

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2008年9月25日 (25.09.2008)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2008/114571 A1

- (51) 国際特許分類:
C22C 38/00 (2006.01) C22C 33/02 (2006.01)
B22D 11/06 (2006.01) H01F 1/053 (2006.01)
B22F 1/00 (2006.01) H01F 1/08 (2006.01)
B22F 3/00 (2006.01) H01F 41/02 (2006.01)
B22F 9/04 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2008/052950
- (22) 国際出願日: 2008年2月21日 (21.02.2008)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願2007-075050 2007年3月22日 (22.03.2007) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 昭和電工株式会社 (SHOWA DENKO K.K.) [JP/JP]; 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目13番9号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 中島 健一郎

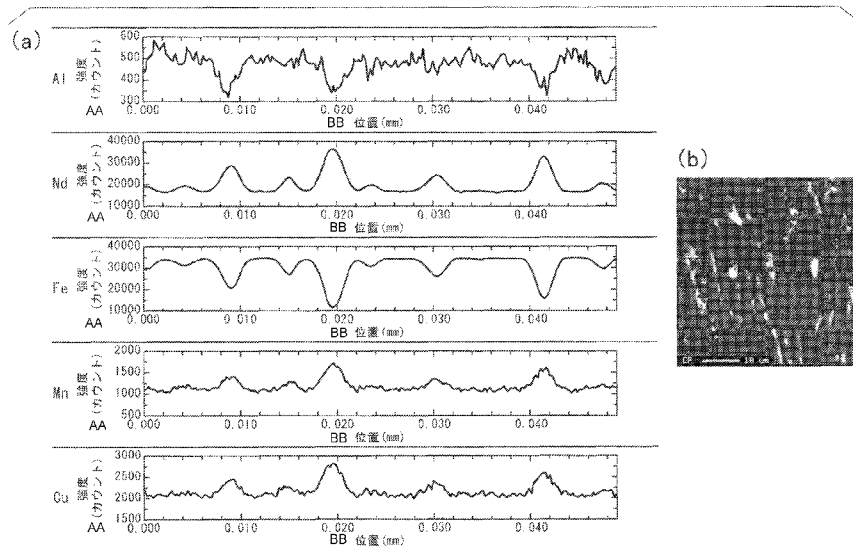
- (NAKAJIMA, Kenichiro) [JP/JP]; 〒3691893 埼玉県秩父市下影森1505番地 昭和電工株式会社内 Saitama (JP). 長谷川 寛 (HASEGAWA, Hiroshi) [JP/JP]; 〒3691893 埼玉県秩父市下影森1505番地 昭和電工株式会社内 Saitama (JP).
- (74) 代理人: 志賀 正武, 外 (SHIGA, Masatake et al.); 〒1006620 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

[続葉有]

(54) Title: R-T-B BASE ALLOY, PROCESS FOR PRODUCTION THEREOF, FINE POWDER FOR R-T-B BASE RARE EARTH PERMANENT MAGNET, AND R-T-B BASE RARE EARTH PERMANENT MAGNET

(54) 発明の名称: R-T-B系合金及びR-T-B系合金の製造方法、R-T-B系希土類永久磁石用微粉、R-T-B系希土類永久磁石

【図2】



AA... INTENSITY (COUNT)
BB... POSITION (mm)

(57) Abstract: An R-T-B base alloy useful as raw material for rare earth permanent magnet (wherein R is at least one member selected from among Sc, Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Tb, Ho, Er, Tm, Yb and Lu; T is a transition metal containing Fe in an amount of 80% by mass or above; and B is a substance which contains B in an amount of 50% by mass or above and at least one member selected from between C and N in an amount of 0% by mass or above and below 50% by mass), which alloy has an Mn concentration of 0.05wt% or below.

[続葉有]

WO 2008/114571 A1



(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE,

SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:
— 国際調査報告書

(57) 要約: 本発明は、希土類系永久磁石に用いられる原料であるR-T-B系(但し、RはSc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Ho、Er、Tm、Yb、Luのうち少なくとも1種であり、TはFeを80質量%以上含む遷移金属であり、BはBを50質量%以上含み、C、Nのうち少なくとも1種を0質量%以上50質量%未満含むものである。)合金であって、前記合金中のMn濃度が0.05wt%以下であるR-T-B系合金を提供する。

明 細 書

R-T-B系合金及びR-T-B系合金の製造方法、R-T-B系希土類永久磁石用微粉、R-T-B系希土類永久磁石

技術分野

[0001] 本発明は、R-T-B系合金及びR-T-B系合金の製造方法、R-T-B系希土類永久磁石用微粉、R-T-B系希土類永久磁石に係り、特に、保磁力に優れたR-T-B系希土類永久磁石の得られるR-T-B系合金およびR-T-B系希土類永久磁石用微粉に関するものである。

本願は、2007年3月22日に、日本に出願された特願2007-075050号に基づき優先権を主張し、その内容をここに援用する。

背景技術

[0002] R-T-B系磁石は、その高特性からHD(ハードディスク)、MRI(磁気共鳴映像法)、各種モーター等に使用されている。近年、R-T-B系磁石の耐熱性向上に加え、省エネルギーへの要望の高まりから、自動車を含めたモーター用途の比率が上昇している。R-T-B系磁石は、主成分がNd、Fe、BであることからNd-Fe-B系、あるいはR-T-B系磁石と総称されている。R-T-B系磁石のRは、Ndの一部をPr、Dy、Tb等の他の希土類元素で置換したものなどである。Tは、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、硼素であり、一部をCまたはNで置換できる。

