



(12)发明专利申请

(10)申请公布号 CN 105849828 A

(43)申请公布日 2016.08.10

(21)申请号 201480070823.X

(74)专利代理机构 北京市中咨律师事务所
11247

(22)申请日 2014.12.19

代理人 张双双 林柏楠

(30)优先权数据

2013-269204 2013.12.26 JP

(51)Int.Cl.

H01F 1/057(2006.01)

(85)PCT国际申请进入国家阶段日

2016.06.24

H01F 41/02(2006.01)

(86)PCT国际申请的申请数据

PCT/IB2014/002836 2014.12.19

(87)PCT国际申请的公布数据

W02015/097523 EN 2015.07.02

(71)申请人 丰田自动车株式会社

地址 日本爱知县

(72)发明人 佐久间纪次 庄司哲也

佐久间大祐 芳贺一昭

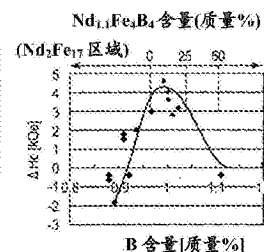
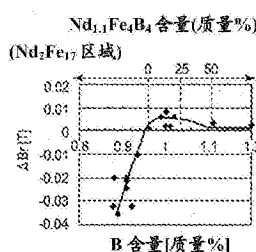
权利要求书1页 说明书8页 附图8页

(54)发明名称

制造稀土磁体的方法

(57)摘要

制造方法包括：制造具有(R1)_x(Rh)_yT_zB_sM_t组成的烧结体；通过在烧结体上进行热形变加工而制造前体；和通过在450℃至700℃的温度范围内在前体上进行老化处理而制造稀土磁体。在该方法中，其主相由(R1Rh)₂T₁₄B相形成。其晶界相中(R1Rh)_{1.1}T₄B₄相的含量为多于0质量%且50质量%或更少。R1表示轻稀土元素。Rh表示重稀土元素。T表示过渡金属。M表示Ga、Al、Cu和Co中的至少一种。x、y、z、s和t为R1、Rh、T、B和M的质量百分数。x、y、z、s和t由以下表达式表示：27≤x≤44，0≤y≤10，z=100-x-y-s-t，0.75≤s≤3.4，0≤t≤3。



1. 一种制造稀土磁体的方法,包括:

制造具有由 $(R1)_x(Rh)_yT_zB_sM_t$ 组成表示的结构烧结体,其中结构的主相由 $(R1Rh)_2T_{14}B$ 相形成,且结构的晶界相中 $(R1Rh)_{1.1}T_4B_4$ 相的含量为多于0质量%且50质量%或更少;

通过在烧结体上进行热形变加工而制造稀土磁体前体,和

通过在450°C至700°C的温度范围内在稀土磁体前体上进行老化处理而制造稀土磁体,其中:

R1表示含有Y的轻稀土元素中的至少一种,

Rh表示含有Dy和Tb的重稀土元素中的至少一种,

T表示含有Fe和Co中的至少一种的过渡金属,

B表示硼,

M表示Ga、Al、Cu和Co中的至少一种,

x、y、z、s和t分别表示烧结体中R1、Rh、T、B和M的质量百分数,且x、y、z、s和t由以下表达式表示:

$$27 \leq x \leq 44, 0 \leq y \leq 10, z = 100 - x - y - s - t, 0.75 \leq s \leq 3.4, 0 \leq t \leq 3.$$

