップS5)。

【0043】

この方法によって得られる多孔体は密度が 3.5 g/cm^3 以上 6.5 g/cm^3 以下と真密度(約 7.6 g/cm^3)に対して46%以上86%以下の水準であり、粉末粒子間に隙間が存在しているが、個々の粒子同士は結合しており、十分な機械的強度と優れた磁気特性とを発揮する。

【0044】

以下、本発明によるR-T-B系永久磁石の製造方法について、実施形態を詳細に説明する。

【0045】

< R - T - B系合金(原料合金) >

まず、主たる相として硬磁性相である $R_2T_{14}B$ 相および希土類リッチ相を含むR-T-B系合金を用意する。ここで、「R」は希土類元素であり、Ndおよび/またはPrを50原子%以上含む。本明細書における希土類元素は、スカンジウム(Sc)、イットリウム(Y)、およびランタノイドからなる群から選択された少なくとも1つの元素である。ここで、ランタノイドとは、ランタンからルテチウムまでの15の元素の総称である。TはFeまたはFeとCoである。

【0046】

本実施形態におけるR-T-B系合金は、 $R_2T_{14}B$ 相を体積比率で50%以上含んでいる。R-T-B系合金に含まれる希土類元素Rの大部分は、 $R_2T_{14}B$ 相および希土類リッチ相を構成しているが、一部は R_2O_3 やその他の相を構成してもよい。

【0047】

希土類元素Rの組成比率はR-T-B系合金全体の10原子%以上30原子%以下であり得、12原子%以上17原子%以下であり得る。さらに12原子%以上14原子%以下であると、HDDR処理後の組織において $1\text{ }\mu\text{m}$ 以上の希土類リッチ相(非磁性)の塊を減らすことができる。また、HDDR処理中の $R_2T_{14}B$ 相の粒成長を抑制でき、同時に $R_2T_{14}B$ 相の構成比率を高められる。その結果 H_{cJ} や減磁曲線の角型性の向上が期待できる。さらに、熱間圧縮成形までおこなった際の磁化の向上も図れる。また、希少元素であることから多量に用いることは避けるべきではあるが、Rの一部をDyおよび/またはTbとすることで、保磁力を向上させることもできる。

【0048】

Bの組成比率はR-T-B系合金全体の3原子%以上15原子%以下であり得る。Bの組成比率は、5原子%以上8原子%以下であり得、5.5原子%以上7.5原子%以下であってもよい。Bはその一部をCで置換してもよいが、その置換量は置換前のBの量に対して10原子%以下であり得る。

【0049】

「T」は残余を占め、Fe、またはFeおよびFeの一部を置換したCoである。その置換量はT全体の量に対して50原子%以下であり得る。また、本実施形態におけるR-T-B系合金全体に対するCoの総量は、コストなどの観点から、20原子%以下であり得、5原子%以下であり得る。Coを全く含有しない場合でも高い磁気特性は得られるが、0.5原子%以上のCoを含有すると、より安定した磁気特性を得ることができる。

【0050】

磁気特性向上などの効果を得るため、Al、Ti、V、Cr、Ga、Nb、Mo、In、Sn、Hf、Ta、W、Cu、Si、Zr、Niなどの元素を適宜添加してもよい。ただし、添加量の増加は、特に飽和磁化の低下を招くため、総量で全体の10原子%以下とすることができる。R-T-B系合金には不可避の不純物を含有していてもよい。

【0051】

10

20

30

40

50

R - T - B系合金は、磁気特性に悪影響を及ぼす - Fe相の量を低減することのできるストリップキャスト法により作製することができる。R - T - B系合金は、ブックモールド法、遠心鑄造法、アトマイズ法などによっても作製することもできる。R - T - B系合金における組織均質化などを目的として、粉碎前のR - T - B系合金に対して熱処理を施してもよい。このような熱処理は、真空または不活性ガス雰囲気において、典型的には1000以上の温度で実行され得る。

【0052】

< 拡散材 >

拡散材としてR'の金属またはR' - M系合金を用意する。ここで、「R'」は希土類元素であり、Nd、Pr、Dy、Tbからなる群から選択された少なくとも1種の希土類元素である。また、「M」は、Al、Ga、Co、Feからなる群から選択された少なくとも1種の元素である。R' - M系合金は、後に記載する水素吸蔵処理においてR'の水素化物($R'H_x$)と、R' - M化合物($R'M$ 、 $R'M_2$ など)、R' - M化合物に水素が固溶した化合物、M単相、Mに水素が固溶した相など、とに分解する。このとき生成するR' - M化合物の融点が、後に記載するHD処理の熱処理温度よりも高くなるように、「M」を選ぶことができる。例えば、Nd₇₀Al₃₀合金の場合にはNdH_xとNdAl₂に分解するがNdAl₂の融点はNd - Al合金の二元系状態図(例えば「Binary Alloy Phase Diagrams, II Ed., Ed. T.B. Massalski, 1990, 1, 181-182, Gschneidner K.A. Jr.」)から読み取ると1460であり、HD処理の熱処理温度よりも高い。なお、拡散材は、不可避の不純物を含有していてもよい。

10

20

【0053】

本実施形態で用いるR' - M系合金における希土類元素R'の組成比率は20原子%以上100原子%未満である。希土類元素R'の組成比率が20原子%未満であると、希土類元素R'が結晶粒界に十分に供給されないために保磁力の向上効果が小さい、もしくは得られない。R' - M系合金における希土類元素R'の組成比率は30原子%以上98原子%以下であり得、60原子%以上90原子%以下であってもよい。

【0054】

R'の金属またはR' - M系合金は、ブックモールド法、遠心鑄造法、アトマイズ法、ストリップキャスト法、液体超急冷法などの公知の方法によって作製することができる。

30

【0055】

< 混合粉末 >

次に、上記R - T - B系合金と拡散材を混合した混合粉末を作製する。その際、R - T - B系合金と拡散材を別々に粉碎した後に混合しても、R - T - B系合金と拡散材の混合物を粉碎してもよい。

【0056】

R - T - B系合金と拡散材を別々に粉碎する場合には、まずR - T - B系合金をジョークラッシャーなどの機械的粉碎法や水素吸蔵粉碎法などを用いて粗粉碎し、大きさ50 μ m ~ 1000 μ m程度の粗粉碎粉末を作製する。この粗粉碎粉末に対してジェットミルなどによる微粉碎を行い、50%体積中心粒径が1 μ m以上10 μ m未満のR - T - B系合金粉末(原料合金粉末)を作製する。

40

【0057】

なお、50%体積中心粒径(D_{50})は気流分散型レーザー回折法により測定できる。50%体積中心粒径が明らかに所望の範囲内であることを確認できるレベルである場合には、任意抽出の粉末の粒径を電子顕微鏡観察によって簡易に確認してもよい。

【0058】

一方、拡散材を機械的粉碎法や水素吸蔵粉碎法などを用いて粗粉碎し、例えば大きさ150 μ m未満の拡散材粉末を作製する。拡散材の粉碎時には、粉碎性の向上などを目的として固体潤滑剤および/または液体潤滑剤を添加してもよい。拡散材粉末の大きさは、JIS Z 2510記載の方法によってJIS Z 8801 - 1に規定のふるいを用い

50

て分級し、所望の粒度の範囲に調整すればよいが、拡散材粉末も50%体積中心粒径は気流分散型レーザー回折法によって測定して求めるか、電子顕微鏡によって確認する。

【0059】

作製したR-T-B系合金粉末と拡散材粉末を公知の粉末混合法によって混合し混合粉末を得る。

【0060】

取り扱いの観点から、本実施形態におけるR-T-B系合金粉末および拡散材粉末の50%体積中心粒径はそれぞれ1 μ m以上である。50%体積中心粒径が1 μ m未満になると、混合粉末が大気雰囲気中の酸素と反応しやすくなり、酸化による発熱・発火の危険性が高まるからである。取り扱いをより容易にするためには、50%体積中心粒径を3 μ m以上10 μ m以上に設定し得る。拡散材粉末の50%体積中心粒径は、酸化抑制の観点から10 μ m以上であり得る。成型体の機械的強度向上という観点から、R-T-B系合金粉末の50%体積中心粒径の上限は9 μ mに設定され得、8 μ mに設定されても良い。また、HDDR反応の均一性という観点から、本実施形態における拡散材粉末の粒径は150 μ m未満である。

10

【0061】

R-T-B系合金と拡散材を別々に粉砕することにより、R-T-B系合金粉末の50%体積中心粒径を1 μ m以上10 μ m未満、拡散材粉末の50%体積中心粒径を10 μ m以上とすることができ、特に酸素と反応しやすい拡散材粉末の酸化を抑制することができる。

20

【0062】

また、R-T-B系合金と拡散材の混合物を粉砕する場合には、まずR-T-B系合金と拡散材の混合物をジョークラッシャーなどの機械的粉砕法や水素吸蔵粉砕法などを用いて粗粉砕し、大きさ50 μ m~1000 μ m程度の粗粉砕粉末を作製する。この粗粉砕粉末に対してジェットミルなどによる微粉砕を行い、50%体積中心粒径が1 μ m以上10 μ m未満の混合粉末を作製する。R-T-B系合金と拡散材をそれぞれ大きさ50 μ m~1000 μ m程度の粗粉砕粉末としてから混合し、混合した粗粉砕粉を微粉砕してもよい。

【0063】

混合粉末の50%体積中心粒径が1 μ m未満になると、混合粉末が大気雰囲気中の酸素と反応しやすくなり、酸化による発熱・発火の危険性が高まる。取り扱いをより容易にするためには、50%体積中心粒径を3 μ m以上に設定することができる。圧粉体の機械的強度向上という観点から、50%体積中心粒径の上限は9 μ mであり得、さらに8 μ mであり得る。

30

【0064】

R-T-B系合金と拡散材の混合物を粉砕することによって、R-T-B系合金と拡散材が均一に混合された混合粉末を容易に作製することができる。

【0065】

R-T-B系合金と拡散材の混合比は、重量比で(R-T-B系合金):(拡散材)=m:1(5<m<100)であり得る。mが5未満であると、拡散材の割合が多くなりすぎると、主相である $R_2T_{14}B$ 相の体積率の低下を招き、結果として残留磁束密度の低下を招く可能性がある。また、mが100を超えると拡散材を添加した効果がほとんど得られなくなる可能性がある。

40

【0066】

混合粉末における希土類元素RおよびR'の総量は、混合粉末全体の10原子%以上30原子%以下であり得、12原子%以上17原子%以下であってもよい。また、混合粉末における希土類元素RおよびR'の総量は、混合粉末全体の15原子%以下であると、ホットプレス後に金型から取り出しやすい。

【0067】

<圧粉体>

50

次に、上記の混合粉末を成型し、圧粉体を作製する。圧粉体を成型する工程は、例えば $10\text{ MPa} \sim 200\text{ MPa}$ の圧力を付加し、 $0.4\text{ MA/m} \sim 16\text{ MA/m}$ の磁界中（静磁界、パルス磁界など）で行うことができる。成型は公知の粉末プレス装置によって行うことができる。粉末プレス装置から取り出し時の圧粉体密度（成型体密度）は、例えば $3.5\text{ g/cm}^3 \sim 5.2\text{ g/cm}^3$ 程度である。

【0068】

上記の成型工程は、磁界を印加することなく実行してもよい。磁界配向を行わない場合、最終的には等方性の多孔質磁石が得られることになる。しかし、より高い磁気特性を得るためには、磁界配向を行いながら成型工程を実行し、最終的に異方性の多孔質磁石を得ることができる。

10

【0069】

R-T-B系合金および拡散材の粉碎工程、および上記圧粉体の成型工程は、R-T-B系合金粉末および拡散材粉末の酸化を抑制しながら行うことができる。R-T-B系合金粉末および拡散材粉末の酸化を抑制するために、各工程および各工程間のハンドリングをできる限り酸素量を抑制した不活性雰囲気で行うことができる。DR処理前の圧粉体の酸素量は1質量%以下に抑制することができ、さらに0.6質量%以下に抑制することができる。

【0070】

本発明の実施形態では、混合粉末を圧縮して成型した圧粉体に対してHDDR処理を行う。この圧粉体の内部には、水素ガスが移動・拡散可能な隙間が粉末粒子の間に十分な大きさで存在している。また、本発明の実施形態では、50%体積中心粒径が $1\text{ }\mu\text{m}$ 以上 $10\text{ }\mu\text{m}$ 未満の原料粉末を使用しているため、水素が粉末粒子内の全体を移動することが容易である。これらのHD反応およびDR反応を短時間で進行させることができる。こうして、HDDR後の組織が均質化されるため、高い磁気特性、特に良好な角型性が得られるとともに、HDDR工程に要する時間を短縮できるという利点を得られる。