[0003] R-T-B系磁石となるR-T-B系合金は、磁化作用に寄与する磁性相である $R_2T_{14}B$ 相からなる主相と、非磁性で希土類元素の濃縮した低融点のRリッチ相とが共存している合金である。R-T-B系合金は活性な金属であることから、一般に真空又は不活性ガス中で溶解や casting が行われる。また、 casting されたR-T-B系合金塊から粉末冶金法によって焼結磁石を作製するには、合金塊を平均粒径 $5\mu m$ (d_{50} : レーザー回折式粒度分布計による測定)程度に粉碎して合金粉末にした後、磁場中でプレス成形し、焼結炉で約 $1000\sim 1100^\circ C$ の高温にて焼結し、その後必要に応じて熱処理、機械加工し、さらに耐食性を向上するためにメッキを施して焼結磁石とす

るのが普通である。

[0004] R-T-B系焼結磁石において、Rリッチ相は、以下のような重要な役割を担っている。

1) 融点が低く、焼結時に液相となり、磁石の高密度化、従って磁化の向上に寄与する。

2) 粒界の凹凸を無くし、逆磁区のニュークリエーションサイトを減少させ、保磁力を高める。

3) 主相を磁氣的に絶縁し保磁力を増加する。

従って、成形した磁石中のRリッチ相の分散状態が悪いと局所的な焼結不良、磁性の低下をまねく。このため、Rリッチ相は、成形した磁石中に均一に分散していることが重要である。R-T-B系焼結磁石のRリッチ相の分布は、原料であるR-T-B系合金の組織に大きく影響される。

[0005] また、R-T-B系合金の鑄造で生じる問題として、鑄造された合金中に α -Feが生成することが挙げられる。 α -Feは、変形能を有し、粉砕されずに粉砕機中に残存する。このため、 α -Feは、合金を粉砕する際の粉砕効率を低下させるだけでなく、粉砕前後での組成変動、粒度分布にも影響を及ぼす。さらに、 α -Feが、焼結後も磁石中に残存すると、磁石の磁気特性の低下をもたらす。このため、従来から、必要に応じて高温で長時間にわたる均質化処理を行って、 α -Feの消去を行っている。しかし、 α -Feは包晶核として存在するため、その消去には長時間の固相拡散が必要であり、厚さ数cmのインゴットで希土類量が33%以下であると、事実上 α -Feの消去は不可能であった。

[0006] このようなR-T-B系合金中に α -Feが生成する問題を解決するため、より速い冷却速度で合金塊を鑄造するストリップキャスト法(以下、「SC法」と略す。)が開発され、実用されている。SC法は、内部が水冷された銅ロール上に溶湯を流して0.1~1mm程度の薄片を鑄造することにより、合金を急冷凝固させる方法である。SC法では、溶湯を主相 $R_2T_{14}B$ 相の生成温度以下まで過冷却するため、合金溶湯から直接 $R_2T_{14}B$ 相を生成することが可能であり、 α -Feの析出を抑制することができる。また、SC法を行なうことにより合金の結晶組織が微細化するため、Rリッチ相が微細に分散

した組織を有する合金を生成することが可能となる。

[0007] Rリッチ相は、水素雰囲気中で水素と反応させると、膨張して脆い水素化物となる。このRリッチ相の性質により、合金に水素化工程を行なうと、Rリッチ相の分散程度に見合った微細なクラックが合金に導入される。そして水素化工程を経てから得られた合金を微粉砕すると、水素化工程において生成した多量の微細クラックをきっかけに合金が壊れるため、粉砕性が極めて良好となる。このように、SC法で鑄造された合金は、内部のRリッチ相が微細に分散しているため、粉砕、焼結後の磁石中のRリッチ相の分散性が良好となり、磁気特性に優れた磁石となることが知られている(例えば、特許文献1参照)。

[0008] また、SC法により鑄造された合金薄片は、組織の均質性も優れている。組織の均質性は、結晶粒径やRリッチ相の分散状態で比較することが出来る。SC法で作製した合金薄片では、合金薄片の鑄造用ロール側(以降、鑄型面側とする)にチル晶が発生することもあるが、全体として急冷凝固でもたらされる適度に微細で均質な組織を得ることが出来る。

以上のように、SC法で鑄造したR-T-B系合金は、Rリッチ相が微細に分散し、 α -Feの生成も抑制されているため、焼結磁石を作製するための優れた組織を有している。

[0009] また、磁石特性には、組織の均一性に加えて、微量元素の含有量が影響することが知られている。例えばP、S、Oなどといった軽量元素については、以前から磁気特性、とくに保磁力に影響を与えることが報告されている(例えば、特許文献1、特許文献2参照)。また、Niについてもある一定の条件で添加をすると保磁力が向上することが報告されている(例えば、特許文献3参照)。また、Mnと磁石との関係については、基礎的な研究例としてボンド磁石用合金向けの超急冷鑄造の報告例がある(例えば、非特許文献1参照)。Mnは、保磁力を向上する目的で0.05at%を超える濃度で意識的に合金に添加されている(特許文献4)。

同様にSiについても一定の濃度を超えると融点に変化して特性に悪影響を及ぼす可能性がある。

[0010] また、磁石特性と合金の製造方法との間には、一定の関連性があるため、磁石の

特性向上に伴って合金の製造方法も進歩してきている。例えば、微細構造を制御する方法(例えば、特許文献5参照)や、鑄造ロールの表面状態を所定の粗さに加工して微細構造を制御する方法(例えば、特許文献6、特許文献7参照)が知られている。

特許文献1:特開2006-210377号公報

特許文献2:特開平7-183149号公報

特許文献3:特開2007-049010号公報

特許文献4:特開平1-220803号公報

特許文献5:W02005/031023号

特許文献6:特開2003-188006号公報

特許文献7:特開2004-43291号公報

非特許文献1:G. Xie et. al, Mater. Res. Bul.、42(2007)131-136

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0011] しかしながら、近年、より一層高性能なR-T-B系希土類永久磁石が求められ、R-T-B系希土類永久磁石の保磁力などの磁気特性を更に向上させることが要求されている。

