



(12) 发明专利申请

(10) 申请公布号 CN 104051103 A

(43) 申请公布日 2014. 09. 17

(21) 申请号 201410086934. 1

(22) 申请日 2014. 03. 11

(30) 优先权数据

2013-050830 2013. 03. 13 JP

(71) 申请人 户田工业株式会社

地址 日本广岛县

(72) 发明人 片山信宏 川崎浩史 森本耕一郎

(74) 专利代理机构 北京尚诚知识产权代理有限公司 11322

代理人 龙淳

(51) Int. Cl.

H01F 1/057(2006. 01)

H01F 1/06(2006. 01)

B22F 9/22(2006. 01)

权利要求书1页 说明书10页

(54) 发明名称

R-T-B 类稀土磁体粉末、R-T-B 类稀土磁体粉末的制造方法和粘结磁体

(57) 摘要

本发明的目的在于,通过促进在磁性相晶界形成连续的富 R 晶界相,获得磁粉的矫顽力增大、并且也兼备高的剩余磁通密度的 R-T-B 类稀土磁体粉末。本发明中,通过对 HDDR 处理所得到的、含 A1 的 R-T-B 类稀土磁体粉末在真空或 Ar 氛围中以 670°C 以上 820°C 以下的温度进行 30 分钟以上 300 分钟以下的热处理,能够促进富 R 晶界相的形成,得到即使降低 A1 量也能够具备高矫顽力、且具有高剩余磁通密度的 R-T-B 类稀土磁体粉末。

1. 一种 R-T-B 类稀土磁体粉末,其特征在于:

含有 R、T、B 和 Al,其中,R 为包括 Y 的一种以上的稀土元素,T 为 Fe、或 Fe 和 Co,B 为硼,Al 为铝,

该粉末的平均组成中,R 量为 12.5at.% 以上 14.3at.% 以下,B 量为 4.5at.% 以上 7.5at.% 以下,Al 量小于 1.0at.%,

该粉末包括含有  $R_2T_{14}B$  磁性相的晶粒和晶界相,

晶界相含有 R、T、B 和 Al,其中,R 为包括 Y 的一种以上的稀土元素,T 为 Fe、或 Fe 和 Co,B 为硼,Al 为铝,

晶界相的组成中,R 量为 13.5at.% 以上 30at.% 以下、Al 量为 1.5at.% 以下。

2. 如权利要求 1 所述的 R-T-B 类稀土磁体粉末,其特征在于:

R-T-B 类稀土磁体粉末还含有 Ga 和 Zr,

该粉末的平均组成中,Co 量为 10.0at.% 以下,Ga 量为 0.1at.% 以上 1.0at.% 以下,Zr 量为 0.05at.% 以上 0.15at.% 以下。

3. 一种 R-T-B 类稀土磁体粉末的制造方法,其特征在于:

将含有 Al、且 Al 含量小于 1.5at.% 的 R-T-B 类稀土磁体粉末在真空或 Ar 氛围中以 670℃ 以上 820℃ 以下的温度进行 30 分钟以上 300 分钟以下的热处理,

所述 R-T-B 类稀土磁体粉末通过对原料合金进行 HDDR 处理而获得,所述原料合金含有 R、T、B 和 Al,其中,R 为包括 Y 的一种以上的稀土元素,T 为 Fe、或 Fe 和 Co,B 为硼,Al 为铝。

4. 如权利要求 3 所述的 R-T-B 类稀土磁体粉末的制造方法,其特征在于:

原料合金的组成中,R 量为 12.5at.% 以上 14.3at.% 以下,B 量为 4.5at.% 以上 7.5at.% 以下,Al 量小于 1.5at.%。

5. 如权利要求 3 所述的 R-T-B 类稀土磁体粉末的制造方法,其特征在于:

原料合金含有 Ga 和 Zr,

该原料合金的组成中,Co 量为 10.0at.% 以下,Ga 量为 0.1at.% 以上 1.0at.% 以下,Zr 量为 0.05at.% 以上 0.15at.% 以下。