20

【0071】

< HDDR 処理 >

次に上記成型工程によって得られた圧粉体に対し、HDDR処理を施す。本実施形態において、HDDR処理は昇温工程、HD処理工程、DR処理工程、粒界相形成熟処理工程の4工程を含む。

30

【0072】

昇温工程は、混合粉末を用いて成型した圧粉体に対し、HD処理工程の処理温度まで圧粉体を加熱する工程である。昇温工程は、水素分圧 10 kPa 超 500 kPa 以下の水素ガス雰囲気または水素ガスと不活性ガス（ArやHeなど）の混合雰囲気、不活性ガス雰囲気、真空中のいずれかで行う。なお、昇温中の拡散材の拡散を抑制するために拡散材をあらかじめ 1 kPa 以上の水素雰囲気、または水素分圧が 1 kPa 以上の水素と不活性ガスの混合雰囲気において 950 以下の温度で水素吸蔵させることができる。あるいは、昇温中の拡散材の拡散を抑制するために 600 まで水素を含む雰囲気中で昇温し、 600 以降はR-T-B系合金粉末の低温でのHD反応の進行による配向度の低下を抑制するために不活性ガス雰囲気、または真空中で昇温することができる。前述のようにして昇温前に水素吸蔵させたものに対して、このような昇温過程を経てもよい。なお、水素吸蔵時や水素雰囲気での昇温時にR-T-B系合金粉末に存在する希土類リッチ相は水素化され、主にRの水素化物として存在する。また、拡散材はR'の水素化物やR'-M化合物などに分解される。RおよびR'の水素化物の融点は、HD処理工程の処理温度よりも高いため、R'-M合金の拡散を抑制することができる。

40

【0073】

次いで行うHD処理工程は、水素雰囲気中において $R_2T_{14}B$ 相をHD反応させて不均化組織を得る工程である。この時、HD処理工程の温度および水素分圧を適正に制御することによって最終的に得られる磁石の磁氣的異方性を高めることができる。HD処理工程の温度は 650 以上 950 未満である。 650 未満では不均化が十分に進むまでに

50

時間がかかりすぎる。また、950 以上では不均化組織が粗大化するため、後のDR処理工程によって得られる $R_2T_{14}B$ 相の集合組織が粗大となり、磁気特性、特に保磁力の低下を招く。特に粒成長を抑制するという観点から、HD処理工程の温度を900 以下に設定することができる。

【0074】

HD処理工程の水素分圧は20kPa以上とすることができる。水素分圧が20kPa未満では $R_2T_{14}B$ 相の不均化が十分に進むまでに時間がかかりすぎるため、生産性の低下を招く可能性がある。また、500kPaを超える水素分圧では、処理に特殊な装置が必要となるため、500kPa以下であり得、150kPa以下であり得る。水素分圧が150kPaを超えると水素吸蔵が急激に起こってしまい、水素吸蔵に伴う体積膨張によって圧粉体にクラックが入ってしまう可能性がある。

10

【0075】

HD処理工程に要する時間は、10分以上5時間以下とすることができる。10分未満では、 $R_2T_{14}B$ 相の不均化が十分に進まない可能性がある。また、5時間を超えると不均化組織が粗大化するため、DR処理工程後の再結合組織が粗大となり、磁気特性、特に保磁力の低下を招く可能性がある。より望ましくは15分以上2時間以下である。

【0076】

次いで行うDR処理工程は、2kPa以上10kPa以下の水素雰囲気中で650 以上950 未満の温度で熱処理を施し、それによって拡散材粉末の拡散を抑制しつつR-T-B系合金粉末の脱水素および再結合反応を起こし、 $R_2T_{14}B$ 相を再結合反応により生成させる。2kPa未満では、拡散材の拡散が進行してしまい、10kPa超ではR-T-B系合金のDR反応が起こり難い。より高い保磁力を得るためには3kPa以上8kPa以下に設定され得る。2kPa以上10kPa以下の水素雰囲気は、例えば真空ポンプなどによって排気速度を制御しつつ熱処理装置内を排気してHD処理工程後の圧粉体から脱水素して発生する水素とバランスさせることで実現できる。DR処理工程の温度は650 以上950 未満である。650 未満では脱水素反応が実質的に起こらない。また、950 以上では再結合した $R_2T_{14}B$ 相が結晶粒成長してしまうため、磁気特性、特に保磁力の低下を招く。粒成長を抑制するという観点からは、DR処理工程の温度を900 以下に設定され得る。また、DR処理工程に要する時間は、15分程度で $R_2T_{14}B$ 相の再結合反応は完了するため15分以上に設定され得、30分以上処理することにより、さらなる保磁力の向上効果を得ることができる。逆に長時間処理しすぎると生産コストの増加につながるため、10時間以下に設定され得、さらに3時間以下に設定され得る。

20

30

【0077】

DR処理工程で生成した $R_2T_{14}B$ 相は典型的には0.1 μm 以上1.0 μm 以下の平均結晶粒径を有する集合組織を形成する。なお、R'-M系合金のM元素にAlなどの $R_2T_{14}B$ 相に拡散し易い元素を用いた場合にはDR処理工程中にM元素がR-T-B系合金粉末に拡散することがあるが、R'の拡散は十分に抑制できるため保磁力を向上させる効果は十分に発揮される。

【0078】

また、HD処理工程とDR処理工程の間で数分程度、不活性ガスを流気して熱処理装置内の水素を置換しても良い。それによってDR処理工程において真空ポンプで熱処理装置内を排気する際に大量の水素がポンプ内へ流入することがなく、安全に処理がおこなえる。次いで行う粒界相形成熱処理工程は、真空または不活性雰囲気において650 以上950 未満で保持することにより、R-T-B系合金粉末に含まれるRの水素化物およびR'-M系合金粉末の脱水素反応を起こし、Rに富む液相が生成し、 $R_2T_{14}B$ 相の結晶粒界に粒界相(希土類リッチ相)が形成されて保磁力が発現する。拡散材粉末を混合していない場合に比べ、粒界相(希土類リッチ相)がより均質に形成されるために高い保磁力が得られる。さらに、焼結反応も同時に起こり、多孔質の永久磁石となる。粒界相形成熱処理工程の雰囲気は不活性ガスを導入しつつ真空排気する減圧雰囲気にすることで処理中

40

50

の酸化が抑えられるため保磁力の低下が防止される。また粒界相形成熱処理工程の温度は650以上950未満である。650未満では脱水素反応が実質的に起こらない。また、950を超えると $R_2T_{14}B$ 相が結晶粒成長してしまうため、磁気特性、特に保磁力の低下を招く。粒成長を抑制するという観点からは、粒界相形成熱処理工程の温度を900以下に設定され得る。また、粒界相形成熱処理工程に要する時間は、5分以上10時間以下に設定され得、さらに10分以上1時間以下に設定され得る。

【0079】

<多孔質磁石>

上記HDDR処理によって、 3.5 g/cm^3 以上 6.5 g/cm^3 以下の密度を有する多孔質磁石が得られる。なお、本明細書における「密度」とは、すべて、室温(約20から約30)で計測した磁石の寸法と重量から計算した磁石内部の空隙を含む見かけ密度を指すものとする。このため、各熱処理工程によって室温よりも高い温度に上昇した成型体に関する「密度」として表示する値も、その温度における密度の値でなく、室温で測定した場合の値である。

10

【0080】

この多孔質磁石には、HDDR処理工程で相互に結合した粉末粒子の間に、三次元網状に連通する長径 $10\text{ }\mu\text{m}$ 程度の空隙が存在している。圧粉体を構成していた個々の粉末粒子は、HDDR処理により隣接する粉末粒子と結合し、剛性を発揮する三次元構造を形成するとともに、個々の粉末粒子内では微細な $Nd_2Fe_{14}B$ 型結晶相の集合組織が形成されている。本発明の実施形態におけるR-T-B系多孔質磁石の密度は、 3.5 g/cm^3 以上 6.5 g/cm^3 以下であるが、粉末粒子間の隙間が存在した状態でも、粒子同士が結合し、十分な機械的強度と優れた磁気特性とを発揮する。

20

【0081】

<多孔質磁石の熱間圧縮成型>

上記の方法によって得られた多孔質磁石は、そのままの状態バルク永久磁石として利用することができるが、さらにホットプレス法などの熱間圧縮成型を用いることによって、高密度化を行い、平均結晶粒径 $0.1\text{ }\mu\text{m}$ 以上 $1.0\text{ }\mu\text{m}$ 以下の $R_2T_{14}B$ 相の集合組織を有する高密度磁石を得ることができる。ここで、高密度磁石とは、密度が 7.0 g/cm^3 以上 7.6 g/cm^3 以下の磁石を意味する。

30

【0082】

以下に熱間圧縮成型による高密度化について、具体的な実施形態の一例を示す。多孔質磁石に対する熱間圧縮は、公知の熱間圧縮技術を用いて行うことができる。例えば、ホットプレス、SPS(spark plasma sintering)、HIP、熱間圧延などの熱間圧縮成型を行うことが可能である。なかでも、所望の形状を得やすいホットプレスやSPSが好適に用いられ得る。以下、ホットプレスを行う手順について説明する。

【0083】

本実施形態では、図1Bに示す構成を有するホットプレス装置を用いる。この装置は、中央に開口部を有する金型(ダイ)27と多孔質磁石を加圧するための上パンチ28aおよび下パンチ28bと、これらのパンチ28a、28bを昇降する駆動部30a、30bとを備えている。

40

【0084】

上述した方法によって作製した多孔質磁石(図1Bでは参照符号「10」と付している)を、図1Bに示す金型27に装填する。このとき、配向方向とプレス方向とが一致するように装填を行うことができる。金型27およびパンチ28a、28bは、使用する雰囲気ガス中で加熱温度および印加圧力に耐えうる材料から形成される。このような材料としては、カーボンや、タングステンカーバイドなどの超硬合金が使用され得る。なお、多孔質磁石10の外形寸法は金型27の開口部寸法よりも小さく設定しておくことにより、異方性を高められる。次に、多孔質磁石10を装填した金型27をホットプレス装置にセットする。本実施形態におけるホットプレス装置は、真空(1.3 Pa 以下)または不活性

50

雰囲気制御することが可能なチャンバ26を備えている。チャンバ26内には、例えば抵抗加熱によるカーボンヒーターなどの加熱装置と、多孔質磁石を加圧して圧縮するためのシリンダーとが備え付けられている。

【0085】

チャンバ26内を真空または不活性ガス雰囲気で満たした後、加熱装置により金型27を加熱し、金型27に装填された多孔質磁石10の温度を600 ~ 900 に高め、9.8 ~ 294 MPaの圧力Pで多孔質磁石10を加圧する。本実施形態において、多孔質磁石10に対する加圧は、金型27の温度が設定レベルに到達してから開始する。金型の温度が十分に高くない場合には、加圧時に多孔質磁石に割れが生じたり、得られる高密度磁石の配向度が悪化してしまう可能性がある。加圧しながら600 ~ 900 の温度で10分以上保持した後、冷却する。加熱圧縮により高密度化された磁石が大気と接触して酸化しない程度の低い温度(100 以下程度)まで冷却が進んだ後、本実施例の磁石をチャンバから取り出す。こうして、上記の多孔質磁石から本実施形態のR-T-B系高密度磁石を得ることができる。

10

【0086】

こうして得られた磁石の密度は真密度の90%以上に達する。また、本実施形態によれば、最終的な結晶相集合組織において、個々の結晶粒の最短粒径aと最長粒径bの比b/aが2未満である結晶粒が全結晶粒の50体積%以上存在する。この点において、本実施形態の磁石は、例えば特開平02-39503号公報などに記載の従来の熱間塑性加工による異方性バルク磁石と大きく異なっている。このような磁石の結晶組織においては最短粒径aと最長粒径bの比b/aが2を超えた扁平な結晶粒が支配的である。

20

【実施例】

【0087】

下の表1に示す組成のR-T-B系合金、および表2に示す組成のR'の金属またはR'-M系合金を用意し、上述した実施形態の製造方法により、多孔質磁石を作製した。以下、本実施例における多孔質磁石の作製方法を説明する。

【0088】

【表1】

R-T-B系 合金	合金組成 (原子%)					
	Nd	Fe	Co	B	Ga	Cu
B1	13.7	77.0	3.0	6.1	0.2	-
B2	13.2	77.5	3.0	6.1	0.2	-
B3	12.7	78.0	3.0	6.1	0.2	-
B4	12.2	78.5	3.0	6.1	0.2	-
B5	14.2	76.4	3.0	6.1	0.2	0.1
B6	13.7	76.9	3.0	6.1	0.2	0.1
B7	13.2	77.4	3.0	6.1	0.2	0.1
B8	12.7	77.9	3.0	6.1	0.2	0.1
B9	12.2	78.4	3.0	6.1	0.2	0.1