本発明は、上記事情に鑑みてなされたものであり、優れた角形性および保磁力を有するR-T-B系希土類永久磁石の原料となるR-T-B系合金およびR-T-B系合金の製造方法を提供することを目的とする。

また、上記R-T-B系合金から作製されたR-T-B系希土類永久磁石用微粉およびR-T-B系希土類永久磁石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

[0012] 本発明者らは、R-T-B系希土類永久磁石となるR-T-B系合金とこれから作製される希土類永久磁石の磁気特性との関係を調べた。その結果、本発明者らは、R-T-B系合金および希土類永久磁石中に過剰にMnを添加することにより、かえって特性悪化を引き起こすことを見出した。そして、本発明者らは、さらに、鋭意研究を重ね、R-T-B系合金中のMn濃度を0.05wt%以下とすることで、このR-T-B

系合金から作製された微粉を成形・焼結して得られたR-T-B系希土類永久磁石の角形性および保磁力が優れたものとなることを確認し、本発明に至った。

[0013] 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) 希土類系永久磁石に用いられる原料であるR-T-B系(但し、RはSc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Ho、Er、Tm、Yb、Luのうち少なくとも1種であり、TはFeを80質量%以上含む遷移金属であり、BはBを50質量%以上含み、C、Nのうち少なくとも1種を0質量%以上50質量%未満含むものである。)合金であつて、前記合金中のMn濃度が0.05wt%以下であることを特徴とするR-T-B系合金。

(2) ストリップキャスト法で製造された平均厚さ0.1~1mmの薄片であることを特徴とする(1)に記載のR-T-B系合金。

[0014] (3) (1)または(2)に記載のR-T-B系合金の製造方法であつて、ストリップキャスト法により、平均厚さ0.1~1mmの薄片とするとともに、冷却ロールへの平均溶湯供給速度を幅1cmあたり毎秒10g以上とすることを特徴とするR-T-B系合金の製造方法。

(4) (1)または(2)に記載のR-T-B系合金または(3)に記載のR-T-B系合金の製造方法により作製されたR-T-B系合金から作製したR-T-B系希土類永久磁石用微粉。

(5) (4)に記載のR-T-B系希土類永久磁石用微粉から作製されたR-T-B系希土類永久磁石。

発明の効果

[0015] 本発明のR-T-B系合金は、磁石特性に悪影響を及ぼす元素であるMn濃度が0.05wt%以下であるので、角形性および保磁力が高く、磁気特性に優れたR-T-B系希土類永久磁石を実現できるものとなる。

また、本発明のR-T-B系希土類永久磁石用微粉およびR-T-B系希土類永久磁石は、本発明のR-T-B系合金または本発明のR-T-B系合金の製造方法により作製されたR-T-B系合金から作製したものであるため、角形性および保磁力が高く、磁気特性に優れたものとなる。

図面の簡単な説明

- [0016] [図1]図1は、本発明のR-T-B系合金の一例を示した写真であり、R-T-B系合金の薄片の断面を走査型電子顕微鏡(SEM)により観察した反射電子像である。
- [図2]図2(a)は、図3に示すR-T-B系合金のEPMAの波長分散型のX線分光器による元素分布分析の結果を示したグラフであり、図2(b)は、図2(a)の元素分布分析を行なった領域のR-T-B系合金の反射電子像である。
- [図3]ストリップキャスト法の casting 装置の模式図である。
- [図4]図4は、R-T-B系合金中に含まれるMn濃度と、そのR-T-B系合金から作製されたR-T-B系希土類永久磁石の角形性との関係を示したグラフである。
- [図5]図5は、R-T-B系合金中に含まれるMn濃度と、そのR-T-B系合金から作製されたR-T-B系希土類永久磁石の保磁力との関係を示したグラフである。

符号の説明

- [0017] 1…耐火物ルツボ、2…タンディッシュ、3… casting ロール、4…捕集コンテナ、5…R-T-B系合金。

発明を実施するための最良の形態

- [0018] 図1は、本発明のR-T-B系合金の一例を示した写真であり、R-T-B系合金の薄片の断面を走査型電子顕微鏡(SEM)により観察した反射電子像である。なお、図1においては左側が casting 面側となっている。

図1に示すR-T-B系合金は、SC法で製造されたものである。このR-T-B系合金の組成は、質量比でNd25%、Pr6%、B1.0%、Co0.3%、Al0.2%、Si0.05%、Mn0.03%、残部Feである。

- [0019] なお、本発明のR-T-B系合金の組成は、上述した範囲に限定されるものではなく、R-T-B系(但し、RはSc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Ho、Er、Tm、Yb、Luのうち少なくとも1種であり、TはFeを80質量%以上含む遷移金属であり、BはBを50質量%以上含み、C、Nのうち少なくとも1種を0質量%以上50質量%未満含むものである。)合金であって、前記合金中のMn濃度が0.05wt%以下である合金であればどのような組成であっても良く、磁石特性に悪影響を及ぼす元素であるSi濃度が0.07wt%以下であることが好ましい。

[0020] また、図1に示すR-T-B系合金は、 $R_2T_{14}B$ 相(主相)とRリッチ相とから構成されている。図1において、Rリッチ相は白色で示され、 $R_2T_{14}B$ 相(主相)はRリッチ相よりも暗い灰色で示されている。 $R_2T_{14}B$ 相は、主に柱状晶、一部等軸晶からなる。 $R_2T_{14}B$ 相の短軸方向の平均結晶粒径は10~50 μm である。 $R_2T_{14}B$ 相の粒界と粒内には、 $R_2T_{14}B$ 相の柱状晶の長軸方向に沿って伸張した線状のRリッチ相、あるいは一部が途切れるか粒状となったRリッチ相が存在している。Rリッチ相は、組成比と比較してRの濃縮された非磁性で低融点の相である。Rリッチ相の平均間隔は3~10 μm である。