2. 根据权利要求1的方法,其中在老化处理期间,包含轻稀土元素以及过渡金属、In、Zn、Al和Ga中的至少一种的改性合金扩散和浸透到晶界相中。

制造稀土磁体的方法

[0001] 发明背景

1. 发明领域

[0002] 本发明涉及制造稀土磁体的方法。

[0003] 2. 相关技术描述

[0004] 由稀土元素制成的稀土磁体称为永久磁体并且用于驱动混合动力车辆、电车等的马达以及包括在硬盘和MRI中的马达。

[0005] 作为表示这些稀土磁体的磁体性能的指标,例如可使用剩余磁化(剩余磁通密度)和矫顽力。连同马达尺寸的降低和电流密度的提高,发热量增加,因此关于高耐热性的要求在待使用的稀土磁体中进一步提高。因此,该技术领域中的一个重要研究问题是在高温下使用时如何保持磁体的矫顽力。作为实例,描述了Nd-Fe-B基磁体,其为广泛用于车辆驱动马达中的稀土磁体。在该Nd-Fe-B基磁体中,提高其矫顽力的尝试例如通过将晶粒精制,通过使用具有大量Nd的合金组合物,或者通过加入具有高矫顽力性能的重稀土元素如Dy或Tb而进行。

[0006] 稀土磁体的实例包括常用烧结磁体,其中构成其结构的晶粒的晶粒大小为约 $3\mu\text{m}$ 至 $5\mu\text{m}$;和纳米结晶磁体,其中将晶粒精制至约 50nm 至 300nm 的纳米级晶粒大小。

[0007] 为改进该稀土磁体的磁性能中的矫顽力,PCT国际公开W02012/008623公开了一种方法,其中例如Nd-Cu合金或Nd-Al合金作为含有过渡金属元素等和轻稀土元素的改性合金扩散和浸透到晶界相中以改性晶界相。

[0008] 由于包含过渡金属元素等和轻稀土元素的改性合金不包含重稀土元素如Dy,改性合金具有低熔点,甚至在约 700°C 下熔融,并且可扩散和浸透到晶界相中。因此,在具有约 300nm 或更小的晶粒大小的纳米结晶磁体的情况下,可以说以上加工方法是优选的,因为矫顽力性能可通过改性晶界相,同时抑制晶粒的粗化而改进。

[0009] 然而,当Nd-Cu合金等扩散和浸透到晶界相中时,为使Nd-Cu合金等扩散和浸透到磁体的中心区域中,必需提高Nd-Cu合金等的浸透量或热处理时间。

[0010] 在这种情况下,Nd-Cu合金本身为非磁性合金,因此,当待扩散和浸透的Nd-Cu合金等的浸透量提高时,磁体中非磁性合金的含量提高,这导致磁体的剩余磁化降低。另外,Nd-Cu合金等的浸透量提高导致材料成本提高。

[0011] 另外,使用长期热处理的Nd-Cu合金等扩散和浸透导致磁体的制造时间和成本提高。

[0012] 另一方面,代替改性合金的扩散和浸透,PCT国际公开W02012/036294公开了制造稀土磁体的方法,其中热处理在足够高以导致晶界相扩散或流动并且足够低以防止晶粒粗化的温度下在经受热形变加工的稀土磁体前体上进行,使得富集在晶粒的三相点(triple point)上的晶界相充分浸透到不同于三相点的晶界中以覆盖各晶粒,由此改进矫顽力性能。该热处理也可称为优化热处理或老化处理。

[0013] 此处定义的老化处理期间的低温最高为约 700°C ,如同PCT国际公开W0 2012/

008623的情况。为使晶界相在该低温下扩散或流动,稀土磁体组成由例如Nd₁₅Fe₇₇B₇Ga表示,并由具有富Nd晶界相的组合物材料制造稀土磁体。

[0014] 然而,PCT国际公开WO 2012/036294中公开的制造方法主要关注矫顽力性能的改进。因此,用该制造方法是否可制造矫顽力性能和磁化性能都优秀的稀土磁体是不清楚的。