6. 一种通过权利要求 3~5 中任一项所述的 R-T-B 类稀土磁体粉末的制造方法制得的 R-T-B 类稀土磁体粉末。

7. 一种使用权利要求 1 或 2 所述的 R-T-B 类稀土磁体粉末的粘结磁体。

8. 一种使用权利要求 6 所述的 R-T-B 类稀土磁体粉末的粘结磁体。

## R-T-B 类稀土磁体粉末、R-T-B 类稀土磁体粉末的制造方法和粘结磁体

### 技术领域

[0001] 本发明涉及 R-T-B 类稀土磁体粉末及其制造方法。

### 背景技术

[0002] R-T-B 类稀土磁体粉末(R 表示稀土元素, T 表示以 Fe 为必须成分的过渡金属, B 表示硼)具有优异的磁特性,作为汽车等的各种电动机用磁体在工业上被广泛应用。但是, R-T-B 类稀土磁体粉末的磁特性依存于温度的变化大,一旦达到高温,矫顽力就会迅速降低。

[0003] 已知 R-T-B 类稀土磁体粉末可以通过对原料合金进行 HDDR 处理(Hydrogenation-Decomposition-Desorption-Recombination: 氢化-相分解-脱氢-再结合)而制造。

[0004] 在通过 HDDR 处理制造 R-T-B 类稀土磁体粉末时,迄今为止,通过使磁体粉末中含有各种元素,促进在磁性相晶体晶界形成连续的富 R 晶界相,使得磁体粉末的矫顽力增大。但是,一旦不构成磁性相的元素的添加量增加,晶界相的磁化就会降低,因而导致磁体粉末的剩余磁通密度降低。

[0005] 日本特开平 9-165601 号记载了通过对在 R-T-B 类合金中添加有微量 Dy 的原料进行 HDDR 处理,得到矫顽力优异的磁体粉末。

[0006] 日本特开 2002-09610 号记载了通过在  $RFeBH_x$  粉末中混合由 Dy 氢化物等构成的扩散粉末,进行扩散热处理工序、脱氢工序,得到 Dy 等在表面和内部扩散、矫顽力优异的磁体粉末。

[0007] 日本特开 2011-49441 号中记载了在通过 HDDR 处理制得的 R-Fe-B 系磁体粉末中混合含 Zn 粉末,并进行混合粉碎、扩散热处理、时效热处理,得到 Zn 在晶界扩散的、矫顽力优异的磁体粉末。

[0008] 另外,在国际公开第 2011/145674 号中记载了在通过 HDDR 处理制得的 R-Fe-B 系磁体粉末中混合 Nd-Cu 粉末,并进行热处理扩散,得到 Nd-Cu 在主相的晶界扩散的、矫顽力优异的磁体粉末。

[0009] 一直以来对于通过在原料合金中添加 Dy 的方法、或者在 HDDR 工序的中途或 HDDR 工序后使添加元素扩散,以提高磁体粉末的矫顽力进行着研究。然而,一旦不构成磁性相的元素的添加量增加,晶界相的磁化就会降低,因而存在磁体粉末的剩余磁通密度降低的问题。

### 发明内容

[0010] 在本发明中,通过抑制不构成磁性相的元素的添加量,得到具有高剩余磁通密度的 R-T-B 类稀土磁体粉末。另外,本发明的目的在于,通过 HDDR 处理后的热处理补偿由于抑制为了促进富 R 相的形成添加的元素的添加量所造成的富 R 晶界相的形成能力降低,由此制造具有优异的矫顽力和剩余磁通密度的 R-T-B 类稀土磁体粉末。

[0011] 即,本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的特征在于,该粉末含有 R (R:包括 Y 的一种以上的稀土元素)、T (T:Fe、或 Fe 和 Co)、B (B:硼)和 Al (Al:铝),该粉末的平均组成中,R 量为 12.5at.% 以上 14.3at.% 以下,B 量为 4.5at.% 以上 7.5at.% 以下,Al 量小于 1.0at.%,该粉末包括含有  $R_2T_{14}B$  磁性相的晶粒和晶界相,晶界相含有 R (R:包括 Y 的一种以上的稀土元素)、T (T:Fe、或 Fe 和 Co)、B (B:硼)和 Al (Al:铝),晶界相的组成中,R 量为 13.5at.% 以上 30at.% 以下,Al 量为 1.5at.% 以下(本发明 1)。

[0012] 另外,如上述本发明 1 所述的 R-T-B 类稀土磁体粉末,R-T-B 类稀土磁体粉末含有 Ga 和 Zr,该粉末的平均组成中,Co 量为 10.0at.% 以下,Ga 量为 0.1at.% 以上 1.0at.% 以下,Zr 量为 0.05at.% 以上 0.15at.% 以下(本发明 2)。