[0021] 図2(a)は、図1に示すR-T-B系合金のEPMA(Electron Probe Micro-Analysis:電子プローブマイクロアナライザ)の波長分散型のX線分光器(WDS;Wavelength Dispersive X-ray Spectrometer)によるAl、Nd、Fe、Mn、Cuの元素分布分析(デジタルマッピング)の結果を示したグラフであり、図2(b)は、図2(a)の元素分布分析を行った領域のR-T-B系合金の反射電子像である。

図2(a)に示す元素分布分析の結果より、FeおよびAlは $R_2T_{14}B$ 相に多いことが分かる。また、図2(a)より、所定位置である0から0.01mmの手前の位置、0.02mm付近の位置、0.04mm付近の位置を比較すると、Nd、Mn、Cuは、Fe、Alの少ない領域であるRリッチ相に多いことが分かる。

[0022] (R-T-B系希土類永久磁石の作製)

本発明のR-T-B系希土類永久磁石を作製するには、まず、図1に示す本発明のR-T-B系合金からR-T-B系希土類永久磁石用微粉を作製する。本発明のR-T-B系合金は、例えば、図3に示す鑄造装置を用いてSC法で製造される。

まず、図3に示す耐火物ルツボ1に本発明のR-T-B系合金となる原料を入れ、真空または不活性ガス雰囲気中で溶解して溶湯とする。次いで、合金の溶湯を、必要に応じて整流機構やスラグ除去機構の設けられたタンディッシュ2を介して、内部を水冷された鑄造ロール3(冷却ロール)に、幅1cmあたり毎秒10g以上の平均溶湯供給速度で供給し、鑄造ロール3上で凝固させて平均厚さ0.1~1mmの薄片とする。凝固されたR-T-B系合金5の薄片は、タンディッシュ2の反対側で鑄造ロール3から離脱して、捕集コンテナ4に捕集されて回収される。このようにして得られたR-T

—B系合金5のRリッチ相の組織状態は、捕集コンテナ4に捕集されたR—T—B系合金5の薄片の温度を適切に調整することにより制御できる。

[0023] このようにして製造されたR—T—B系合金5の薄片の平均厚さが0.1mm未満であると、凝固速度が過度に増加し、Rリッチ相の分散が細かくなりすぎる。また、R—T—B系合金5の薄片の平均厚さが1mmを超えると、凝固速度低下によるRリッチ相の分散性の低下、 α -Feの析出、 R_2T_{17} 相の粗大化などを招く。

[0024] また、上記の製造方法において、鑄造ロール3への平均溶湯供給速度は、幅1cmあたり毎秒10g以上とすることができ、幅1cmあたり毎秒20g以上とすることが好ましく、幅1cmあたり毎秒25g以上とすることがさらに好ましく、さらに好ましくは幅1cmあたり毎秒100g以下である。溶湯の鑄造ロール3への平均供給速度が毎秒10gよりも低下すると、溶湯自身の粘性や鑄造ロール3の表面との濡れ性により、溶湯が鑄造ロール3上に薄く濡れ広がらずに収縮して合金の品質の変動をもたらす。また、鑄造ロール3への平均溶湯供給速度が幅1cmあたり毎秒100gを越えると、鑄造ロール3上での冷却が不十分となり、組織の粗大化をまねき α -Feの析出などが発生する場合がある。

[0025] 次に、このようにして得られた本発明のR—T—B系合金からなる薄片を用いて、本発明のR—T—B系希土類永久磁石用微粉を製造する。まず、本発明のR—T—B系合金からなる薄片に室温で水素を吸蔵させ、500°Cで減圧して水素を除去する。その後、R—T—B系合金の薄片をジェットミルなどの粉碎機を用いて平均粒度 $d_{50} = 4 \sim 5 \mu m$ に微粉碎し、R—T—B系希土類永久磁石用微粉とする。次に、得られたR—T—B系希土類永久磁石用微粉を、例えば、横磁場中成型機などを用いてプレス成型して、真空中で1030～1100°Cで焼結させることによりR—T—B系希土類永久磁石が得られる。

[0026] このようにして得られたR—T—B系希土類永久磁石は、磁石特性に悪影響を及ぼす元素であるMn濃度が0.05wt%以下であるR—T—B系合金から作製したものであるので、角形性および保磁力が高く、磁気特性に優れたものとなる。

実施例

[0027] 「Mn濃度0.02wt%」

質量比で、Nd25%、Pr6%、B1.0%、Co0.2%、Al0.2%、Si0.05%、Mn0.02%、残部Feになるように配合した原料を秤量して、図3に示す製造装置のアルミナからなる耐火物ルツボ1に入れ、アルゴンガス1気圧の雰囲気中で高周波溶解炉を用いて溶解し、合金溶湯とした。次いで、この合金溶湯を、タンディッシュ2を介して castingロール3(冷却ロール)に供給して、SC法にて castingし、R-T-B系合金の薄片を得た。

なお、 casting時の castingロール3への平均溶湯供給速度は、幅1cmあたり毎秒25gであり、得られたR-T-B系合金の薄片の平均厚さは0.3mmであった。また、 casting用回転ロール3の周速度は1.0m/sであった。

[0028] 次に、得られたR-T-B系合金の薄片を用いて、以下に示すように、磁石を作製した。まず、実施例のR-T-B系合金の薄片を水素解砕した。水素解砕は、R-T-B系合金の薄片に室温で2気圧の水素中で水素を吸蔵させた後、真空中で500℃まで加熱して残存する水素を抜き取り、その後、ステアリン酸亜鉛を0.07質量%添加し、窒素気流のジェットミルを用いて微粉碎する方法にて行った。微粉碎して得られた粉末のレーザー回折式測定による平均粒度は5.0μmであった。