30

40

【0089】

【表 2】

拡散材	合金組成 (原子%)					
	Nd	Pr	Al	Ga	Fe	Co
D1	100	-	-	-	-	-
D2	98		2			
D3	90	-	10	-	-	-
D4	80	-	20	-	-	-
D5	70	-	30	-	-	-
D6	60	-	40	-	-	-
D7	30	-	70	-	-	-
D8	20	-	80	-	-	-
D9	10	-	90	-	-	-
D10	90	-	-	10	-	-
D11	90	-	-	-	10	-
D12	90	-	-	-	-	10
D13	-	70	30	-	-	-

10

20

【0090】

(実験例1) DR雰囲気制御(粒界形成熟処理有無による組織変化)

まず、表1のB5、B7の組成を有するR-T-B系合金をストリップキャスト法で作製した。得られた合金を水素吸蔵崩壊法によって粒径425 μ m以下の粉末に粗粉碎した後、ジェットミルを用いて粗粉末を微粉碎し、50%体積中心粒径4.6 μ mの微粉末を得た。なお、50%体積中心粒径は、レーザー回折式粒度分布測定装置(Sympatec社製、HEROS/RODOS、以下すべて同じ装置で測定)によって測定した。

30

【0091】

また、表2のD5の組成を有する拡散材をメルトスピニング法で作製した。具体的には、オリフィス径0.8mmの石英ノズル中で合金を溶解し、ロール周速度20m/sで回転する銅ロールに噴射し、リボン状の合金を得た。これらの合金を水素ガス流気中で400まで昇温し水素を吸蔵させた後、機械粉碎により粉碎し、目開き53 μ mのメッシュを用いて分級し、大きさが53 μ m以下の拡散材粉末を得た。なお、得られた拡散材粉末の粒径は明らかに1 μ m以上であることを、電子顕微鏡観察によって確認した。得られたR-T-B系合金粉末および拡散材粉末を、メノウ乳鉢を用い表3に示す混合比で混合し、混合粉末M1、M2を得た。

【0092】

【表3】

40

混合粉末	R-T-B系合金	拡散材	R-T-B系合金： 拡散材 (重量比)	混合粉組成 (原子%)						
				Nd	Fe	Co	B	Ga	Cu	Al
M1	B5	D5	15:1	16.4	73.5	2.9	5.9	0.2	0.1	1.2
M2	B7	D5	15:1	15.4	74.4	2.9	5.9	0.2	0.1	1.1

【0093】

次に、混合粉末M2をプレス装置の金型に充填し、1.2MA/mの磁界中において、

50

磁界と直角方向に 32 MPa の圧力を印加して圧粉体を作製した。圧粉体の密度は、寸法と重量に基づいて計算すると、 4.2 g/cm^3 であった。

【0094】

次に、圧粉体に対して前述の HDDR 処理を行った。具体的には、圧粉体を 100 kPa の水素流気中で 600 まで $14 / \text{min}$ の昇温速度で昇温し、その後雰囲気を 100 kPa のアルゴン流気に切り替えた後、860 まで $14 / \text{min}$ の昇温速度で昇温し、次いで雰囲気を 100 kPa の水素流気に切り替えた後、860 を 120 分保持して HD 処理工程を行った。その後、860 に保持したまま Ar 流気に切り替えて 2 分保持して熱処理装置内の雰囲気を置換した。次いで Ar ガスを止めて熱処理装置内を真空ポンプで排気し、圧粉体から発生する水素の排気速度を調整して熱処理装置内の水素圧力を 4.0 kPa に調整しながら 60 分保持し、DR 処理工程を行った。次いで 860 のまま 5.3 kPa に減圧したアルゴン流気中で 10 分保持し、粒界相形成熱処理工程を行った。その後、100 kPa のアルゴン流気中で室温まで冷却し、実施例 1 (表 4 の条件 S1) を作製した。また、比較例として DR 処理工程を行った後、粒界相形成熱処理工程を行わずに 100 kPa のアルゴン流気中で室温まで冷却した比較例 1 (表 4 の条件 S2) も作製した。さらに DR 処理の雰囲気制御をおこなわず、従来の条件で DR 処理を行った比較例を作製した。

10

【0095】

混合粉末 M1 をプレス装置の金型に充填し、 0.6 MA/m の磁界中において、磁界と平行方向に 76 MPa の圧力を印加して圧粉体を作製した。圧粉体の密度は、寸法と重量に基づいて計算すると、 4.3 g/cm^3 であった。

20

【0096】

次に、圧粉体に対して前述の HDDR 処理を行った。具体的には、圧粉体を 100 kPa の水素流気中で 600 まで $14 / \text{min}$ の昇温速度で昇温し、100 kPa の水素流気中で 600 を 30 分保持した。その後雰囲気を 100 kPa のアルゴン流気に切り替えた後、860 まで $14 / \text{min}$ の昇温速度で昇温し、次いで雰囲気を 100 kPa の水素流気に切り替えた後、860 を 120 分保持して HD 処理工程を行った。その後、860 に保持したまま表 4 に示すように雰囲気を 100 kPa のアルゴン流気に切り替えて 30 分、50 分保持し、従来処理に相当する DR 処理工程を行った。その後、100 kPa のアルゴン流気中で室温まで冷却し、比較例 2 (表 4 の条件 S3)、比較例 3 (表 4 の条件 S4) を作製した。

30

【0097】

【表 4】

条件 No.	DR 処理工程		粒界相形成熱処理工程		
	水素圧力 (kPa)	処理時間 (min)	Ar 圧力 (kPa)	処理時間 (min)	
S1	4.0	60	5.3	10	実施例 1
S2	4.0	60	-	-	比較例 1
S3	0(Ar100kPa)	30	-	-	比較例 2
S4	0(Ar100kPa)	50	-	-	比較例 3

40

【0098】

作製したサンプルの寸法と重量から密度を計算すると、実施例 1 が 5.56 g/cm^3 、比較例 1 が 5.25 g/cm^3 、比較例 2 が 5.56 g/cm^3 、比較例 3 が 5.65 g/cm^3 であった。作製したサンプルに対して 3.2 MA/m のパルス磁界で着磁した後、磁気特性を BH トレーサー (装置名: MTR-1412 (メトロン技研社製)) で測定した。結果を表 5 に示す。表 5 からわかるように DR 処理工程の後、粒界形成熱処理工程

50

を行わなかった比較例 1 は保磁力 (H_{cJ}) が非常に低く、粒界形成熟処理工程を行った実施例 1 は高い保磁力 (H_{cJ}) が得られた。また、従来の DR 処理工程によって得られた比較例 3 は実施例 1 に比べて低い保磁力 (H_{cJ}) となった。なお、比較例 2 は従来の DR 処理工程を行っているが DR 処理時間が短いので DR 反応が完了せず、粒界も形成されていないために比較例 1 と同様に非常に低い保磁力 (H_{cJ}) となった。表 5 において、 J_{max} は、着磁したサンプルの着磁方向に 2 テスラ (T) まで磁界 H を印加したときのサンプルの磁化 J (T) の最大測定値であり、 B_r / J_{max} は高いほど配向性に優れている。また、 H_k は磁化 $B_r \times 0.9$ となる磁界 H の値であり、 H_k / H_{cJ} が高いほど、減磁曲線の角型性に優れている。

【 0 0 9 9 】

【表 5】

混合粉末	条件 No.	密度 (g/cm ³)	B_r (T)	H_{cJ} (kA/m)	$(BH)_{max}$ (kJ/m ³)	B_r / J_{max} -	H_k / H_{cJ} -	
M2	S1	5.56	0.92	1334	164	0.98	0.579	実施例 1
	S2	5.25	0.86	54	22	0.96	0.543	比較例 1
M1	S3	5.56	0.75	69	19	0.85	0.343	比較例 2
	S4	5.65	0.88	1007	148	0.97	0.619	比較例 3

【 0 1 0 0 】

図 2 に比較例 1 (DR 雰囲気制御あり、粒界相形成熟処理なし) の研磨面の走査型電子顕微鏡 (日本電子製: JSM-7001FA) による 1000 倍の反射電子像 (BSE 像: 4 つの像のうち左上の像) と同顕微鏡に装備されたエネルギー分散型 X 線分析装置 (EDX) による Nd、Fe、Al の元素マッピング像を示す。図 3 に実施例 1 (DR 雰囲気制御、粒界相形成熟処理ともあり) の研磨面の走査型電子顕微鏡 (日本電子製: JSM-7001FA) による 1000 倍の反射電子像 (BSE 像: 4 つの像のうち左上の像) と同顕微鏡に装備されたエネルギー分散型 X 線分析装置 (EDX) による Nd、Fe、Al の元素マッピング像を示す。

【 0 1 0 1 】

粒界相形成熟処理を行わなかった比較例 1 (図 2) では、反射電子像に明るいコントラストで示される希土類リッチ相のなかに 10 μ m 以上のサイズのものが確認され、元素マッピングから Nd が多く、Al もその周囲に比較的濃化していることから DR 処理工程後も拡散材がある程度残留していることがわかる。

【 0 1 0 2 】

一方、粒界相形成熟処理を行った実施例 1 (図 3) では、10 μ m 以上のサイズの希土類リッチ相は確認されなかった。

【 0 1 0 3 】

図 4 および図 5 は、それぞれ、比較例 1 および実施例 1 の研磨面の走査型電子顕微鏡 (日本電子製: JSM-7001FA) による 5000 倍の反射電子像 (BSE 像) を示す。粒界相形成熟処理を行わなかった比較例 1 (図 4) では、結晶粒界、特に 2 粒子粒界に明るいコントラストで示される粒界相 (希土類リッチ相) が見られないが、粒界相形成熟処理を行った実施例 1 (図 5) では 2 粒子粒界に均質な粒界相 (希土類リッチ相) が形成されている。

【 0 1 0 4 】

これらの結果より、DR 雰囲気の制御を行った DR 処理終了後では、拡散材が拡散せずにある程度残存しているが、粒界相はまだ形成されず、粒界相形成熟処理によって拡散材の拡散が急激に起こり、粒界相の形成に寄与したと考えられる。

【 0 1 0 5 】

10

20

30

40

50

図6、図7に比較例2（従来のDR処理、DR反応未完了）の研磨面の走査型電子顕微鏡（日本電子製：J S M - 7 0 0 1 F A）による400倍と10000倍の反射電子像（BSE像）を、図8、図9に同じく比較例3（従来のDR処理）の400倍と9500倍のBSE像を示す。

【0106】

比較例2では、図6の400倍のBSE像からは、図3の実施例1と同じく拡散材粉末が残存していないことがわかる。また、図7の10000倍のBSE像から、R-T-B系合金粉末中にFe相が残留しており、R-T-B系合金粉末の再結合反応が完了せず、粒界相も形成されていないことが確認できる。これらより、比較例2ではDR雰囲気制御を行っていないため、粒界相が形成される前に拡散材の拡散が起こってしまっていることがわかる。一方比較例3では、図8の400倍のBSE像から、比較例2と同じく、DR雰囲気制御を行っていないため拡散材の拡散が起こってしまい、拡散材粉末が残存していないことが確認でき、図9の9500倍のBSE像から、R-T-B系合金粉末の再結合反応が完了し、 $R_2T_{14}B$ 相の結晶粒界に不均質ではあるものの粒界相も形成されていることがわかる。これらの結果から、DR雰囲気制御をおこなわない従来のDR処理においては、粒界相を形成する前に拡散材の拡散が起こってしまい、粒界相の形成にあまり寄与しなかったと考えられる。このために、比較例3のように最終的に高い保磁力が得られなかったと考えられる。

【0107】

なお、比較例2および3は、実施例1と使用するR-T-B系合金の組成が異なるが、これは、より希土類量の多い組成の合金を使用してR'-M合金を残存しやすくしたためであるが、それでも粒界相形成前にR'-M合金が拡散してしまったことから、より実施例の効果が確認できた。

【0108】

（実験例2）DR雰囲気制御（水素圧力変化）

まず、表1の組成を有するR-T-B系合金B6をストリップキャスト法で作製した。得られた合金を水素吸蔵崩壊法によって粒径425μm以下の粉末に粗粉碎した後、ジェットミルを用いて粗粉末を微粉碎し、50%体積中心粒径4.9μmの微粉末を得た。なお、50%体積中心粒径は、レーザー回折式粒度分布測定装置（Symptec社製、HEROS/RODOS、以下すべて同じ装置で測定）によって測定した。

【0109】

また、表2の組成を有する拡散材D5をメルトスピニング法で作製した。具体的には、オリフィス径0.8mmの石英ノズル中で合金を溶解し、ロール周速度20m/sで回転する銅ロールに噴射し、リボン状の合金を得た。この合金を水素ガス流気中で400まで昇温し水素を吸蔵させた後、機械粉碎により粉碎し、目開き53μmのメッシュを用いて分級し、大きさが53μm以下の拡散材粉末を得た。なお、得られた拡散材粉末の粒径は明らかに1μm以上であることを、電子顕微鏡観察によって確認した。得られたR-T-B系合金粉末および拡散材粉末を、メノウ乳鉢を用い表6に示す混合比で混合し、混合粉末M3を得た。