[0015] 发明概述

[0016] 做出本发明以提供制造稀土磁体的方法,所述方法能够制造矫顽力性能和磁化性能都优秀的稀土磁体。

[0017] 根据本发明一方面,提供制造稀土磁体的方法,包括:制造烧结体,所述烧结体具有由组成(R1)_x(Rh)_yT_zB_sM_t表示的结构;通过在烧结体上进行热形变加工而制造稀土磁体前体,和通过在450°C至700°C的温度范围内在稀土磁体前体上进行老化处理而制造稀土磁体。在该方法中,结构的主相由(R1Rh)₂T₁₄B相形成。该结构的晶界相中(R1Rh)_{1.1}T₄B₄相的含量为多于0质量%且50质量%或更少。R1表示含有Y的轻稀土元素中的至少一种。Rh表示含有Dy和Tb的重稀土元素中的至少一种。T表示含有Fe和Co中的至少一种的过渡金属。B表示硼。M表示Ga、Al、Cu和Co中的至少一种。x、y、z、s和t分别表示烧结体中R1、Rh、T、B和M的质量百分数。x、y、z、s和t由以下表达式表示:27 ≤ x ≤ 44, 0 ≤ y ≤ 10, z = 100 - x - y - s - t, 0.75 ≤ s ≤ 3.4, 0 ≤ t ≤ 3。

[0018] 在根据本发明该方面的制造稀土磁体的方法中,晶界相中(R1Rh)_{1.1}T₄B₄相的含量限定为多于0质量%且50质量%或更少,且除Nd等外,晶界相包含Ga、Al、Cu和Co中的至少一种。另外,老化处理在450°C至700°C的温度范围内在经受热形变加工的稀土磁体前体上进行。因此,由于晶界相中Nd等和Ga、Al、Cu、Co等通过老化处理形成合金,将晶界相改性,并抑制磁化的降低。因此,用根据本发明该方面的制造稀土磁体的方法,可制造矫顽力性能和磁化性能都优秀的稀土磁体。

[0019] 此处,为根据本发明该方面的制造方法的制造目标的稀土磁体包括:其中构成其结构的主相(晶体)的晶粒大小为约300nm或更小的纳米结晶磁体;和具有大于300nm的晶粒大小或者1μm或更大的晶粒大小的烧结磁体。

[0020] 在根据该方面的制造方法中,首先制造由上述组成表示且具有包含主相和晶界相的结构的磁性粉末。例如,用于稀土磁体的磁性粉末可通过快速固化制备为细晶粒的快速固化条,并将快速固化条压碎而制备。

[0021] 将该磁性粉末填充到例如模具中并烧结,同时通过冲模压缩成块。因此,得到各向同性烧结体。该烧结体具有金相结构,其包括纳米结晶结构的RE-Fe-B主相和围绕主相存在的RE-X合金(X:金属元素)的晶界相。此处,RE表示Nd和Pr中的至少一种,更具体而言,选自Nd、Pr和Nd-Pr的一种元素或者两种或更多种元素。除Nd等外,晶界相包含Ga、Al、Cu和Co中的至少一种,且包含(R1Rh)_{1.1}T₄B₄相,例如50质量%或更少的含量范围的Nd_{1.1}Fe₄B₄。

[0022] 本发明人描述了由于晶界相包含50质量%或更少的含量范围的Nd_{1.1}Fe₄B₄,即,通过将晶界相中的B含量控制在预定范围内,抑制老化处理期间主相的含量降低,因此抑制磁化的降低。

[0023] 接着,对各向同性烧结体进行热形变加工以赋予其磁各向异性。热形变加工的实例包括顶锻和挤出锻造(前向挤压锻造和后向挤压锻造)。加工应变通过使用上述热形变加工方法中的一种方法或者两种或更多种方法的组合引入烧结体中。接着,例如高形变以