[0013] 另外,本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的制造方法,将含有小于 1.5at.% 的 Al 的 R-T-B 类稀土磁体粉末在真空或 Ar 氛围中以 670°C 以上 820°C 以下的温度进行 30 分钟以上 300 分钟以下的热处理,上述 R-T-B 类稀土磁体粉末通过对原料合金进行 HDDR 处理获得,所述原料合金含有 R (R:包括 Y 的一种以上的稀土元素)、T (T:Fe、或 Fe 和 Co)、B (B:硼)和 Al (Al:铝) (本发明 3)。

[0014] 另外,如上述本发明 3 所述 R-T-B 类稀土磁体粉末的制造方法,原料合金的组成中,R 量为 12.5at.% 以上 14.3at.% 以下,B 量为 4.5at.% 以上 7.5at.% 以下,Al 量小于 1.5at.% (本发明 4)。

[0015] 另外,如上述本发明 3 或 4 所述的 R-T-B 类稀土磁体粉末的制造方法,原料合金含有 Ga 和 Zr,该原料合金的组成中,Co 量为 10.0at.% 以下,Ga 量为 0.1at.% 以上 1.0at.% 以下,Zr 量为 0.05at.% 以上 0.15at.% 以下(本发明 5)。

[0016] 另外,本发明为通过上述本发明 3 ~ 5 中任一项所述的 R-T-B 类稀土磁体粉末的制造方法制得的 R-T-B 类稀土磁体粉末(本发明 6)。

[0017] 另外,本发明为使用上述本发明 1、2 或 6 所述的 R-T-B 类稀土磁体粉末的粘结磁体(本发明 7)。

[0018] 本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末具有优异的矫顽力和剩余磁通密度,所以适合作为粘结磁体用磁性粉末。

[0019] 在本发明中,由于原料合金中含有 Al 作为用于促进富 R 晶界相的添加元素,即使没有用于使 R 在晶界相扩散的复杂的工序,也能够制造具有优异的矫顽力的 R-T-B 类稀土磁体粉末。

[0020] 另外,根据本发明,由于能够抑制不构成磁性相的元素的添加量,能够获得具有高剩余磁通密度的 R-T-B 类稀土磁体粉末。另外,通过 HDDR 处理后的热处理补偿由于抑制为了促进富 R 晶界相的形成添加的元素的添加量所造成的富 R 晶界相的形成能力降低,由此能够制造具有优异的矫顽力和剩余磁通密度的 R-T-B 类稀土磁体粉末。

## 具体实施方式

[0021] 首先,对本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末进行说明。

[0022] 本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末含有 R (R:包括 Y 的一种以上的稀土元素)、T (T:Fe、或 Fe 和 Co)、B (B:硼)和 Al (Al:铝)。

[0023] 作为构成本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的稀土元素 R,可以使用选自 Y、La、Ce、

Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu 中的一种或二种以上,从成本、磁特性的理由出发,优选使用 Nd。该粉末的平均组成中,R 量为 12.5at.% 以上 14.3at.% 以下。在平均组成的 R 量少于 12.5at.% 时,存在于晶界相的 R 量就会在 13.5at.% 以下,不能充分地得到矫顽力提高的效果。在平均组成的 R 量超过 14.3at.% 时,晶界相的非磁性相量增多,因此,磁体粉末的剩余磁通密度降低。平均组成的 R 量优选为 12.8at.% 以上 14.0at.% 以下。

[0024] 构成本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的元素 T 为 Fe、或 Fe 和 Co。该粉末的平均组成的 T 量是除去构成该粉末的其它元素以外的余量。另外,通过添加 Co 作为置换 Fe 的元素,能够提高居里温度,但由于导致磁体粉末的剩余磁通密度降低,所以该粉末中的平均组成的 Co 量优选为 10.0at.% 以下,更优选为 2.0at.% 以上 8.0at.% 以下。

[0025] 本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的平均组成的 B 量为 4.5at.% 以上 7.5at.% 以下。在平均组成的 B 量少于 4.5at.% 时, $R_2Fe_{17}$  相等析出,因此磁特性降低。另外,在 B 量多于 7.5at.% 时,剩余磁通密度降低。平均组成的 B 量优选为 5.0at.% 以上 7.0at.% 以下。

[0026] 本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的平均组成的 Al 量小于 1.0at.%。在本发明中,考虑到 Al 具有使剩余的 R 在 R-T-B 类稀土磁体粉末的晶界均匀扩散的效果,所以需要含有超过 0at.%。为了使 R 迅速在晶界扩散,优选平均组成的 Al 量为 0.05at.% 以上。另一方面,在 Al 量多时,非磁性相量增大,因此,磁体粉末的剩余磁通密度降低,所以优选 Al 量少。只要平均组成的 Al 量小于 1.0at.%,就能够获得高剩余磁通密度,所以优选。平均组成的 Al 量更优选为 0.07at.% 以上 0.8at.% 以下。