【0110】

【表6】

混合粉末	R-T-B系合金	拡散材	R-T-B系合金： 拡散材 (重量比)	混合粉組成（原子%）						
				Nd	Fe	Co	B	Ga	Cu	Al
M3	B6	D5	15:1	15.9	73.9	2.9	5.9	0.2	0.1	1.2

【0111】

次に、この混合粉末をプレス装置の金型に充填し、1.2MA/mの磁界中において、

10

20

30

40

50

磁界と直角方向に 3.2 MPa の圧力を印加して圧粉体を作製した。圧粉体の密度は、寸法と重量に基づいて計算すると、 4.2 g/cm^3 であった。

【0112】

次に、圧粉体に対して前述の HDDR 処理を行った。具体的には、圧粉体を 100 kPa の水素流気中で 600 まで 14 /min の昇温速度で昇温し、その後雰囲気を 100 kPa のアルゴン流気に切り替えた後、860 まで 14 /min の昇温速度で昇温し、次いで雰囲気を 100 kPa の水素流気に切り替えた後、860 を 120 分保持して HD 処理工程を行った。その後、860 に保持したまま Ar 流気に切り替えて 2 分保持して熱処理装置内を置換した。次いで Ar ガスを止めて熱処理装置内を真空ポンプで排気し、表 7 に示すように圧粉体から発生する水素の排気速度を調整して熱処理装置内の水素圧力を $0.01 \sim 15.0 \text{ kPa}$ に調整しながら 60 分保持し、DR 処理工程を行った。

10

【0113】

次いで 860 のまま 5.3 kPa に減圧したアルゴン流気中で 60 分保持し、粒界相形成熱処理工程を行った。その後、100 kPa のアルゴン流気中で室温まで冷却し、サンプルを作製した。また、比較例として HD 処理工程後に DR 処理工程を行わず、860 で 5.3 kPa に減圧したアルゴン流気中で 60 分保持し、100 kPa のアルゴン流気中で室温まで冷却したサンプルも作製した。

【0114】

【表 7】

20

条件 No.	DR 処理工程		粒界相形成熱処理工程	
	水素圧力 (kPa)	処理時間 (min)	Ar 圧力 (kPa)	処理時間 (min)
S5	0.01	60	5.3	60
S6	2.0	60	5.3	60
S7	4.0	60	5.3	60
S8	5.0	60	5.3	60
S9	6.0	60	5.3	60
S10	10.0	60	5.3	60
S11	15.0	60	5.3	60

30

【0115】

作製したサンプルの寸法と重量から密度を計算すると、 $6.09 \sim 6.47 \text{ g/cm}^3$ であった。

【0116】

作製したサンプルに対して 3.2 MA/m のパルス磁界で着磁した後、磁気特性を BH トレーサー（装置名：MTR-1412（メトロン技研社製））で測定した。結果を表 8 に示す。表 8 からわかるように DR 処理工程の水素圧力が $2 \text{ kPa} \sim 10 \text{ kPa}$ で処理した場合に高い H_{cJ} が得られていることがわかる。

40

【0117】

【表 8】

混合粉末	条件 No.	密度 (g/cm ³)	B _r (T)	H _{cJ} (kA/m)	(BH) _{max} (kJ/m ³)	B _r /J _{max} -	H _k /H _{cJ} -	
M3	S5	6.47	1.05	942	207	0.98	0.66	比較例 4
	S6	6.22	1.00	1251	180	0.98	0.58	実施例 2
	S7	6.28	1.01	1346	184	0.98	0.54	実施例 3
	S8	6.28	1.02	1332	197	0.98	0.54	実施例 4
	S9	6.27	1.02	1333	199	0.98	0.57	実施例 5
	S10	6.25	1.03	1107	186	0.99	0.60	実施例 6
	S11	6.09	1.00	684	188	0.99	0.69	比較例 5

10

【0118】

(実験例 3) DR 雰囲気制御 (R-T-B 系合金組成)

まず、表 1 の組成を有する R-T-B 系合金 B1、B2、B3、B5、B7 をストリップキャスト法で作製した。得られた合金を水素吸蔵崩壊法によって粒径 425 μm 以下の粉末に粗粉碎した後、ジェットミルを用いて粗粉末を微粉碎し、50% 体積中心粒径 5.0 μm の微粉末を得た。なお、50% 体積中心粒径は、レーザー回折式粒度分布測定装置 (Sympatec 社製、HEROS/RODOS、以下すべて同じ装置で測定) によって測定した。

20

【0119】

また、表 2 の組成を有する拡散材 D5 をメルトスピニング法で作製した。具体的には、オリフィス径 0.8 mm の石英ノズル中で合金を溶解し、ロール周速度 20 m/s で回転する銅ロールに噴射し、リボン状の合金を得た。この合金を水素ガス流気中で 400 まで昇温し水素を吸蔵させた後、機械粉碎により粉碎し、目開き 53 μm のメッシュを用いて分級し、大きさが 53 μm 以下の拡散材粉末を得た。なお、得られた拡散材粉末の粒径は明らかに 1 μm 以上であることを、電子顕微鏡観察によって確認した。得られた R-T-B 系合金粉末および拡散材粉末を、メノウ乳鉢を用い表 9 に示す混合比で混合し、混合粉末 M4 ~ M8 を得た。

30

【0120】

【表 9】

混合粉末	R-T-B 系合金	拡散材	R-T-B 系合金 : 拡散材 (重量比)	混合粉組成 (原子%)						
				Nd	Fe	Co	B	Ga	Cu	Al
M4	B1	D5	15:1	15.9	74.0	2.9	5.9	0.2	0.0	1.2
M5	B2		15:1	15.4	74.5	2.9	5.9	0.2	0.0	1.1
M6	B3		15:1	14.9	75.0	2.9	5.9	0.2	0.0	1.1
M7	B5		15:1	16.4	73.5	2.9	5.9	0.2	0.1	1.2
M8	B7		15:1	15.4	74.4	2.9	5.9	0.2	0.1	1.1

40

【0121】

次に、この混合粉末をプレス装置の金型に充填し、1.2 MA/m の磁界中において、磁界と直角方向に 32 MPa の圧力を印加して圧粉体を作製した。圧粉体の密度は、寸法と重量に基づいて計算すると、4.2 ~ 4.5 g/cm³ であった。

【0122】

50

次に、圧粉体に対して前述のHDDR処理を行った。具体的には、圧粉体を100kPaの水素流気中で600℃まで14/minの昇温速度で昇温し、その後雰囲気気を100kPaのアルゴン流気に切り替えた後、860℃まで14/minの昇温速度で昇温し、次いで雰囲気気を100kPaの水素流気に切り替えた後、860℃を120分保持してHD処理工程を行った。その後、860℃に保持したままAr流気に切り替えて2分保持して熱処理装置内を置換した。次いでArガスを止めて熱処理装置内を真空ポンプで排気し、表7の条件S7と同様に圧粉体から発生する水素の排気速度を調整して熱処理装置内の水素圧力を4.0kPaに調整しながら60分保持し、DR処理工程を行った。次いで860℃のまま5.3kPaに減圧したアルゴン流気中で60分保持し、粒界相形成熱処理工程を行った。その後、100kPaのアルゴン流気中で室温まで冷却し、サンプルを作製した。

【0123】

作製したサンプルの寸法と重量から密度を計算すると、6.19~6.39g/cm³であった。

【0124】

作製したサンプルに対して3.2MA/mのパルス磁界で着磁した後、磁気特性をBHトレーサー(装置名: MTR-1412(メトロン技研社製))で測定した。結果を表10に示す。表10からわかるようにいずれの組成においても高いH_{cJ}が得られていることがわかる。

【0125】

【表10】

混合粉末	条件No.	密度(g/cm ³)	B _r (T)	H _{cJ} (kA/m)	(BH) _{max} (kJ/m ³)	B _r /J _{max} -	H _k /H _{cJ} -	
M4	S7	6.22	0.98	1293	182	0.97	0.53	実施例7
M5		6.22	0.96	1343	173	0.97	0.51	実施例8
M6		6.36	0.96	1374	171	0.97	0.47	実施例9
M7		6.19	1.01	1347	196	0.98	0.53	実施例10
M8		6.39	1.02	1370	200	0.98	0.55	実施例11

【0126】

(実験例4) DR雰囲気制御(拡散材混合量)

まず、表1の組成を有するR-T-B系合金B6をストリップキャスト法で作製した。得られた合金を水素吸蔵崩壊法によって粒径425μm以下の粉末に粗粉碎した後、ジェットミルを用いて粗粉末を微粉碎し、50%体積中心粒径4.6μmの微粉末を得た。なお、50%体積中心粒径は、レーザー回折式粒度分布測定装置(Sympatec社製、HEROS/RODOS、以下すべて同じ装置で測定)によって測定した。

【0127】

また、表2の組成を有する拡散材D5をメルトスピニング法で作製した。具体的には、オリフィス径0.8mmの石英ノズル中で合金を溶解し、ロール周速度20m/sで回転する銅ロールに噴射し、リボン状の合金を得た。この合金を水素ガス流気中で400℃まで昇温し水素を吸蔵させた後、機械粉碎により粉碎し、目開き53μmのメッシュを用いて分級し、大きさが53μm以下の拡散材粉末を得た。なお、得られた拡散材粉末の粒径は明らかに1μm以上であることを、電子顕微鏡観察によって確認した。得られたR-T-B系合金粉末および拡散材粉末を、メノウ乳鉢を用いて表11に示す混合比で混合し、混合粉末M9~M18を得た。また比較例として拡散材粉末を混合していないR-T-B系合金粉末B6のみの粉末も用意した。

【0128】

10

20

30

40

50

【表 1 1】

混合粉末	R-T-B系合金	拡散材	R-T-B系合金： 拡散材 (重量比)	混合粉組成 (原子%)						
				Nd	Fe	Co	B	Ga	Cu	Al
B6	B6	-	混合なし	13.7	76.9	3.0	6.1	0.2	0.1	-
M9	B6	D5	200 : 1	13.9	76.7	3.0	6.1	0.2	0.1	0.2
M10			100 : 1	14.0	76.4	3.0	6.1	0.2	0.1	0.2
M11			50 : 1	14.4	76.0	3.0	6.0	0.2	0.1	0.4
M12			20 : 1	15.3	74.7	2.9	5.9	0.2	0.1	0.9
M13			15 : 1	15.9	74.0	2.9	5.9	0.2	0.1	1.2
M14			12 : 1	16.4	73.2	2.9	5.8	0.2	0.1	1.4
M15			10 : 1	16.9	73.6	2.8	5.8	0.2	0.1	1.7
M16			7 : 1	18.1	70.8	2.8	5.6	0.2	0.1	2.4
M17			5 : 1	19.7	68.7	2.7	5.5	0.2	0.1	3.2
M18			3 : 1	23.1	64.1	2.5	5.1	0.2	0.1	5.0

10

20

【0129】

次に、この混合粉末をプレス装置の金型に充填し、 1.2 MA/m の磁界中において、磁界と直角方向に 32 MPa の圧力を印加して圧粉体を作製した。圧粉体の密度は、寸法と重量に基づいて計算すると、 $4.2 \sim 4.5 \text{ g/cm}^3$ であった。

【0130】

次に、圧粉体に対して前述のHDDR処理を行った。具体的には、圧粉体を 100 kPa の水素流気中で 600 まで $14 / \text{min}$ の昇温速度で昇温し、その後雰囲気を 100 kPa のアルゴン流気に切り替えた後、 860 まで $14 / \text{min}$ の昇温速度で昇温し、次いで雰囲気を 100 kPa の水素流気に切り替えた後、 860 を 120 分保持してHD処理工程を行った。その後、 860 に保持したままAr流気に切り替えて2分保持して熱処理装置内を置換した。次いでArガスを止めて熱処理装置内を真空ポンプで排気し、表4の条件S1と同様に圧粉体から発生する水素の排気速度を調整して熱処理装置内の水素圧力を 4.0 kPa に調整しながら60分保持し、DR処理工程を行った。次いで 860 のまま 5.3 kPa に減圧したアルゴン流気中で10分保持し、粒界相形成熱処理工程を行った。その後、 100 kPa のアルゴン流気中で室温まで冷却し、サンプルを作製した。

30

【0131】

作製したサンプルの寸法と重量から密度を計算すると、 $5.58 \sim 5.67 \text{ g/cm}^3$ であった。

40

【0132】

作製したサンプルに対して 3.2 MA/m のパルス磁界で着磁した後、磁気特性をBHトレーサー（装置名：MTR-1412（メトロン技研社製））で測定した。結果を表12に示す。表12からわかるようにいずれの混合粉末においても従来よりも高い保磁力を有する多孔質磁石が得られているが、特に重量比で（R-T-B系合金粉末）：（拡散材粉末）= $m : 1$ （ $5 \leq m \leq 100$ ）の場合に良好な角型性と高い保磁力を有する多孔質磁石が得られている。