60%至80%的加工速率进行。因此,制造具有高定向和优秀磁化性能的稀土磁体。

[0024] 如上所述,稀土磁体通过在450℃至700℃的温度范围内在制造的稀土磁体前体上进行老化处理而制造。

[0025] 除Nd等外,构成稀土磁体前体的晶界相包含Ga、Al、Cu和Co中的至少一种。因此,晶界相可在450℃至700℃的低温范围内熔融和流动,并且Nd等和Ga、Al、Cu、Co等可形成合金。即,通过将预先晶界相中所含的过渡金属元素等和轻稀土元素形成合金,可显示出与其中改性合金扩散和浸透的情况相同的改性效果,而未必使改性合金扩散和浸透到磁体的表面中。

[0026] 这样,在根据本发明该方面的制造稀土磁体的方法中,磁体的整个区域中的晶界相可通过老化处理(或优化处理)改性而未必使改性合金扩散和浸透到其中。因此,矫顽力改进。另外,由于晶界相包含预定量的硼,可抑制主相的含量降低,并且可抑制磁化的降低。

[0027] 另外,在根据本发明该方面的制造稀土磁体的方法中,在老化处理期间,包含轻稀土元素以及过渡金属、In、Zn、Al和Ga中的至少一种的改性合金可扩散和浸透到晶界相中。

[0028] 由于改性合金在老化处理期间扩散和浸透到晶界相中,改性合金容易扩散和浸透到其中的稀土磁体前体的表面区域的晶界相进一步改性。

[0029] 通过使预先存在于晶界相中的过渡金属元素等和轻稀土元素形成合金而进行的晶界相的改性在稀土磁体前体的整个区域的晶界相上进行。因此,晶界相的改性可充分地在稀土磁体前体的中心区域上进行而未必使改性合金扩散和浸透到中心区域中。

[0030] 通过使用包含轻稀土元素以及过渡金属、In、Zn、Al和Ga中的至少一种的改性合金,当老化处理在450℃至700℃的相对低温范围内进行时,改性合金熔融并扩散和浸透到晶界相中;并且可同时进行晶界相中过渡金属等和轻稀土元素形成合金。

[0031] 在根据本发明该方面的制造稀土磁体的方法中,具有在450℃至700℃的温度范围内的熔点或共晶点的改性合金可以为含有轻稀土元素如Nd或Pr和元素如Cu、Co、Mn、In、Zn、Al、Ag、Ga或Fe的合金。

[0032] 通过改性合金这样扩散和浸透到晶界相中,可改性特别是磁体的表面区域的晶界相(例如当从磁体的中心至表面的距离由s表示时,s/3的范围和2s/3的范围可分别定义为中心区域和表面区域)。即,磁体的整个区域的晶界相可通过晶界相中的过渡金属等和轻稀土元素形成合金而改性。因此,未必使非磁性改性合金扩散和浸透到磁体的中心区域中以改性晶界相。

[0033] 如上所述,在根据本发明该方面的制造稀土磁体的方法中,晶界相中(R1Rh)_{1.1}T₄B₄相的含量限定为多于0质量%且50质量%或更少。另外,除Nd等外,晶界相包含Ga、Al、Cu和Co中的至少一种。另外,晶界相通过在450℃至700℃的温度范围内在经受热形变加工的稀土磁体前体上进行老化处理使得晶界相中的Nd等和Ga、Al、Cu、Co等通过老化处理形成合金而改性。因此,在根据本发明该方面的制造稀土磁体的方法中,可抑制磁化的降低,并且可制造磁化性能和矫顽力性能都优秀的稀土磁体。另外,磁体的表面区域的矫顽力可通过包含轻稀土元素以及过渡金属、In、Zn、Al和Ga中的至少一种的改性合金在老化处理期间扩散和浸透到晶界相中而进一步改进。

[0034] 附图简述

[0035] 下面参考附图描述本发明示例实施方案的特征、优点以及技术和工业重要性,其中类似的数字表示类似的元件,且其中:

[0036] 图1A和1B为顺序地阐述根据本发明实施方案的制造稀土磁体的方法的第一步骤的示意图,且图1C为阐述其第二步骤的示意图;