[0027] 另外,本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末优选含有 Ga 和 Zr。该粉末的平均组成优选 Ga 量为 0.1at.% 以上 1.0at.% 以下。在平均组成的 Ga 量小于 0.1at.% 时,矫顽力提高的效果低;在超过 1.0at.% 时,剩余磁通密度降低。另外,该粉末的平均组成优选 Zr 量为 0.05at.% 以上 0.15at.% 以下。在平均组成的 Zr 量小于 0.05at.% 时,矫顽力提高的效果低;在超过 0.15at.% 时,剩余磁通密度降低。

[0028] 另外,本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末,除了含有上述元素之外,还可以含有 Ti、V、Nb、Si、Cr、Mn、Zn、Mo、Hf、W、Ta、Sn 中的一种或二种以上的元素。通过添加这些元素,能够提高 R-T-B 类稀土磁体粉末的磁特性。优选这些元素的含量合计在 2.0at.% 以下,更优选在 1.0at.% 以下。在这些元素的含量超过 2.0at.% 时,可能会导致剩余磁通密度降低。

[0029] 本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末包括含有  $R_2T_{14}B$  磁性相的晶粒和晶界相。本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末,晶界相在晶粒的界面连续地存在,所以,能够削弱晶粒之间的磁耦合,显示出高矫顽力。

[0030] 本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的晶界相含有 R (R:包括 Y 的一种以上的稀土元素)、T (T:Fe、或 Fe 和 Co)、B (B:硼)和 Al (Al:铝)。

[0031] 本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的晶界相的组成中,R 量为 13.5at.% 以上 30.0at.% 以下。在晶界相的组成的 R 量少于 13.5at.% 时,不能充分得到矫顽力提高的效果。在晶界相的组成的 R 量超过 30.0at.% 时,晶界的磁化下降,所以粉末的剩余磁通密度降低。晶界相的组成的 R 量优选为 20.0at.% 以上 30.0at.% 以下。

[0032] 本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的晶界相的组成中,Al 量为 1.5at.% 以下。在本发明中,考虑到 Al 具有使剩余的 R 在 R-T-B 类稀土磁体粉末的晶界均匀扩散的效果,因此,需要晶界相内含有超过 0at.%。为了使 R 更均匀地在晶界相扩散,优选晶界相的组成的 Al

量为 0.05at.% 以上。另一方面,在晶界相的组成的 Al 量超过 1.5at.% 时,非磁性相量增多,因此,磁体粉末的剩余磁通密度降低。晶界相的组成的 Al 量优选为 0.06at.% 以上 1.2at.% 以下,更优选为 0.07at.% 以上小于 1.0at.%。

[0033] 构成本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的晶界相的元素 T 为 Fe、或 Fe 和 Co。该粉末的晶界相的组成的 T 量是除去构成晶界相的其他元素以外的余量。

[0034] 另外,在本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的晶界相中,除了含有上述元素以外,还可以含有 Ga、Zr、Ti、V、Nb、Si、Cr、Mn、Zn、Mo、Hf、W、Ta、Sn 中的一种或二种以上的元素。

[0035] 下面,对本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的制造方法进行详细说明。本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的制造方法中,对原料合金粉末进行 HDDR 处理,对所得到的粉末进行热处理,得到 R-T-B 类稀土磁体粉末。

[0036] 首先,对本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的原料合金进行说明。

[0037] 本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的原料合金含有 R (R:包括 Y 的一种以上的稀土元素)、T (T:Fe、或 Fe 和 Co)、B (B:硼) 和 Al (Al:铝)。

[0038] 作为构成本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的原料合金的稀土元素 R,可以使用选自 Y、La、Ce、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu 中的一种或二种以上,但从成本、磁特性的理由出发,优选使用 Nd。原料合金中的 R 量为 12.5at.% 以上 14.3at.% 以下。在原料合金中的 R 量少于 12.5at.% 时,晶界中扩散的剩余的 Nd 减少,不能充分地得到矫顽力提高的效果。在原料合金中的 R 量超过 14.3at.% 时,晶界相的非磁性相量增多,因此,磁体粉末的剩余磁通密度降低。原料合金中的 R 量优选为 12.8at.% 以上 14.0at.% 以下。