【0133】

【表 1 2】

混合 粉末	条件 No.	密度 (g/cm^3)	B_r (T)	H_{cJ} (kA/m)	$(BH)_{\text{max}}$ (kJ/m^3)	B_r/J_{max} -	H_k/H_{cJ} -	
B6	S1	5.63	1.00	1050	190	0.98	0.69	比較例 6
M9		5.63	0.98	1084	183	0.98	0.66	実施例 13
M10		5.62	0.97	1124	181	0.98	0.65	実施例 14
M11		5.60	0.96	1173	177	0.98	0.64	実施例 15
M12		5.58	0.91	1303	160	0.98	0.60	実施例 16
M13		5.59	0.89	1393	153	0.98	0.58	実施例 17
M14		5.61	0.87	1443	146	0.97	0.56	実施例 18
M15		5.61	0.85	1478	138	0.97	0.54	実施例 19
M16		5.67	0.80	1572	124	0.97	0.49	実施例 20
M17		5.67	0.73	1617	103	0.97	0.42	実施例 21
M18		5.58	0.59	1548	67	0.96	0.31	実施例 22

10

【 0 1 3 4】

20

(実験例 5) DR 雰囲気制御 (拡散材組成の違い)

まず、表 1 の組成を有する R - T - B 系合金 B 6 をストリップキャスト法で作製した。得られた合金を水素吸蔵崩壊法によって粒径 $425 \mu\text{m}$ 以下の粉末に粗粉碎した後、ジェットミルを用いて粗粉末を微粉碎し、50%体積中心粒径 $4.2 \mu\text{m}$ の微粉末を得た。なお、50%体積中心粒径は、レーザー回折式粒度分布測定装置 (Sympatec 社製、HEROS / RODOS、以下すべて同じ装置で測定) によって測定した。

【 0 1 3 5】

また、表 2 の組成を有する拡散材 D 1 ~ D 4、D 6 ~ D 13 をメルトスピニング法で作製した。具体的には、オリフィス径 0.8mm の石英ノズル中で合金を溶解し、ロール周速度 $20 \text{m}/\text{s}$ で回転する銅ロールに噴射し、リボン状の合金を得た。これらの合金を水素ガス流気中で 400 まで昇温し水素を吸蔵させた後、機械粉碎により粉碎し、目開き $53 \mu\text{m}$ のメッシュを用いて分級し、大きさが $53 \mu\text{m}$ 以下の拡散材粉末を得た。ただし、D 8 は粉碎性が悪かったため $150 \mu\text{m}$ のメッシュを用いて分級し、大きさが $53 \mu\text{m}$ 以下の拡散材粉末を得た。なお、得られた拡散材粉末の粒径は明らかに $1 \mu\text{m}$ 以上であることを、電子顕微鏡観察によって確認した。得られた R - T - B 系合金粉末および拡散材粉末を、メノウ乳鉢を用い表 1 3 に示す混合比で混合し、混合粉末 M 1 9 ~ M 3 0 を得た。

30

【 0 1 3 6】

【表 1 3】

混合粉末	R-T-B系合金	拡散材	R-T-B系合金： 拡散材 (重量比)	混合粉組成 (原子%)							
				Nd	Pr	Fe	Co	B	Ga	Cu	Al
M19	B6	D1	15 : 1	16.2	-	74.7	2.9	5.9	0.2	0.1	-
M20		D2	15 : 1	16.2		74.6	2.9	5.9	0.2	0.1	0.1
M21		D3	15 : 1	16.1	-	74.5	2.9	5.9	0.2	0.1	0.3
M22		D4	15 : 1	16.0	-	74.2	2.9	5.9	0.2	0.1	0.7
M23		D6	15 : 1	15.7	-	73.6	2.9	5.8	0.2	0.1	1.7
M24		D7	15 : 1	14.8	-	71.9	2.8	5.7	0.2	0.1	4.6
M25		D8	15 : 1	14.2	-	70.8	2.8	5.6	0.2	0.1	6.4
M26		D9	15 : 1	13.3	-	69.1	2.7	5.5	0.2	0.1	9.1
M27		D10	15 : 1	16.1	-	74.5	2.9	5.9	0.5	0.1	-
M28		D11	15 : 1	16.1	-	74.8	2.9	5.9	0.2	0.1	-
M29		D12	15 : 1	16.1	-	74.5	3.2	5.9	0.2	0.1	-
M30		D13	15 : 1	13.2	2.7	73.9	2.9	5.9	0.2	0.1	1.2

10

20

【0137】

次に、この混合粉末をプレス装置の金型に充填し、 1.2 MA/m の磁界中において、磁界と直角方向に 32 MPa の圧力を印加して圧粉体を作製した。圧粉体の密度は、寸法と重量に基づいて計算すると、 $4.2 \sim 4.3 \text{ g/cm}^3$ であった。

【0138】

次に、圧粉体に対して前述のHDDR処理を行った。具体的には、圧粉体を 100 kPa の水素流気中で 600 まで $14 / \text{min}$ の昇温速度で昇温し、その後雰囲気を 100 kPa のアルゴン流気に切り替えた後、 860 まで $14 / \text{min}$ の昇温速度で昇温し、次いで雰囲気を 100 kPa の水素流気に切り替えた後、 860 を 120 分保持してHD処理工程を行った。その後、 860 に保持したままAr流気に切り替えて 2 分保持して熱処理装置内を置換した。次いでArガスを止めて熱処理装置内を真空ポンプで排気し、表4の条件S1と同様に圧粉体から発生する水素の排気速度を調整して熱処理装置内の水素圧力を 4.0 kPa に調整しながら 60 分保持し、DR処理工程を行った。次いで 860 のまま 5.3 kPa に減圧したアルゴン流気中で 10 分保持し、粒界相熱処理工程を行った。その後、 100 kPa のアルゴン流気中で室温まで冷却し、サンプルを作製した。作製したサンプルの寸法と重量から密度を計算すると、 $4.58 \sim 5.67 \text{ g/cm}^3$ であった。

30

【0139】

作製したサンプルに対して 3.2 MA/m のパルス磁界で着磁した後、磁気特性をBHトレーサー（装置名：MTR-1412（メトロン技研社製））で測定した。結果を表14に示す。表14からわかるように拡散材における希土類元素R'の組成比率が 20 原子%以上 100 原子%以下の場合に、良好な角型性と高い保磁力を有する多孔質磁石が得られている。さらに 30 原子%以上 98 原子%以下である場合により良好な角型性と高い保磁力を有する多孔質磁石が得られており、 60 原子%以上 90 原子%以下である場合にさらに良好な角型性と高い保磁力を有する多孔質磁石が得られている。また、M元素にGa、Fe、Coを用いた場合やR'元素にPrを用いた場合でも良好な角型性と高い保磁力を有する多孔質磁石が得られている。

40

【0140】

50

【表 1 4】

混合 粉末	条件 No.	密度 (g/cm^3)	B_r (T)	H_{cJ} (kA/m)	$(BH)_{\text{max}}$ (kJ/m^3)	B_r/J_{max} -	H_k/H_{cJ} -	
M19	S1	5.63	0.93	1251	166	0.98	0.49	実施例 23
M20		5.64	0.93	1265	164	0.98	0.48	実施例 24
M21		5.63	0.92	1310	163	0.98	0.48	実施例 25
M22		5.57	0.90	1349	156	0.98	0.47	実施例 26
M23		5.52	0.87	1375	146	0.98	0.46	実施例 27
M24		5.61	0.83	1354	133	0.97	0.48	実施例 28
M25		5.28	0.75	1171	106	0.98	0.41	実施例 29
M26		4.58	0.54	81	11	0.80	0.18	比較例 9
M27		5.66	0.93	1287	166	0.99	0.48	実施例 30
M28		5.58	0.93	1247	166	0.99	0.51	実施例 31
M29		5.67	0.93	1282	167	0.99	0.48	実施例 32
M30		5.50	0.89	1405	152	0.98	0.42	実施例 33

10

20

【0 1 4 1】

(実験例 6) D R 雰囲気制御 (拡散材水素吸蔵なし)

まず、表 1 の組成を有する R - T - B 系合金 B 8 をストリップキャスト法で作製した。得られた合金を水素吸蔵崩壊法によって粒径 $425 \mu\text{m}$ 以下の粉末に粗粉碎した後、ジェットミルを用いて粗粉末を微粉碎し、50%体積中心粒径 $4.2 \mu\text{m}$ の微粉末を得た。なお、50%体積中心粒径は、レーザー回折式粒度分布測定装置 (Sympatec 社製、HEROS / RODOS、以下すべて同じ装置で測定) によって測定した。

【0 1 4 2】

また、表 2 の組成を有する拡散材 D 5 をメルトスピニング法で作製した。具体的には、オリフィス径 0.8mm の石英ノズル中で合金を溶解し、ロール周速度 $20 \text{m}/\text{s}$ で回転する銅ロールに噴射し、リボン状の合金を得た。リボン状の合金を機械粉碎により粉碎し、目開き $150 \mu\text{m}$ のメッシュを用いて分級し、大きさが $150 \mu\text{m}$ 以下の拡散材粉末を得た。なお、得られた拡散材粉末の粒径は明らかに $1 \mu\text{m}$ 以上であることを、電子顕微鏡観察によって確認した。得られた R - T - B 系合金粉末および拡散材粉末を、メノウ乳鉢を用い表 1 5 に示す混合比で混合し、混合粉末 M 3 1 を得た。

30

【0 1 4 3】

【表 1 5】

混合 粉末	R-T-B 系 合金	拡散材	R-T-B 系合 金 : 拡散材 (重量比)	混合粉組成 (原子%)						
				Nd	Fe	Co	B	Ga	Cu	Al
M31	B8	D5(水素吸蔵なし)	15 : 1	14.9	75.0	2.9	5.9	0.2	0.1	1.1

40

【0 1 4 4】

次に、この混合粉末をプレス装置の金型に充填し、 $1.2 \text{MA}/\text{m}$ の磁界中において、磁界と直角方向に 32MPa の圧力を印加して圧粉体を作製した。圧粉体の密度は、寸法と重量に基づいて計算すると、 $4.2 \text{g}/\text{cm}^3$ であった。

50

【 0 1 4 5 】

次に、圧粉体に対して前述のHDDR処理を行った。具体的には、圧粉体を100kPaの水素流気中で600℃まで14℃/minの昇温速度で昇温し、その後雰囲気を100kPaのアルゴン流気に切り替えた後、860℃まで14℃/minの昇温速度で昇温し、次いで雰囲気を100kPaの水素流気に切り替えた後、860℃を120分保持してHD処理工程を行った。その後、860℃に保持したままAr流気に切り替えて2分保持して熱処理装置内を置換した。次いでArガスを止めて熱処理装置内を真空ポンプで排気し、表4の条件S1と同様に圧粉体から発生する水素の排気速度を調整して熱処理装置内の水素圧力を4.0kPaに調整しながら60分保持し、DR処理工程を行った。次いで860℃のまま5.3kPaに減圧したアルゴン流気中で10分保持し、粒界相形成熱処理工程を行った。その後、100kPaのアルゴン流気中で室温まで冷却し、サンプルを作製した。作製したサンプルの寸法と重量から密度を計算すると、5.79g/cm³であった。

10

【 0 1 4 6 】

作製したサンプルに対して3.2MA/mのパルス磁界で着磁した後、磁気特性をBHトレーサー（装置名：MTR-1412（メトロン技研社製））で測定した。結果を表16に示す。表16からわかるように水素吸蔵させていない拡散材を用いた場合でも良好な角型性と高い保磁力を有する多孔質磁石が得られている。

【 0 1 4 7 】

【表16】

20

混合粉末	条件No.	密度(g/cm ³)	B _r (T)	H _{cJ} (kA/m)	(BH) _{max} (kJ/m ³)	B _r /J _{max} -	H _k /H _{cJ} -	
M31	S1	5.79	0.95	1117	171	0.98	0.53	実施例34

【 0 1 4 8 】

（実験例7）Ar中昇温

まず、表1の組成を有するR-T-B系合金B8をストリップキャスト法で作製した。得られた合金を水素吸蔵崩壊法によって粒径425μm以下の粉末に粗粉碎した後、ジェットミルを用いて粗粉末を微粉碎し、50%体積中心粒径4.6μmの微粉末を得た。なお、50%体積中心粒径は、レーザー回折式粒度分布測定装置（Sympatec社製、HEROS/RODOS、以下すべて同じ装置で測定）によって測定した。