[0029] 次に、得られたR-T-B系希土類永久磁石用微粉を、100%窒素雰囲気中で横磁場中成型機などを用いて成形圧力0.8t/cm²でプレス成型して成形体を得た。そして、得られた成形体を1.33×10⁻⁵hPaの真空中で室温から昇温し、500℃、800℃で一時間ずつ保持してステアリン酸亜鉛および残留水素を除去した。その後、成形体を焼結温度である1030℃まで昇温し、3時間保持して焼結体とした。その後、得られた焼結体をアルゴン雰囲気中で800℃、530℃でそれぞれ一時間ずつ熱処理することにより、Mn濃度0.02wt%のR-T-B系希土類永久磁石を得た。

[0030] 「Mn濃度0.03~0.14wt%」

次に、Mn濃度0.03~0.14wt%にしたこと以外は、Mn濃度0.02wt%のR-T-B系希土類永久磁石と同様にして、Mn濃度0.03~0.14wt%のR-T-B系希土類永久磁石を得た。

[0031] このようにして得られたMn濃度の異なるR-T-B系希土類永久磁石のH_k/H_{cj}(角型性)およびH_{cj}(保磁力)をBHカーブトレーサーで測定した。その結果を図4お

よび図5に示す。

[0032] 図4は、R-T-B系合金中に含まれるMn濃度(wt%)と、そのR-T-B系合金から作製されたR-T-B系希土類永久磁石の角形性(Hk/Hcj)との関係を示したグラフである。

図4より、R-T-B系合金中に含まれるMn濃度が0.02~0.05wt%の範囲では、Mn濃度が上昇するにつれて、R-T-B系希土類永久磁石の角形性が低くなっており、角形性が悪化していることがわかる。また、図1より、R-T-B系合金中に含まれるMn濃度が0.05wt%を超えるとR-T-B系希土類永久磁石の角形性が低いレベルで安定することがわかる。

[0033] また、図5は、R-T-B系合金中に含まれるMn濃度と、そのR-T-B系合金から作製されたR-T-B系希土類永久磁石の保磁力(Hcj)との関係を示したものである。図5より、R-T-B系合金中に含まれるMn濃度が高くなるにつれて、R-T-B系希土類永久磁石の保磁力が低下していることが分かる。また、R-T-B系合金中に含まれるMn濃度が0.05wt%未満であると、14.3以上の高い保磁力が得られることが分かる。

この原因としてMn濃度が上昇するにつれて最適焼結温度がわずかに上昇し、焼結が十分に進行していないことが考えられる。一般的に焼結温度を上昇させるとHcjの低下が起こることを考慮しても、R-T-B系希土類永久磁石の保磁力は、R-T-B系合金中に含まれるMn濃度が低いほど好ましいと結論できる。

[0034] 図4および図5より、R-T-B系合金中のMn濃度を0.05wt%以下とすることで、このR-T-B系合金から作製された微粉を成形・焼結して得られたR-T-B系希土類永久磁石の角形性および保磁力が優れたものとなることが確認できた。

産業上の利用可能性

[0035] 本発明のR-T-B系合金は、磁石特性に悪影響を及ぼす元素であるMn濃度が0.05wt%以下であるので、角形性および保磁力が高く、磁気特性に優れたR-T-B系希土類永久磁石を実現できるものとなる。

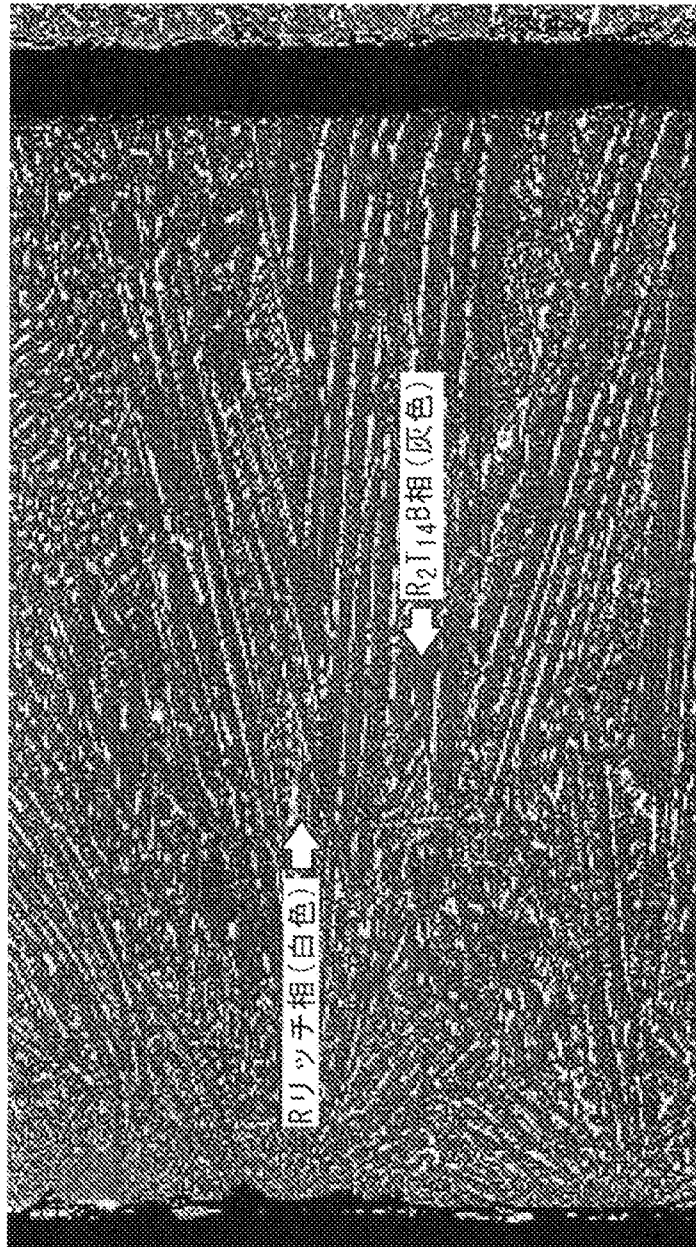
また、本発明のR-T-B系希土類永久磁石用微粉およびR-T-B系希土類永久磁石は、本発明のR-T-B系合金または本発明のR-T-B系合金の製造方法