[0039] 构成本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的原料合金的元素 T 是 Fe、或 Fe 和 Co。原料合金中的 T 量是除去构成原料合金的其他元素以外的余量。另外,通过添加 Go 作为置换 Fe 的元素,能够提高居里温度,但会导致剩余磁通密度降低,所以原料合金中的 Co 量优选为 10.0at.% 以下,更优选为 2.0at.% 以上 8.0at.% 以下。

[0040] 本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的原料合金中的 B 量为 4.5at.% 以上 7.5at.% 以下。在原料合金中的 B 量少于 4.5at.% 时, $R_2Fe_{17}$  相等析出,因此磁特性下降。另外,在原料合金中的 B 量多于 7.5at.% 时,剩余磁通密度降低。原料合金中的 B 量优选为 5.0at.% 以上 7.0at.% 以下。

[0041] 本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的原料合金中的 Al 量小于 1.5at.%。在本发明中,考虑到 Al 具有使剩余的 R 在 R-T-B 类稀土磁体粉末的晶界均匀扩散的效果,因此,需要在原料合金中含有超过 0at.%。为了使 R 迅速地在晶界扩散,原料合金中的 Al 量优选为 0.05at.% 以上。另一方面,在 Al 量多时,非磁性相量增多,导致剩余磁通密度降低,因此优选 Al 量少。只要原料合金中的 Al 量在 1.0at.% 以下就能够获得高剩余磁通密度,因此优选。原料合金中的 Al 量更优选为 0.07at.% 以上 0.8at.% 以下。

[0042] 另外,本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的原料合金优选含有 Ga 和 Zr。原料合金中的 Ga 量优选为 0.1at.% 以上 1.0at.% 以下。在原料合金中的 Ga 量小于 0.1at.% 时,矫顽力提高的效果小;在超过 1.0at.% 时,剩余磁通密度降低。另外,原料合金中的 Zr 量优选为 0.05at.% 以上 0.15at.% 以下。在原料合金中的 Zr 量小于 0.05at.% 时,矫顽力提高的效果小;在超过 0.15at.% 时,剩余磁通密度降低。

[0043] 另外,本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的原料合金,除了含有上述元素之外,还可

以含有 Ti、V、Nb、Si、Cr、Mn、Zn、Mo、Hf、W、Ta、Sn 中的一种或二种以上的元素。通过添加这些元素,能够提高 R-T-B 类稀土磁体粉末的磁特性。这些元素的含量合计优选为 2.0at.% 以下,更优选为 1.0at.% 以下。在这些元素的含量超过 2.0at.% 时,可能会导致剩余磁通密度降低或其他相析出。

[0044] (原料合金粉末的制作)

[0045] 作为 R-T-B 类稀土磁体粉末的原料合金,可以使用通过叠箱铸型法、离心铸造法制作的锭或通过板带连铸法制作的带。由于这些合金在铸造时会发生组成的偏析,因此,可以在 HDDR 处理之前进行组成的均质化热处理。均质化热处理在真空或不活泼气体氛围中,优选以 950℃ 以上 1200℃ 以下、更优选 1000℃ 以上 1170℃ 以下进行。接着,进行粗粉碎和微粉碎,制成 HDDR 处理用原料合金粉末。粗粉碎可以使用颚式破碎机等。之后,进行一般的储氢粉碎、机械粉碎,得到 R-T-B 类稀土磁体粉末的原料合金粉末。

[0046] 下面,对使用上述原料合金粉末制造 R-T-B 类稀土磁体粉末的方法进行说明。

[0047] (HDDR 处理)

[0048] HDDR 处理包括:通过氢化将 R-T-B 类原料合金分解为  $\alpha$ -Fe 相、 $RH_2$  相、 $Fe_2B$  相的 HD 工序;和通过减压,排出氢,发生由上述各相生成  $Nd_2Fe_{14}B$  的逆反应的 DR 工序。

[0049] (HD 工序)

[0050] HD 工序中的处理温度优选在 700℃ 以上 870℃ 以下进行。在此,将处理温度设为 700℃ 以上是因为低于 700℃ 时反应不进行,设为 870℃ 以下是因为反应温度大于 870℃ 时晶粒生长、矫顽力下降。氛围优选以氢分压 20kPa 以上 90kPa 以下的氢气和 not active 气体的混合氛围进行,更优选氢分压为 40kPa 以上 80kPa 以下。这是因为低于 20kPa 时反应不进行,大于 90kPa 时反应性过高、磁特性降低。处理时间优选为 30 分钟以上 10 小时以下,更优选为 1 小时以上 7 小时以下。