30

【 0 1 4 9 】

また、表2の組成を有する拡散材D5をメルトスピニング法で作製した。具体的には、オリフィス径0.8mmの石英ノズル中で合金を溶解し、ロール周速度20m/sで回転する銅ロールに噴射し、リボン状の合金を得た。この合金を水素ガス流気中で400℃まで昇温し水素を吸蔵させた後、機械粉碎により粉碎し、目開き53μmのメッシュを用いて分級し、大きさが53μm以下の拡散材粉末を得た。なお、得られた拡散材粉末の粒径は明らかに1μm以上であることを、電子顕微鏡観察によって確認した。得られたR-T-B系合金粉末および拡散材粉末を、メノウ乳鉢を用い表17に示す混合比で混合し、混合粉末M32を得た。

40

【 0 1 5 0 】

【表 17】

混合粉末	R-T-B系合金	拡散材	R-T-B系合金：拡散材 (重量比)	混合粉組成 (原子%)						
				Nd	Fe	Co	B	Ga	Cu	Al
M32	B8	D5	15 : 1	14.9	75.0	2.9	5.9	0.2	0.1	1.1

【0151】

次に、この混合粉末をプレス装置の金型に充填し、 1.2 MA/m の磁界中において、磁界と直角方向に 32 MPa の圧力を印加して圧粉体を作製した。圧粉体の密度は、寸法と重量に基づいて計算すると、 4.2 g/cm^3 であった。

10

【0152】

次に、圧粉体に対して前述のHDDR処理を行った。具体的には、圧粉体を 100 kPa のアルゴン流気中で 860 まで $14 / \text{min}$ の昇温速度で昇温し、次いで雰囲気を 100 kPa の水素流気に切り替えた後、 860 を 120 分保持してHD処理工程を行った。その後、 860 に保持したままAr流気に切り替えて2分保持して熱処理装置内を置換した。次いでArガスを止めて熱処理装置内を真空ポンプで排気し、表4の条件S1と同様に圧粉体から発生する水素の排気速度を調整して熱処理装置内の水素圧力を 4.0 kPa に調整しながら 60 分保持し、DR処理工程を行った。次いで 860 のまま 5.3 kPa に減圧したアルゴン流気中で 10 分保持し、粒界相形成熱処理工程を行った。その後、 100 kPa のアルゴン流気中で室温まで冷却し、サンプルを作製した。

20

【0153】

作製したサンプルの寸法と重量から密度を計算すると、 5.79 g/cm^3 であった。

【0154】

作製したサンプルに対して 3.2 MA/m のパルス磁界で着磁した後、磁気特性をBHトレーサー（装置名：MTR-1412（メトロン技研社製））で測定した。結果を表18に示す。表18からわかるようにアルゴン雰囲気で昇温した場合でも良好な角型性と高い保磁力を有する多孔質磁石が得られている。

【0155】

30

【表 18】

混合粉末	昇温 雰囲気	密度 (g/cm^3)	B_r (T)	H_{cJ} (kA/m)	$(BH)_{\text{max}}$ (kJ/m^3)	B_r/J_{max} -	H_k/H_{cJ} -	
M32	Ar	5.79	0.92	1283	162	0.98	0.61	実施例 35

【0156】

（実験例8）水素吸蔵なし + Ar中昇温

実験例6で作製した混合粉末M31と同様の混合粉末を作製した。次に、この混合粉末をプレス装置の金型に充填し、 1.2 MA/m の磁界中において、磁界と直角方向に 32 MPa の圧力を印加して圧粉体を作製した。圧粉体の密度は、寸法と重量に基づいて計算すると、 4.2 g/cm^3 であった。

40

【0157】

次に、圧粉体に対して前述のHDDR処理を行った。具体的には、圧粉体を 100 kPa のアルゴン流気中で 860 まで $14 / \text{min}$ の昇温速度で昇温し、次いで雰囲気を 100 kPa の水素流気に切り替えた後、 860 を 120 分保持してHD処理工程を行った。その後、 860 に保持したままAr流気に切り替えて2分保持して熱処理装置内を置換した。次いでArガスを止めて熱処理装置内を真空ポンプで排気し、表4の条件S1と同様に圧粉体から発生する水素の排気速度を調整して熱処理装置内の水素圧力を 4.0 kPa に調整しながら 60 分保持し、DR処理工程を行った。次いで 860 のまま 5

50

．3 k P a に減圧したアルゴン流気中で10分保持し、粒界相形成熟処理工程を行った。その後、100 k P a のアルゴン流気中で室温まで冷却し、サンプルを作製した。

【0158】

作製したサンプルの寸法と重量から密度を計算すると、 6.11 g/cm^3 であった。

【0159】

作製したサンプルに対して3.2 MA/mのパルス磁界で着磁した後、磁気特性をBHトレーサー（装置名：MTR-1412（メトロン技研社製））で測定した。結果を表19に示す。表19からわかるように実験例6のようにHDDR処理の昇温時に600まで水素雰囲気中で昇温した場合や、実験例7のように水素吸蔵させた拡散材を用いた場合に比べて保磁力は低くなるものの、良好な角型性と高い保磁力を有する多孔質磁石が得られている。

10

【0160】

【表19】

混合 粉末	昇温 雰囲気	密度 (g/cm^3)	B_r (T)	H_{cJ} (kA/m)	$(BH)_{max}$ (kJ/m^3)	B_r/J_{max} -	H_k/H_{cJ} -	
M31	Ar	6.11	1.01	997	196	0.99	0.65	実施例 36

【0161】

（実験例9）DR雰囲気制御（制御時間変化）

実験例1で作製した混合粉末M2と同様の混合粉末を作製した。次に、この混合粉末をプレス装置の金型に充填し、1.2 MA/mの磁界中において、磁界と直角方向に32 MPaの圧力を印加して圧粉体を作製した。圧粉体の密度は、寸法と重量に基づいて計算すると、 4.2 g/cm^3 であった。

20

【0162】

次に、圧粉体に対して前述のHDDR処理を行った。具体的には、圧粉体を100 k P aの水素流気中で600まで14/minの昇温速度で昇温し、その後雰囲気を100 k P aのアルゴン流気に切り替えた後、860まで14/minの昇温速度で昇温し、次いで雰囲気を100 k P aの水素流気に切り替えた後、860を120分保持してHD処理工程を行った。その後、860に保持したままAr流気に切り替えて2分保持して熱処理装置内を置換した。次いでArガスを止めて熱処理装置内を真空ポンプで排気し、表20に示すように圧粉体から発生する水素の排気速度を調整して熱処理装置内の水素圧力を4.0 k P aに調整しながら15～180分保持し、DR処理工程を行った。次いで860のまま5.3 k P aに減圧したアルゴン流気中で60分保持し、粒界相形成熟処理工程を行った。その後、100 k P aのアルゴン流気中で室温まで冷却し、サンプルを作製した。

30

【0163】

【表 2 0】

条件 No.	DR 処理工程		粒界相形成熱処理工程	
	水素分圧 (kPa)	処理時間 (min)	Ar 減圧 (kPa)	処理時間 (min)
S12	4.0	15	5.3	60
S13	4.0	45	5.3	60
S7	4.0	60	5.3	60
S14	4.0	120	5.3	60
S15	4.0	180	5.3	60

10

【0164】

作製したサンプルの寸法と重量から密度を計算すると、 $6.03 \sim 6.25 \text{ g/cm}^3$ であった。

【0165】

作製したサンプルに対して 3.2 MA/m のパルス磁界で着磁した後、磁気特性を BH トレーサー（装置名：MTR-1412（メトロン技研社製））で測定した。結果を表 2 1 に示す。表 2 1 からわかるようにいずれのサンプルも良好な磁気特性が得られている

20

【0166】

【表 2 1】

混合粉末	条件 No.	密度 (g/cm^3)	B_r (T)	H_{cJ} (kA/m)	$(BH)_{\max}$ (kJ/m^3)	B_r/J_{\max} -	H_k/H_{cJ} -	
M2	S12	6.25	1.05	1122	209	0.98	0.69	実施例 37
	S13	6.15	1.03	1289	202	0.99	0.59	実施例 38
	S7	6.10	1.00	1311	192	0.98	0.63	実施例 39
	S14	6.03	1.01	1253	195	0.98	0.55	実施例 40
	S15	6.04	1.00	1250	190	0.98	0.55	実施例 41

30

【0167】

（実験例 10）DR 雰囲気制御（真空時間変化）

実験例 1 で作製した混合粉末 M2 と同様の混合粉末を作製した。次に、この混合粉末をプレス装置の金型に充填し、 1.2 MA/m の磁界中において、磁界と直角方向に 3.2 MPa の圧力を印加して圧粉体を作製した。圧粉体の密度は、寸法と重量に基づいて計算すると、 $4.2 \sim 4.3 \text{ g/cm}^3$ であった。

40

【0168】

次に、圧粉体に対して前述の HDDR 処理を行った。具体的には、圧粉体を 100 kPa の水素流気中で 600 まで $14 / \text{min}$ の昇温速度で昇温し、その後雰囲気を 100 kPa のアルゴン流気に切り替えた後、 860 まで $14 / \text{min}$ の昇温速度で昇温し、次いで雰囲気を 100 kPa の水素流気に切り替えた後、 860 を 120 分保持して HD 処理工程を行った。その後、 860 に保持したまま Ar 流気に切り替えて 2 分保持して熱処理装置内を置換した。次いで Ar ガスを止めて熱処理装置内を真空ポンプで排気し、表 2 2 に示すように圧粉体から発生する水素の排気速度を調整して熱処理装置内の水素圧力を 4.0 kPa に調整しながら 60 分保持し、DR 処理工程を行った。次いで 860 のまま 5.3 kPa に減圧したアルゴン流気中で $5 \sim 60$ 分保持し、粒界相形成熱

50

処理工程を行った。その後、100 kPaのアルゴン流気中で室温まで冷却し、サンプルを作製した。

【0169】

【表22】

条件 No.	DR 処理工程		粒界相形成熟処理工程	
	水素分圧 (kPa)	処理時間 (min)	Ar 減圧 (kPa)	処理時間 (min)
S16	4.0	60	5.3	5
S1	4.0	60	5.3	10
S17	4.0	60	5.3	20
S18	4.0	60	5.3	30
S7	4.0	60	5.3	60

10

【0170】

作製したサンプルの寸法と重量から密度を計算すると、5.47 ~ 6.10 g/cm³であった。

20

【0171】

作製したサンプルに対して3.2 MA/mのパルス磁界で着磁した後、磁気特性をBHトレーサー（装置名：MTR-1412（メトロン技研社製））で測定した。結果を表23に示す。表23からわかるようにいずれのサンプルも良好な磁気特性が得られている

【0172】

【表23】

混合粉末	条件 No.	密度 (g/cm ³)	B _r (T)	H _{cJ} (kA/m)	(BH) _{max} (kJ/m ³)	B _r /J _{max} -	H _k /H _{cJ} -	
M2	S16	5.47	0.91	1304	159	0.98	0.59	実施例 42
	S1	5.56	0.92	1334	164	0.98	0.58	実施例 1
	S17	5.80	0.96	1306	178	0.98	0.58	実施例 43
	S18	5.88	0.94	1302	170	0.98	0.58	実施例 44
	S7	6.10	1.00	1311	192	0.98	0.63	実施例 39

30

【0173】

（実験例11）DR雰囲気制御試料のホットプレス

まず、表1の組成を有するR-T-B系合金B4、B9をストリップキャスト法で作製した。得られた合金を水素吸蔵崩壊法によって粒径425 μm以下の粉末に粗粉碎した後、ジェットミルを用いて粗粉末を微粉碎し、50%体積中心粒径4.6 μmの微粉末を得た。なお、50%体積中心粒径は、レーザー回折式粒度分布測定装置（Sympatec社製、HEROS/RODOS、以下すべて同じ装置で測定）によって測定した。

40

【0174】

また、表2の組成を有する拡散材D5をメルトスピニング法で作製した。具体的には、オリフィス径0.8 mmの石英ノズル中で合金を溶解し、ロール周速度20 m/sで回転する銅ロールに噴射し、リボン状の合金を得た。この合金を水素ガス流気中で400まで昇温し水素を吸蔵させた後、機械粉碎により粉碎し、目開き53 μmのメッシュを用いて分級し、大きさが53 μm以下の拡散材粉末を得た。なお、得られた拡散材粉末の粒

50

径は明らかに $1 \mu\text{m}$ 以上であることを、電子顕微鏡観察によって確認した。

【0175】

得られた R - T - B 系合金粉末および拡散材粉末を、メノウ乳鉢を用い表 2 4 に示す混合比で混合し、混合粉末 M 3 3、M 3 4 を得た。

【0176】

【表 2 4】

混合粉末	R-T-B 系合金	拡散材	R-T-B 系合金：拡散材 (重量比)	混合粉組成 (原子%)						
				Nd	Fe	Co	B	Ga	Cu	Al
M33	B4	D5	12 : 1	14.9	74.8	2.9	5.8	0.2	-	1.4
M34	B9	D5	12 : 1	14.9	74.7	2.9	5.8	0.2	0.1	1.4