[0037] 图2A为阐述图1B中所述烧结体的微结构的图,且图2B为阐述图1C所述稀土磁体前体的微结构的图;

[0038] 图3A和图3B为阐述根据该实施方案的制造稀土磁体的方法的第三步骤的示意图;

[0039] 图4为阐述制造的稀土磁体的晶体结构的微结构的图;

[0040] 图5为阐述实施例1-5和对比例1-7的试片制造期间的第三步骤的加热路径的图;

[0041] 图6为阐述热形变加工以后的B含量与剩余磁化和矫顽力之间的关系图;

[0042] 图7为阐述老化处理以后的B含量与剩余磁化和矫顽力之间的关系图;

[0043] 图8为阐述热形变加工以前和以后的B含量与剩余磁化和矫顽力变化之间的关系和阐述Nd_{1.1}T₄B₄相的最佳含量的图;

[0044] 图9为阐述在其中老化处理以及改性合金的扩散和浸透处理同时进行的情况以及其中上述处理不同时进行的情况下,热处理以后的磁化变化的图;

[0045] 图10为阐述在其中老化处理以及改性合金的扩散和浸透处理同时进行的情况以及其中上述处理不同时进行的情况下,热处理以后的矫顽力变化的图;

[0046] 图11为阐述其中老化处理以及改性合金的扩散和浸透处理同时进行,同时改变硼含量(B含量)的情况以及其中上述处理不同时进行,同时改变硼含量(B含量)的情况下,热处理以后的磁化变化的图;

[0047] 图12为阐述其中老化处理以及改性合金的扩散和浸透处理同时进行,同时改变硼含量(B含量)的情况以及其中上述处理不同时进行,同时改变硼含量(B含量)的情况下,热处理以后的矫顽力变化的图;和

[0048] 图13为阐述取决于硼含量(B含量)的变化,热处理期间的磁化和矫顽力变化的图。

[0049] 实施方案详述

[0050] (制造稀土磁体的方法的实施方案)

[0051] 图1A和1B为顺序地阐述根据本发明实施方案的制造稀土磁体的方法的第一步骤的示意图,且图1C为阐述其第二步骤的示意图。另外,图3A和3B为阐述根据该实施方案的制造稀土磁体的方法的第三步骤的示意图。另外,图2A为阐述图1B中所述烧结体的微结构的图,且图2B为阐述图1C所述稀土磁体前体的微结构的图。另外,图4为阐述制造的稀土磁体的晶体结构的微结构的图;

[0052] 如图1A所述,在压力降至例如50kPa或更小的具有Ar气氛的炉(未阐述)中,使用单辊熔体纺丝方法通过高频感应加热将合金锭熔融,使熔融金属经受铜辊R以制备快速固化条B,且将该快速固化条B压碎。此处,熔融金属具有构成稀土磁体的组成。

[0053] 如图1B所述,将压碎的快速固化条B填充到由硬质合金模具D和在硬质合金模具D的中空部分中滑动的硬质合金冲模P划分的空腔中。接着,通过使电流沿着压缩方向流过其中,同时用硬质合金冲模P(X方向)压缩而将压碎的快速固化条B加热。因此,制造具有由(R₁)_x(R_h)_yT_zB_sM_t表示的组成的烧结体S。此处,R₁表示含有Y的轻稀土元素中的至少一种。R_h表示含有Dy和Tb的重稀土元素中的至少一种。T表示含有Fe和Co中的至少一种的过渡金属。

B表示硼。M表示Ga、Al、Cu和Co中的至少一种的过渡元素。x、y、z、s和t分别表示烧结体中R1、Rh、T、B和M的质量百分数。x、y、z、s和t由以下表达式表示： $27 \leq x \leq 44$ ， $0 \leq y \leq 10$ ， $z = 100 - x - y - s - t$ ， $0.75 \leq s \leq 3.4$ ， $0 \leq t \leq 3$ 。烧结体S具有包含主相和晶界相的结构，且主相具有约50nm至300nm的晶粒大小(在上文中，第一步骤)。