[0051] (DR 工序)

[0052] DR 工序的处理温度优选在 800℃ 以上 900℃ 以下进行。在此,将处理温度设为 800℃ 以上是因为小于 800℃ 时脱氢不进行,设为 900℃ 以下是因为超过 900℃ 时晶粒过度成长、矫顽力下降。DR 工序中使得最终的真空度为 1Pa 以下。DR 工序的排气工序可以分为预备排气工序和完全排气工序进行。

[0053] (DR 工序 - 预备排气工序)

[0054] 预备排气工序中的处理温度优选在 800℃ 以上 900℃ 以下进行。在此,将处理温度设为 800℃ 以上是因为小于 800℃ 时脱氢不进行,设为 900℃ 以下是因为大于 900℃ 时晶粒过度生长、矫顽力降低。

[0055] 在预备排气工序中,优选将真空度设为 2.5kPa 以上 4.0kPa 以下进行。这是为了从  $RH_2$  相除去氢。通过在预备排气工序中从  $RH_2$  相除去氢,能够得到结晶方位一致的 RFeBH 相。处理时间优选以 30 分钟以上 180 分钟以下进行。

[0056] (DR 工序 - 完全排气工序)

[0057] 完全排气工序中的处理温度优选与预备排气工序一样,以 800℃ 以上 900℃ 以下进行。在此,将处理温度设为 800℃ 以上是因为小于 800℃ 时 Nd-Al 不熔融,不会充分发生富 Nd 相向晶界的扩散,因而矫顽力不会提高。另外,设为 900℃ 以下是因为超过 900℃ 时晶粒过度成长、矫顽力降低。

[0058] 在完全排气工序中,由预备排气工序的氛围进一步进行排气,将最终的真空度设为 1Pa 以下。另外,优选将整个完全排气工序的处理时间设为 30 分钟以上 150 分钟以下,特别是将在真空度为 1Pa 以上 2000Pa 以下的保持时间设为 10 分钟以上 140 分钟以下。更优选将真空度为 1Pa 以上 2000Pa 以下的保持时间设为 15 分钟以上 120 分钟以下。真空度既可以连续下降,也可以阶段性下降。在整个完全排气工序的处理时间为 30 分钟以下时,脱氢不完全,矫顽力下降;在为 150 分钟以上时,晶粒过度成长,导致矫顽力下降。

[0059] 通过上述 HDDR 处理,能够得到 R-T-B 类稀土磁体粉末。所得到的 R-T-B 类稀土磁体粉末可以在完全排气工序结束后进行冷却。通过将完全排气工序结束后的 R-T-B 类稀土磁体粉末在 Ar 中进行急冷,能够防止磁体粉末的晶粒生长。

[0060] (热处理)

[0061] R-T-B 类稀土磁体粉末的热处理在真空或 Ar 氛围中进行。热处理温度设为 670°C 以上 820°C 以下。在热处理温度小于 670°C 时,难以进行富 R 向晶界的扩散,矫顽力增大的效果小。在超过 820°C 的温度下效果饱和,并且会引起磁性相晶粒的粗大化,所以矫顽力降低。另外,在比 DR 工序的处理温度高的温度下实施热处理时,可能会导致磁性相晶粒的粗大化,磁体粉末的矫顽力降低,因此,优选在比 DR 工序的处理温度低的温度下实施热处理。热处理温度优选为 700°C 以上 800°C 以下。

[0062] 另外,热处理时间设为 30 分钟以上 300 分钟以下。在热处理时间少于 30 分钟时,R 的扩散不能充分进行,因此,矫顽力增大的效果小;在超过 300 分钟的时间时效果饱和,并且因磁性相晶粒的粗大化使得磁体粉末的矫顽力降低。热处理时间优选为 45 分钟以上 180 分钟以下,更优选为 60 分钟以上 120 分钟以下。

[0063] 在热处理结束后进行冷却,得到本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末。通过将热处理后的 R-T-B 类稀土磁体粉末在 Ar 氛围中进行急冷,能够防止磁体粉末的磁性相晶粒的粗大化,能够防止矫顽力降低。

[0064] 在本发明中,通过在 HDDR 处理完成后,在比 DR 工序低的温度下进行 HDDR 处理后的热处理,不会引起磁体粉末的晶粒的粗大化,能够增大矫顽力,维持高剩余磁通密度。