10

【0177】

次に、この混合粉末をプレス装置の金型に充填し、 1.2 MA/m の磁界中において、磁界と直角方向に 32 MPa の圧力を印加して圧粉体を作製した。圧粉体の密度は、寸法と重量に基づいて計算すると、 $4.2 \sim 4.3 \text{ g/cm}^3$ であった。

【0178】

次に、圧粉体に対して前述の HDDR 処理を行った。具体的には、圧粉体を 100 kPa の水素流気中で 600 まで $14 / \text{min}$ の昇温速度で昇温し、その後雰囲気を 100 kPa のアルゴン流気に切り替えた後、 860 まで $14 / \text{min}$ の昇温速度で昇温し、次いで雰囲気を 100 kPa の水素流気に切り替えた後、 860 を 120 分保持して HD 処理工程を行った。その後、 860 に保持したまま Ar 流気に切り替えて 2 分保持して熱処理装置内を置換した。次いで Ar ガスを止めて熱処理装置内を真空ポンプで排気し、表 4 の条件 S 1 と同様に圧粉体から発生する水素の排気速度を調整して熱処理装置内の水素圧力を 4.0 kPa に調整しながら 60 分保持し、DR 処理工程を行った。次いで 860 のまま 5.3 kPa に減圧したアルゴン流気中で 10 分保持し、粒界相形成熱処理工程を行った。その後、 100 kPa のアルゴン流気中で室温まで冷却し、サンプルを作製した。

20

30

【0179】

作製した M 3 3 と M 3 4 の多孔質磁石の寸法と重量から密度を計算すると、それぞれ 5.55 g/cm^3 、 5.85 g/cm^3 であった。

【0180】

作製した M 3 3 と M 3 4 の多孔質磁石に対して 3.2 MA/m のパルス磁界で着磁した後、磁気特性を BH トレーサー (装置名: MTR - 1412 (メトロン技研社製)) で測定した。結果を表 2 5 に示す。

【0181】

さらに多孔質磁石を超合金製の金型中で 800 に加熱し、 50 MPa の圧力で 20 分間の熱間圧縮処理 (ホットプレス) を行うことにより、密度 7.46 g/cm^3 、 7.47 g/cm^3 の高密度磁石を得た。作製した高密度磁石に対して 3.2 MA/m のパルス磁界で着磁した後、磁気特性を BH トレーサー (装置名: MTR - 1412 (メトロン技研社製)) で測定した。結果を表 2 5 に示す。表 2 5 からわかるようにいずれのサンプルも良好な磁気特性が得られ、特にホットプレスによって HDDR 処理後に比べさらに磁気特性が向上していることが分かる。

40

【0182】

【表 2 5】

混合粉末		密度 (g/cm ³)	B _r (T)	H _{cJ} (kA/m)	(BH) _{max} (kJ/m ³)	B _r /J _{max} -	H _k /H _{cJ} -	
M33	HDDR 処理後	5.55	0.91	1277	149	0.97	0.55	実施例 45
	ホットプレス後	7.46	1.18	1297	260	0.98	0.70	実施例 46
M34	HDDR 処理後	5.85	0.93	1266	166	0.97	0.53	実施例 47
	ホットプレス後	7.47	1.20	1312	273	0.98	0.71	実施例 48

10

【産業上の利用可能性】

【0183】

本発明は、永久磁石を備える各種の機器および装置に適用され得る。また、本発明は、ハイブリッド自動車や電気自動車用の駆動モータなどでの使用にも利用され得る。

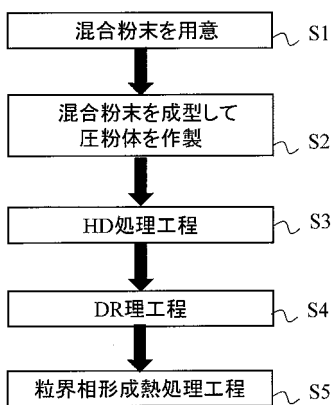
【符号の説明】

【0184】

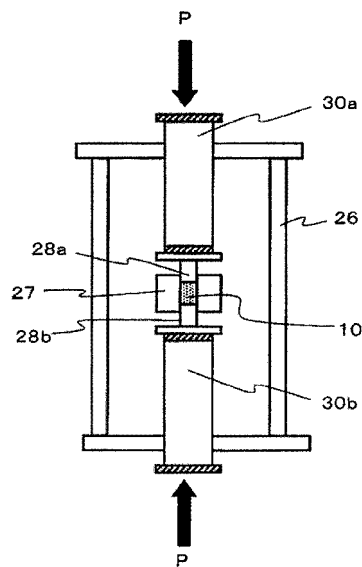
- 10 多孔質磁石
- 27 金型(ダイ)
- 28a 上パンチ
- 28b 下パンチ
- 30a 駆動部
- 30b 駆動部
- 26 チャンバ