[0054] 除Nd等外，晶界相包含Ga、Al、Cu和Co中的至少一种，且为富Nd状态。另外，晶界相包含Nd相和Nd_{1.1}T₄B₄相作为主要组分，其中将Nd_{1.1}T₄B₄相的含量控制在多于0质量%且50质量%或更少的范围内。

[0055] 如图2A所述，烧结体S具有各向同性晶体结构，其中晶界相BP填充在纳米结晶晶粒MP(主相)之间。为赋予烧结体S磁各向异性，如图1C所述，使硬质合金冲模P与烧结体S的端面在其纵向上接触(在图1B中，水平方向为纵向)使得热形变加工在烧结体S上进行，同时用硬质合金冲模P(X方向)压缩。因此，制造如图2B所述包含具有各向异性纳米结晶晶粒MP的晶体结构的稀土磁体前体C(上文中，第二步骤)。

[0056] 当通过热形变加工的加工程度(可压缩性)高时，例如当可压缩性为约10%或更高时，该加工可称为高热形变或简单地高形变。然而，优选高形变以约60%至80%的可压缩性进行。

[0057] 在图2B所述稀土磁体前体C的晶体结构中，纳米结晶晶粒MP具有扁平形状，且与各向异性轴基本平行的界面是曲面或弯曲的，且不由特定表面(specific surface)构成。

[0058] 接着，如图3A和3B所述，第三步骤可主要使用两种方法进行。

[0059] 在使用如图3A所述第三步骤的第一实施方案制造稀土磁体的方法中，将稀土磁体前体C放入高温炉H中，且仅老化处理在450℃至700℃的温度范围内在稀土磁体前体C上进行。

[0060] 除Nd等外，构成稀土磁体前体C包含Ga、Al、Cu和Co中的至少一种。因此，晶界相BP可在450℃至700℃的低温范围内熔融和流动，且Nd等和Ga、Al、Cu、Co等可形成合金。即，通过预先包含在晶界相中的过渡金属等和轻稀土元素形成合金，可显示出与改性合金扩散和浸透的情况相同的改性效果而未必使改性合金扩散和浸透到磁体的表面中。

[0061] 另外，通过晶界相BP包含50质量%或更少的含量范围的Nd_{1.1}Fe₄B₄，即通过将晶界相BP中的硼含量(B含量)控制在预定范围内，抑制老化处理期间主相的含量降低，因此抑制磁化的降低。

[0062] 因此，矫顽力可通过老化处理改进，并且可抑制由老化处理导致的磁化降低。因此，可制造矫顽力性能和磁化性能都优秀的稀土磁体。

[0063] 另一方面，在使用如图3B所述第三步骤的第二实施方案制造稀土磁体的方法中，将改性合金粉末SL喷雾在稀土磁体前体C的表面上，将稀土磁体前体C放入高温炉H中，并使改性合金SL扩散和浸透，同时在450℃至700℃的温度范围内在稀土磁体前体C上进行老化处理。

[0064] 关于改性合金粉末SL，可将片型改性合金粉末置于稀土磁体前体的表面上，或者可制备改性合金粉末的淤浆并涂覆在稀土磁体前体的表面上。

[0065] 此处，包含轻稀土元素以及过渡金属、In、Zn、Al和Ga中的至少一种且具有450℃至700℃的低共晶点的改性合金用作改性合金粉末SL。作为改性合金粉末SL，优选使用Nd-Cu合金(共晶点：520℃)、Pr-Cu合金(共晶点：480℃)、Nd-Pr-Cu合金、Nd-Al合金(共晶点：640