[0065] 含有 Al 的 R-T-B 类磁体粉末的 HDDR 处理后的热处理所带来的增大矫顽力和维持剩余磁通密度的效果,在原料合金的 Al 量、进一步在 R-T-B 类稀土磁体粉末的平均组成的 Al 量小于 1.5at.% 时体现。在 Al 量为 1.5at.% 以上时,由于在 HDDR 处理中 R 的扩散充分进行,所以没有看到矫顽力提高,本身的磁体粉末的剩余磁通密度低。在本发明中,通过 HDDR 处理后的热处理,能够获得仅有 HDDR 处理时不充分的、由于 Al 引起的 R 向晶界相扩散所带来的矫顽力提高的效果,所以在存在 Al、并且 Al 的含量少的磁体粉末中,发挥出更优异的矫顽力提高效果。为了得到具备高矫顽力和高剩余磁通密度的 R-T-B 类稀土磁体粉末,优选 Al 量为 0.05at.% 以上 1.0at.% 以下,更优选为 0.07at.% 以上 0.8at.% 以下。

[0066] (粘结磁体的制造)

[0067] 使用本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末制造粘结磁体。在磁体粉末中添加热塑型树脂、偶联剂、润滑剂进行混炼后,在磁场中进行压缩成型、注射成型等,能够制造粘结磁体。另外,在环氧树脂等热固型树脂中混合磁体粉末,通过加压成型等进行成型后,通过进行热处理能够制造粘结磁体。

[0068] 下面,详细地例示本发明的实施例和比较例。



[0069] 在本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的平均组成和原料合金组成的分析中, B 和 Al 的分析使用 ICP 发光分光分析装置(Thermo Fisher Scientific 公司生产:iCAP6000),除了 B 和 Al 以外的分析使用荧光 X 射线分析装置(理学电机工业株式会社生产:RIX2011)。

[0070] 本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的晶界的组成分析使用能量分散型 X 射线分析装置(日本电子株式会社生产:JED-2300F)。

[0071] 作为本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的磁特性,用振动试样型磁通计(VSM:东英工业生产、VSM-5 型)测定矫顽力( $H_{c_j}$ )、最大磁能积( $BH_{max}$ )、剩余磁通密度( $B_r$ )。

[0072] (原料合金粉末的制作)

[0073] 制作表 1 所示的各组成的合金锭 A1 ~ A3。将这些合金锭在真空氛围下以 1150°C 进行 20 小时热处理,进行组成的均质化。均质化热处理后,使用颚式破碎机进行粗粉碎,再使氢吸留,进行机械粉碎,得到原料合金粉末 A1 ~ A3。

[0074] [表 1]

[0075]

	Nd	Fe	Co	B	Al	Ga	Zr
A1	12.9	bal.	5.3	6.2	0.07	0.5	0.1
A2	12.9	bal.	5.3	6.2	0.5	0.5	0.1
A3	12.9	Bal.	5.3	6.2	1.5	0.5	0.1

[0076] \*单位:at%、bal. 表示余量

[0077] (实施例 1)

[0078] (HDDR 处理 -HD 工序)

[0079] 在 HD 工序中,将 5kg 的原料合金粉末 A1 装入炉内,在氢分压 60kPa、总压 100kPa (大气压)的氢 -Ar 混合气体中升温至 840°C,保持 200 分钟。

[0080] (HDDR 处理 - 预备排气工序)

[0081] 在 HD 工序结束后,用回转泵进行真空排气,进行使炉内真空度达到 3.2kPa 的预备排气工序。通过调节真空排气系统的阀门开度,将真空度维持在 3.2kPa,将处理温度设为 840°C,保持 100 分钟,进行脱氢。

[0082] (HDDR 处理 - 完全排气工序)

[0083] 在预备排气工序结束后,进一步进行真空排气,进行完全排气工序使得炉内的真空度从 3.2kPa 最终达到 1Pa 以下。将处理温度设为 840°C,将整个完全排气工序的处理时间设为 45 分钟。将得到的粉末冷却,得到 R-T-B 类稀土磁体粉末。测定得到的 R-T-B 类稀土磁体粉末的磁特性。

[0084] (热处理)

[0085] 在热处理中,将 HDDR 处理后的粉末装入炉内,在 Ar 氛围中升温至 700°C,在 700°C 保持 1 小时后,在 Ar 氛围中进行急冷,得到 R-T-B 类稀土磁体粉末。测定得到的 R-T-B 类稀土磁体粉末的组成和磁特性。

[0086] (实施例 2)