20

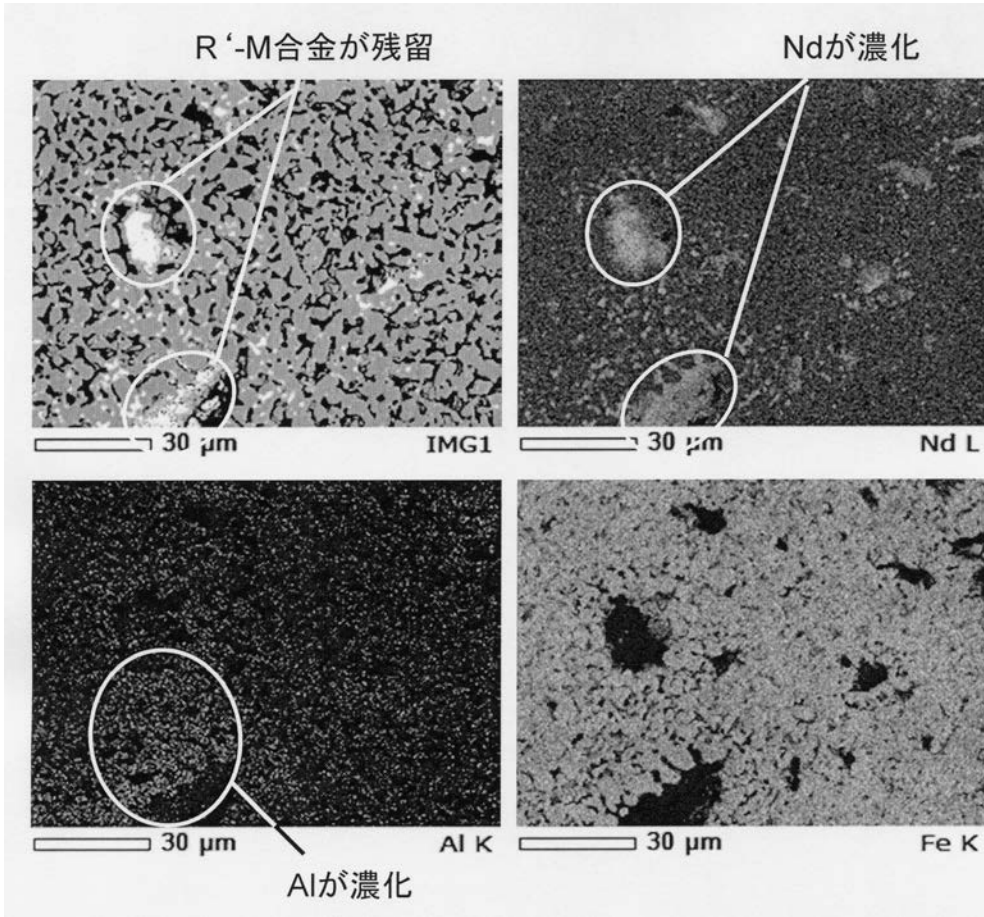
【図 1 A】



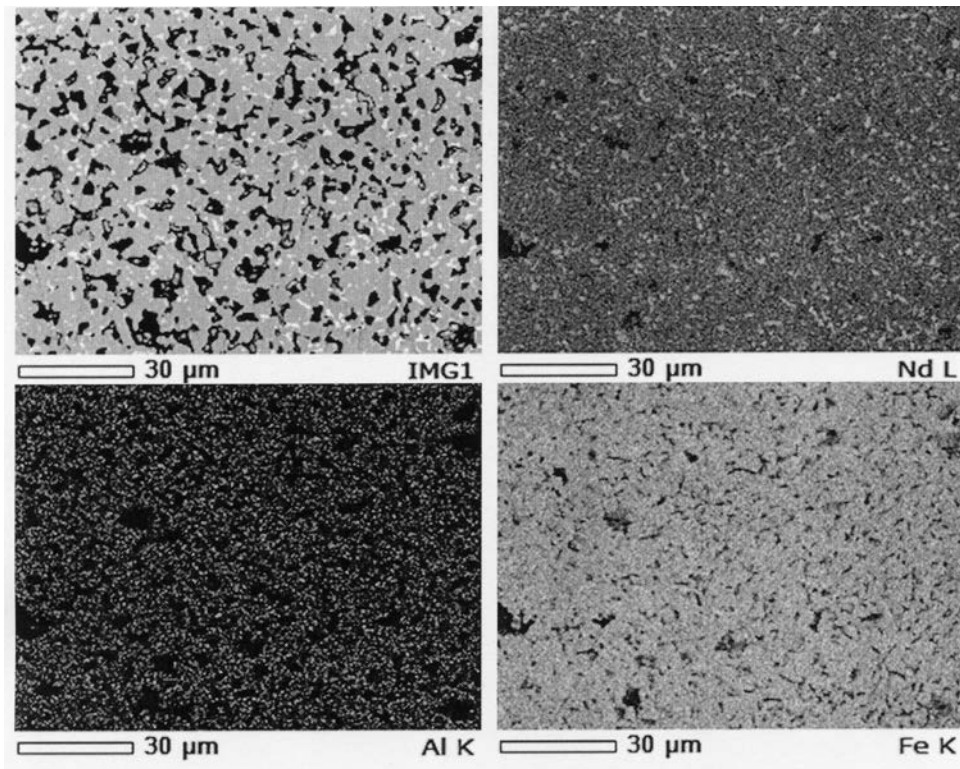
【図 1 B】



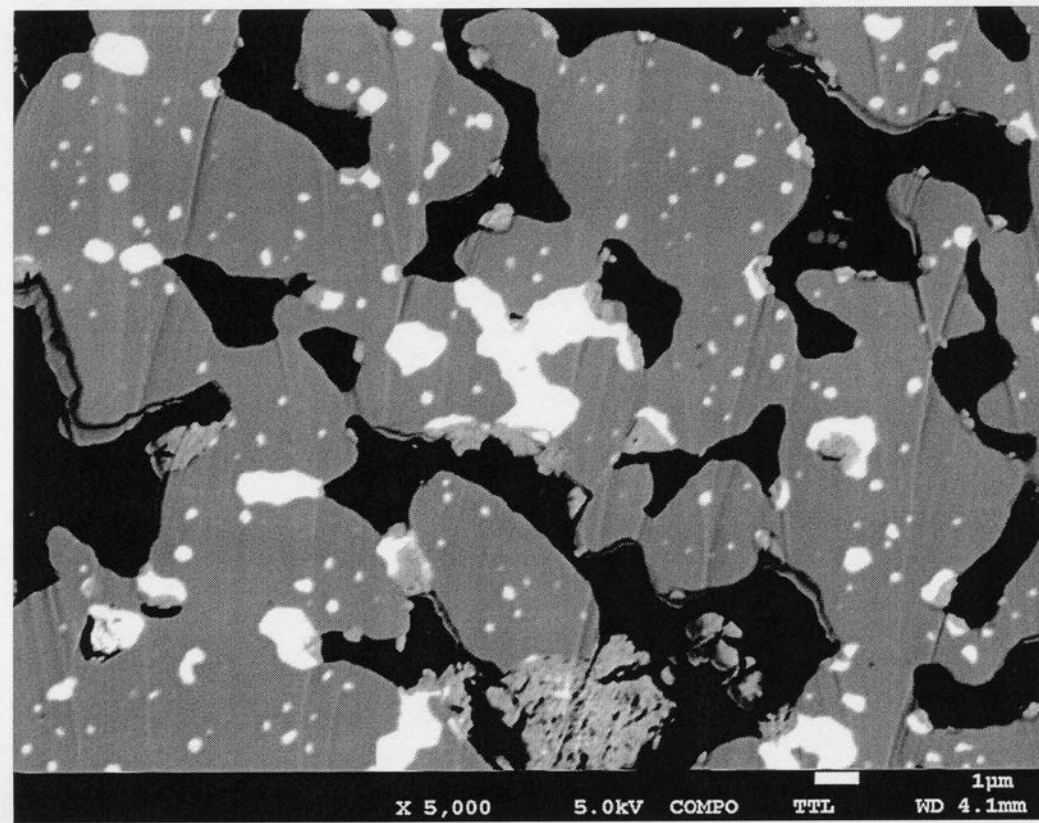
【 図 2 】



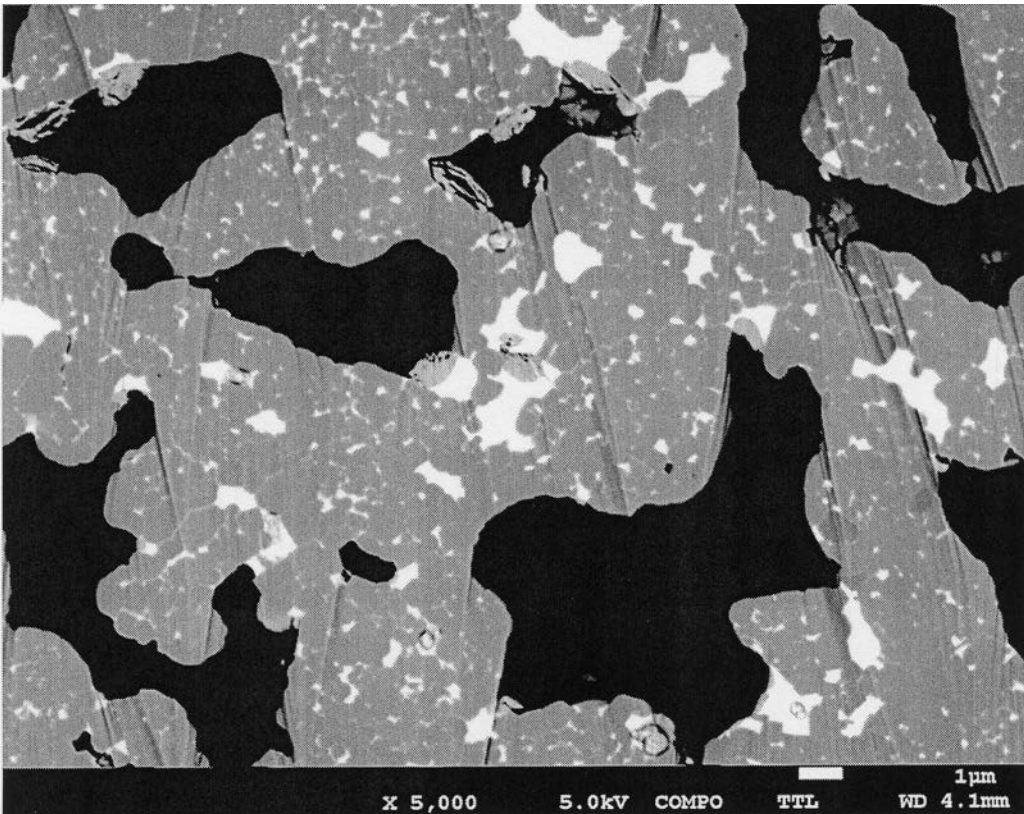
【 図 3 】



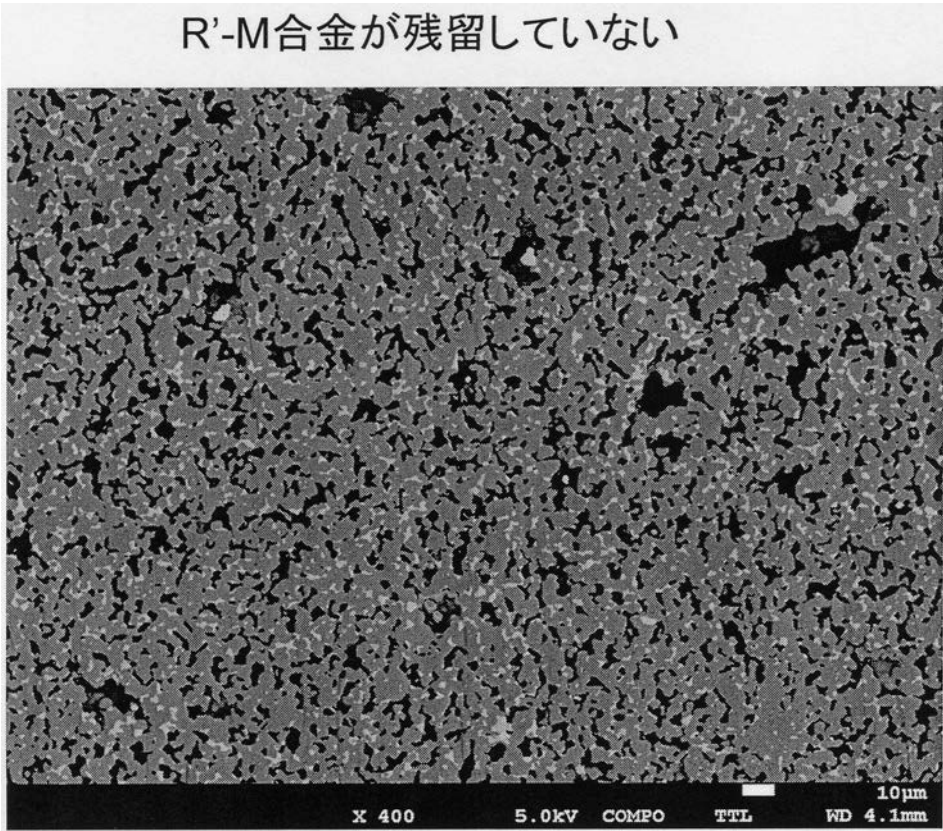
【 図 4 】



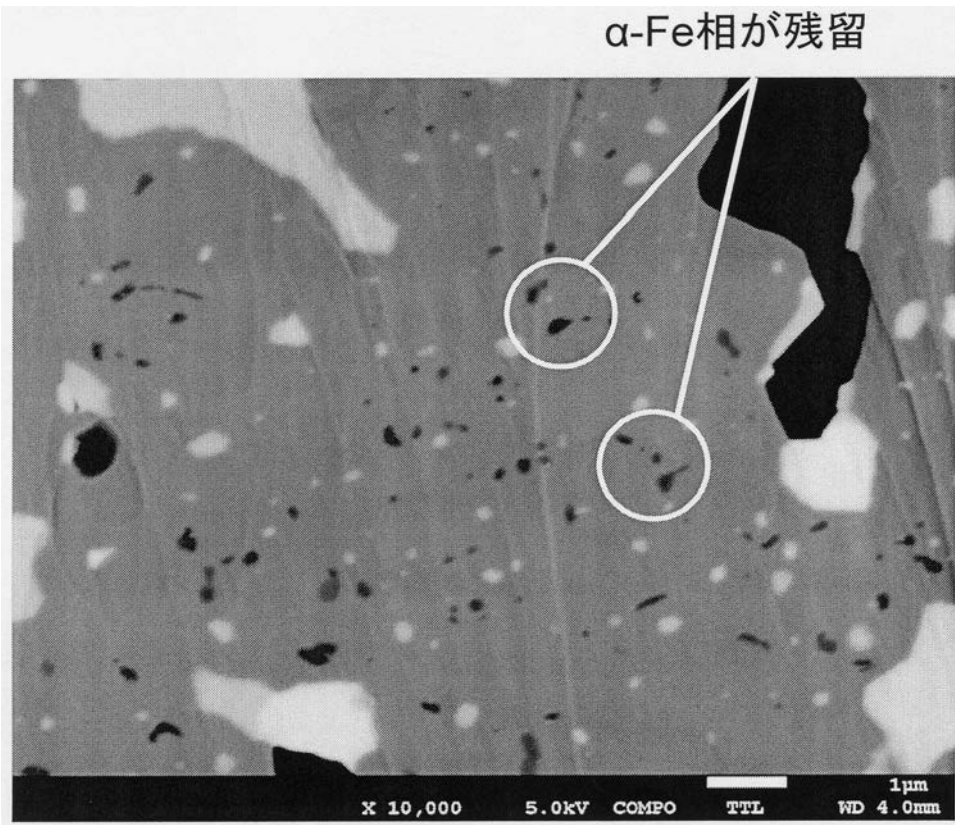
【 図 5 】



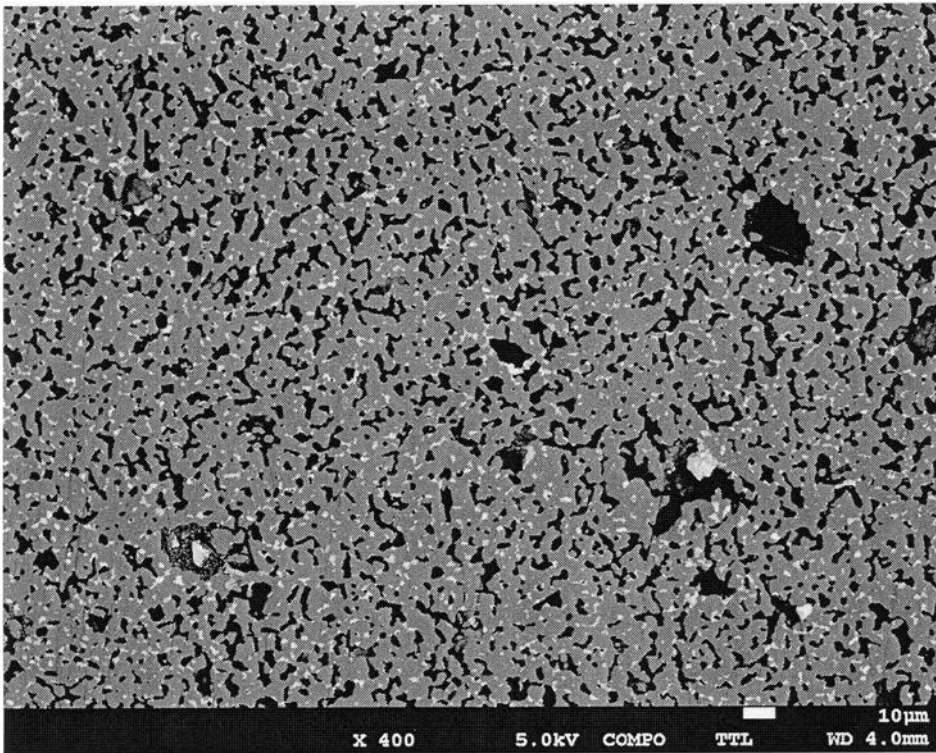
【図6】



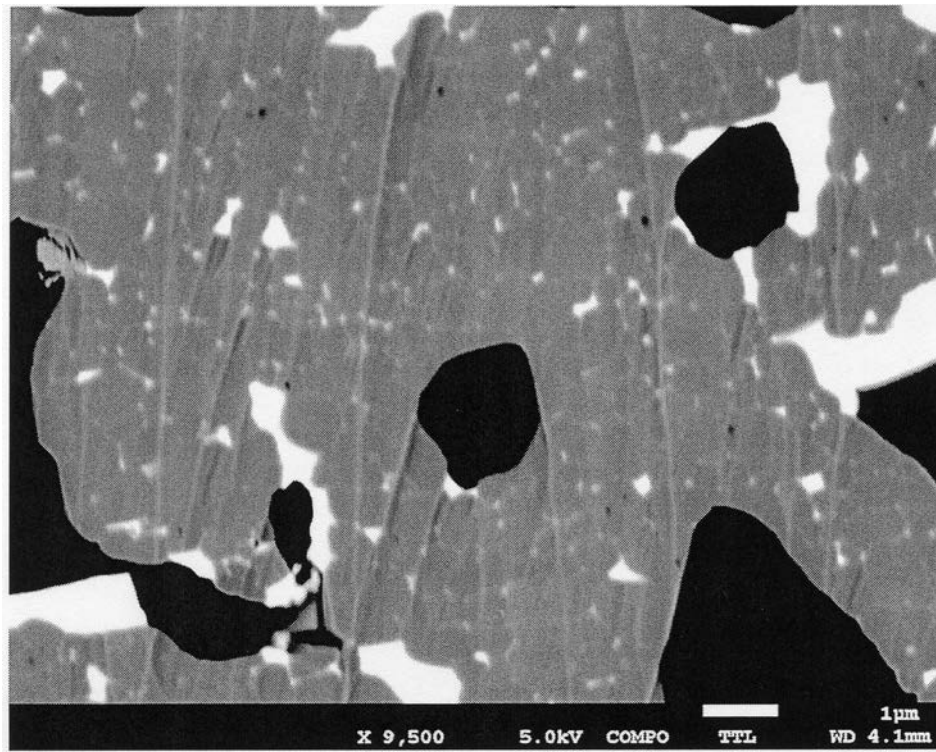
【図7】



【 図 8 】



【 図 9 】



フロントページの続き

(51) Int.Cl.		F I		テーマコード (参考)	
C 2 2 C	28/00	(2006.01)	C 2 2 C	38/00	3 0 3 D
			C 2 2 C	28/00	A