℃)、Pr-Al合金(共晶点:650℃)、Nd-Pr-Al合金、Nd-Co合金(共晶点:566℃)、Pr-Co合金(共晶点:540℃)和Nd-Pr-Co合金中的任一种。在这些中,更优选使用具有580℃或更低的低共晶点的合金,例如Nd-Cu合金(共晶点:520℃)、Pr-Cu合金(共晶点:480℃)、Nd-Co合金(共晶点:566℃)和Pr-Co合金(共晶点:540℃)。

[0066] 通过改性合金这样扩散和浸透到晶界相中,可进一步改性特别是稀土磁体前体C的表面区域的晶界相BP。即,稀土磁体前体C的整个区域的晶界相BP可通过晶界相BP中的过渡金属等和轻稀土元素形成合金而改性。因此,未必使非磁性改性合金SL扩散和浸透到稀土磁体前体C的中心区域中以改性晶界相BP。这样,通过改性合金SL将晶界相BP改性仅是稀土磁体前体C的表面区域所必需的。因此,待扩散和浸透的改性合金SL的量相对于稀土磁体前体C为少于5质量%是足够的。另外,可使老化处理期间的高温保持时间为短的,例如5分钟至180分钟,优选30分钟至180分钟。由于可使改性合金SL的浸透量为小的,材料成本与相关技术的改性合金扩散和浸透处理方法相比可以降低。另外,由于可使老化处理期间的保持时间为短的,制造时间可降低。

[0067] 在根据第三步骤的第一实施方案或第二实施方案的方法中,无论使用哪种方法,预先存在于稀土磁体前体C的晶界相中的Nd等以及Ga、Al、Cu和Co中的至少一种通过老化处理形成合金以改性晶界BP。另外,通过预定量的硼存在于晶界相BP中,图2B中所述稀土磁体前体C的晶体结构改变,且晶粒MP的界面是清楚的,如图4所述。因此,晶粒MP彼此磁分离,并制造具有改进的矫顽力的稀土磁体RM(第三步骤)。在图4所述通过改性合金结构改性的中间步骤中,不形成与各向异性轴基本平行的界面(不是由特定表面构成的)。另一方面,在其中通过改性合金的改性充分进展的步骤中,形成与各向异性轴基本平行的界面(特定表面),制造当从垂直于各向异性轴的方向看时,晶粒MP的形状为矩形或基本矩形的稀土磁体。

[0068] [验证稀土磁体的磁性能,同时改变晶界相中 $(R1Rh)_{1.1}T_4B_4$ 相的含量以描述 $(R1Rh)_{1.1}T_4B_4$ 相的最佳含量范围的实验,及其结果]

[0069] 本发明人进行了描述 $(R1Rh)_{1.1}T_4B_4$ 相的最佳含量范围的实验,其中制造包含 $Nd_{1.1}T_4B_4$ 相作为 $(R1Rh)_{1.1}T_4B_4$ 相的具体实例且包含Nd相的各种稀土磁体,并测量各个试片的磁性能。

[0070] (实施例1-5)

[0071] 在单辊炉($a=0,0.03,0.04,0.05,0.06$)中制备具有由 $Nd_{28.9}Pr_{0.4}Fe_{ba1}B_{0.96+a}Ga_{0.4}Al_{0.1}Cu_{0.1}$ 表示的组成的液体快速固化条,将所得快速固化条烧结以制备烧结体(烧结温度:650℃;400MPa),并在烧结体上进行高形变(加工温度:750℃;加工程度:75%),由此制备稀土磁体前体。接着,根据图5所述加热路径在所得稀土磁体前体上进行老化处理。(对比例1-7)

[0072] 在单辊炉($a=-0.08,-0.07,-0.06,-0.05,-0.03,0.14,0.24$)中制备具有由 $Nd_{28.9}Pr_{0.4}Fe_{ba1}B_{0.96+a}Ga_{0.4}Al_{0.1}Cu_{0.1}$ 表示的组成的液体快速固化条,将所得快速固化条烧结以制备烧结体(烧结温度:650℃;400MPa),并在烧结体上进行高形变(加工温度:750℃;加工程度:75%),由此制备稀土磁体前体。接着,根据图5所述加热路径在所得稀土磁体前体上进行老化处理。使用振动样品磁强计(VSM)和脉冲高场磁强计(TPM)评估磁性能。