[0087] 除了将热处理温度设为 750°C 之外,与实施例 1 同样操作,得到 R-T-B 类稀土磁体

粉末。

[0088] (实施例 3)

[0089] 除了将热处理温度设为 800°C 之外,与实施例 1 同样操作,得到 R-T-B 类稀土磁体粉末。

[0090] (实施例 4)

[0091] 除了将热处理时间设为 2 小时之外,与实施例 2 同样操作,得到 R-T-B 类稀土磁体粉末。

[0092] (实施例 5)

[0093] 除了使用原料合金粉末 A2 之外,与实施例 1 同样操作,得到 R-T-B 类稀土磁体粉末。

[0094] (实施例 6)

[0095] 除了使用原料合金粉末 A2 之外,与实施例 2 同样操作,得到 R-T-B 类稀土磁体粉末。

[0096] (实施例 7)

[0097] 除了使用原料合金粉末 A2 之外,与实施例 3 同样操作,得到 R-T-B 类稀土磁体粉末。

[0098] (实施例 8)

[0099] 除了将热处理时间设为 3 小时之外,与实施例 7 同样操作,得到 R-T-B 类稀土磁体粉末。

[0100] (比较例 1)

[0101] 除了使用原料合金粉末 A3 之外,与实施例 1 同样操作,得到 R-T-B 类稀土磁体粉末。

[0102] (比较例 2)

[0103] 除了使用原料合金粉末 A3 之外,与实施例 2 同样操作,得到 R-T-B 类稀土磁体粉末。

[0104] (比较例 3)

[0105] 除了使用原料合金粉末 A3 之外,与实施例 3 同样操作,得到 R-T-B 类稀土磁体粉末。

[0106] [表 2]

[0107]

	使用合金 种类	热处理条件		磁体粉末平均组成		磁体粉末晶界组成		热处理前磁性			热处理后磁性		
		温度 °C	时间 hr	Al量 at%	Nd量 at%	Al量 at%	Nd量 at%	Hcj kA/m	(BH)max kJ/m <sup>3</sup>	Br T	Hcj kA/m	(BH)max kJ/m <sup>3</sup>	Br T
实施例1	A1	700	1.0	0.07	12.9	0.08	21.2	1200	284	1.26	1300	289	1.26
实施例2	A1	750	1.0	0.07	12.9	0.08	21.4	1200	284	1.26	1320	291	1.27
实施例3	A1	800	1.0	0.07	12.9	0.09	21.5	1200	284	1.26	1290	289	1.27
实施例4	A1	750	2.0	0.07	12.9	0.08	21.3	1200	284	1.26	1310	288	1.26
实施例5	A2	700	1.0	0.50	12.9	0.70	23.8	1260	278	1.25	1300	279	1.25
实施例6	A2	750	1.0	0.50	12.9	0.72	24.0	1260	278	1.25	1310	280	1.25
实施例7	A2	800	1.0	0.50	12.9	0.73	24.1	1260	278	1.25	1300	279	1.25
实施例8	A2	800	3.0	0.50	12.9	0.72	24.0	1260	278	1.25	1310	275	1.25
比较例1	A3	700	1.0	1.50	12.9	1.66	23.5	1320	269	1.19	1280	261	1.19
比较例2	A3	750	1.0	1.50	12.9	1.68	23.7	1320	269	1.19	1300	262	1.19
比较例3	A3	800	1.0	1.50	12.9	1.68	23.7	1320	269	1.19	1320	269	1.19

[0108] (结果)

[0109] 在表 2 中实施例 1 ~ 8 中得到了具有 1290kA/m 以上的矫顽力和 1.25T 以上的剩

余磁通密度的磁体粉末。可以推测这是由于在热处理中富 Nd 相在晶界扩散,使得与热处理前相比晶界的富 Nd 相的厚度增加的缘故。

[0110] 另外,在比较例 1 ~ 3 中,即使进行热处理磁体粉末的矫顽力也没有增加。可以认为由于在原料合金中 Al 的添加量多,所以在 HDDR 处理中富 R 相充分扩散,因此没有热处理的效果,未观察到矫顽力的增大。另外,由于 Al 含量多,所以磁体粉末的剩余磁通密度为比实施例低的值。

[0111] 根据本发明的 R-T-B 类稀土磁体粉末的制造方法,通过抑制使矫顽力增大的元素的添加量,能够不降低剩余磁通密度,通过热处理使富 R 相在晶界扩散,能够得到剩余磁通密度和矫顽力优异的 R-T-B 类稀土磁体粉末。