により作製されたR-T-B系合金から作製したものであるので、角形性および保磁力が高く、磁気特性に優れたものとなる。

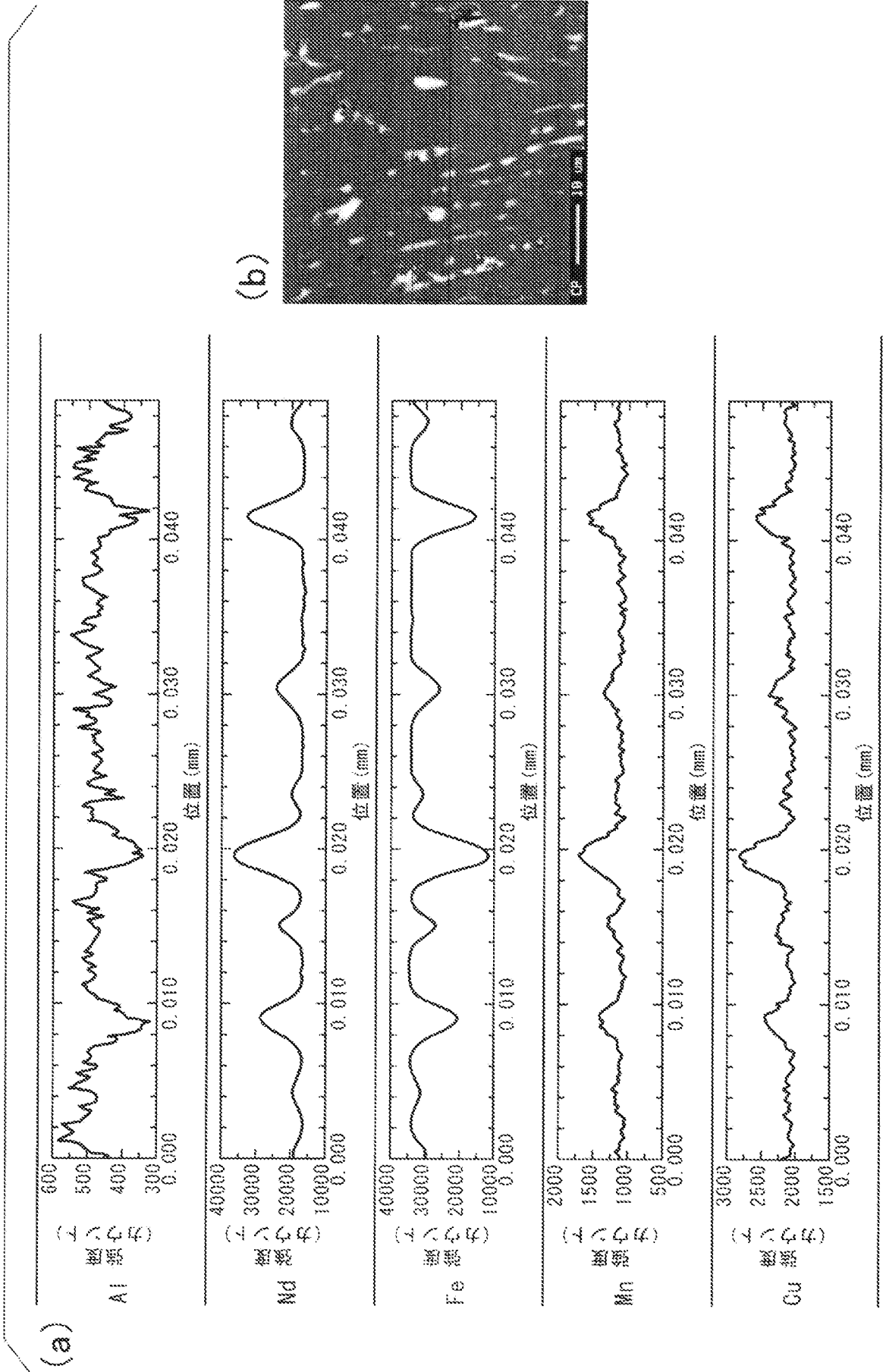
請求の範囲

- [1] 希土類系永久磁石に用いられる原料であるR-T-B系(但し、RはSc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Ho、Er、Tm、Yb、Luのうち少なくとも1種であり、TはFeを80質量%以上含む遷移金属であり、BはBを50質量%以上含み、C、Nのうち少なくとも1種を0質量%以上50質量%未満含むものである。)合金であつて、前記合金中のMn濃度が0.05wt%以下であることを特徴とするR-T-B系合金。
- [2] ストリップキャスト法で製造された平均厚さ0.1~1mmの薄片であることを特徴とする請求項1に記載のR-T-B系合金。
- [3] 請求項1または請求項2に記載のR-T-B系合金の製造方法であつて、ストリップキャスト法により、平均厚さ0.1~1mmの薄片とするとともに、冷却ロールへの平均溶湯供給速度を幅1cmあたり毎秒10g以上とすることを特徴とするR-T-B系合金の製造方法。
- [4] 請求項1または請求項2に記載のR-T-B系合金から作製したR-T-B系希土類永久磁石用微粉。
- [5] 請求項3に記載のR-T-B系合金の製造方法により作製されたR-T-B系合金から作製したR-T-B系希土類永久磁石用微粉。
- [6] 請求項4に記載のR-T-B系希土類永久磁石用微粉から作製されたR-T-B系希土類永久磁石。
- [7] 請求項5に記載のR-T-B系希土類永久磁石用微粉から作製されたR-T-B系希土類永久磁石。

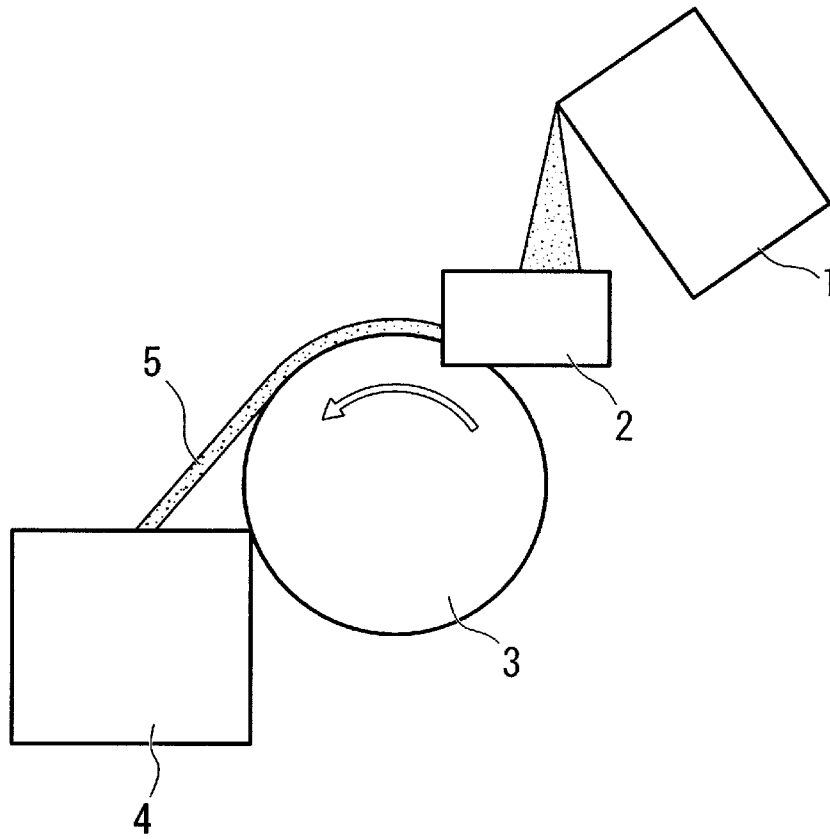
[図1]



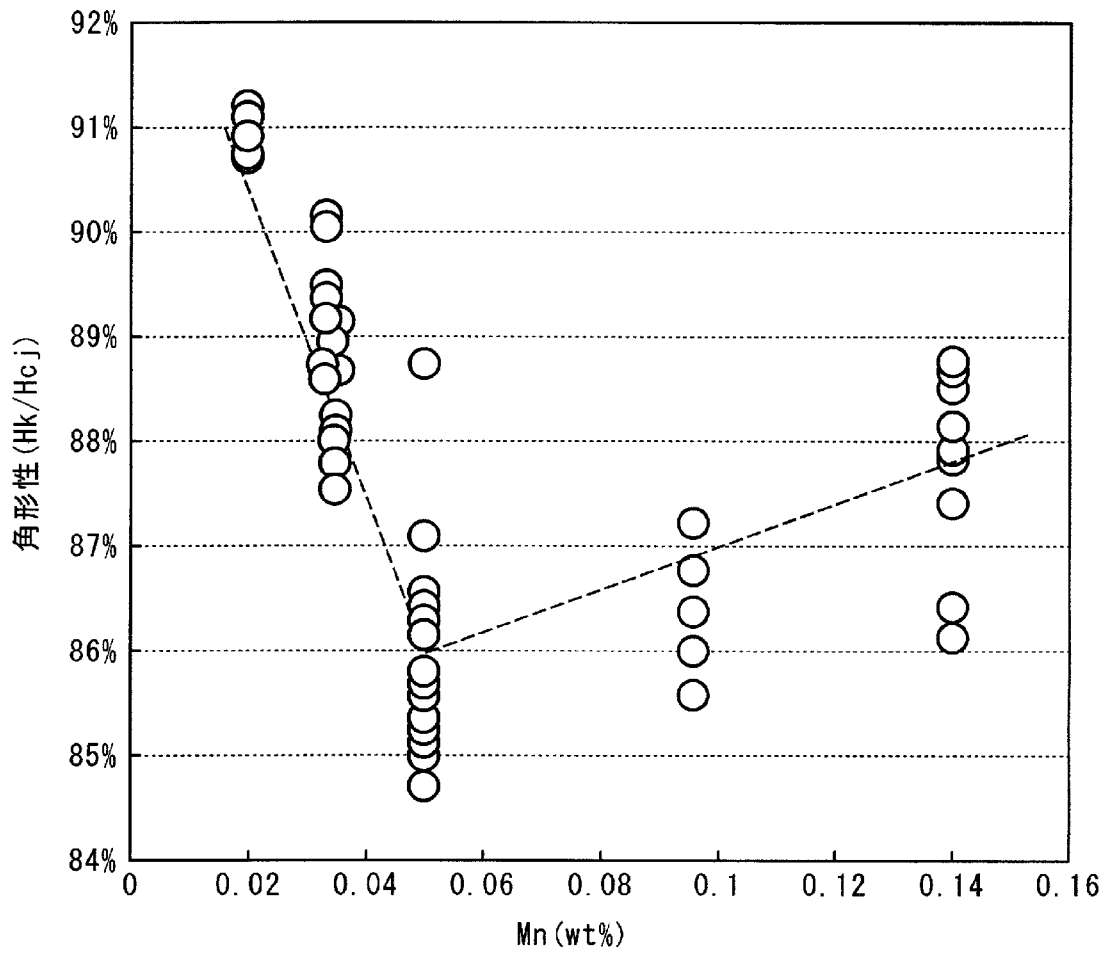
[図2]



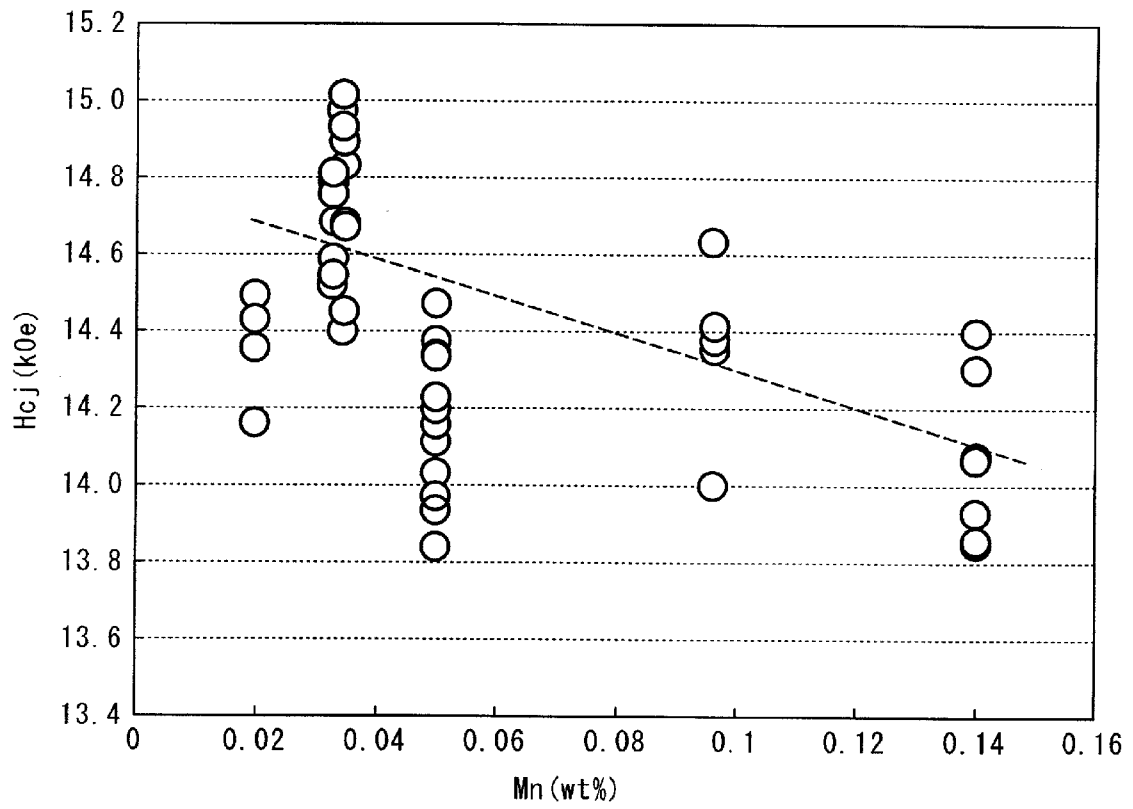
[図3]



[図4]



[図5]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/052950

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER C22C38/00(2006.01)i, B22D11/06(2006.01)i, B22F1/00(2006.01)i, B22F3/00(2006.01)i, B22F9/04(2006.01)i, C22C33/02(2006.01)i, H01F1/053(2006.01)i, H01F1/08(2006.01)i, H01F41/02(2006.01)i According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C22C38/00, H01F1/053		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2008 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2008 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2008		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 3-278405 A (Sumitomo Special Metals Co., Ltd.), 10 December, 1991 (10.12.91), Example 1 & EP 430278 A1 & US 5200001 A	1, 4, 6 2, 3, 5, 7
Y	JP 2006-93501 A (Neomax Co., Ltd.), 06 April, 2006 (06.04.06), Examples; Par. No. [0035] & US 2007/240790 A1	2, 3, 5, 7
Y	JP 2003-183787 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 03 July, 2003 (03.07.03), Par. Nos. [0042], [0056] & US 2005/28892 A1 & WO 03/52778 A1	2, 3, 5, 7
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 26 March, 2008 (26.03.08)		Date of mailing of the international search report 08 April, 2008 (08.04.08)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. C22C38/00(2006.01)i, B22D11/06(2006.01)i, B22F1/00(2006.01)i, B22F3/00(2006.01)i, B22F9/04(2006.01)i, C22C33/02(2006.01)i, H01F1/053(2006.01)i, H01F1/08(2006.01)i, H01F41/02(2006.01)i		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. C22C38/00, H01F1/053		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2008年 日本国実用新案登録公報 1996-2008年 日本国登録実用新案公報 1994-2008年		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	JP 3-278405 A (住友特殊金属株式会社) 1991. 12. 10, 実施例 1 & EP 430278 A1 & US 5200001 A	1, 4, 6 2, 3, 5, 7
Y	JP 2006-93501 A (株式会社NEOMAX) 2006. 04. 06, 【実施例】、【0035】 & US 2007/240790 A1	2, 3, 5, 7
Y	JP 2003-183787 A (昭和電工株式会社) 2003. 07. 03, 【0042】、【0056】 & US 2005/28892 A1 & WO 03/52778 A1	2, 3, 5, 7
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 26. 03. 2008	国際調査報告の発送日 08. 04. 2008	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号 100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 蛭田 敦 電話番号 03-3581-1101 内線 3435	4K 3237