[0073] (实验结果)

[0074] 实验结果显示于图6-8中。此处,图6为阐述热形变加工以后的B含量与剩余磁化和矫顽力之间的关系关系的图,且图7为阐述老化处理以后的B含量与剩余磁化和矫顽力之间的关系关系的图。图8为阐述热形变加工以前和以后B含量与剩余磁化和矫顽力变化之间的关系和阐述Nd_{1.1}T₄B₄相的最佳含量的图。

[0075] 在该实验中,主相的含量为95质量%,因此晶界相的含量为5质量%。从图8中发现,当晶界相中Nd_{1.1}T₄B₄相的含量范围为多于0质量%且50质量%或更少时,热形变加工以前和以后的剩余磁化不存在变化,即剩余磁化未通过老化处理降低,且矫顽力提高。

[0076] 另一方面,发现当晶界相中Nd_{1.1}T₄B₄相的含量范围为0质量%或更少时,即,当晶界相相包含Nd相和Nd₂Fe₁₇相时,主相的含量由于晶界相中不存在硼而降低,且剩余磁化降低。另外,当Nd_{1.1}T₄B₄相的含量为多于50质量%时,剩余磁化不降低,且剩余磁化和矫顽力都未降低。

[0077] 基于这些实验结果,晶界相中(R1Rh)_{1.1}T₄B₄相的含量限定为多于0质量%且50质量%或更少。

[0078] [验证在同时进行老化处理和改性合金扩散和浸透处理时的效果的实验,及其结果]

[0079] 本发明人进行了验证在同时进行老化处理和改性合金扩散和浸透处理时的效果的实验。

[0080] (实施例6和7)

[0081] 在单辊炉(a=0,0.04)中制备具有由Nd_{28.9}Pr_{0.4}Fe_ba₁B_{0.96+a}Ga_{0.4}Al_{0.1}Cu_{0.1}表示的组成的液体快速固化条。在这种情况下,当a=0时,B含量为0.96%,且Nd_{1.1}Fe₄B₄含量为0%;当a=0.4时,B含量为1.00%,且Nd_{1.1}Fe₄B₄含量为14.3%。接着,将所得快速固化条烧结以制备烧结体(烧结温度:650℃;400MPa),并在烧结体上进行高形变(加工温度:750℃;加工程度:75%),由此制备稀土磁体前体。接着,根据“方法A”在所得稀土磁体前体上进行热处理使得3.5质量%Nd-Cu合金扩散和浸透到其中(作为改性改进,使用Nd₇₀Cu₃₀合金)。

[0082] 此处,“方法A”指其中同时进行老化处理和改性合金的扩散和浸透处理的方法。在该方法中,将稀土磁体前体切成具有1mm×1mm×1mm的尺寸的块,并使用VSM和TPM评估其磁性能。然后,在3.5质量%Nd-Cu合金与该块的表面接触的状态下,将块放入高温炉中,并在10⁻³Pa的气氛中在580℃下保持300分钟以后萃取,然后再次评估其磁性能。

[0083] (对比例8和9)

[0084] 在单辊炉(a=0,0.04,0.20)中制备具有由Nd_{28.9}Pr_{0.4}Fe_ba₁B_{0.96+a}Ga_{0.4}Al_{0.1}Cu_{0.1}表示的组成的液体快速固化条。在这种情况下,当a=0时,B含量为0.96%,且Nd_{1.1}Fe₄B₄含量为0%;当a=0.4时,B含量为1.00%,且Nd_{1.1}Fe₄B₄含量为14.3%;当a=0.20时,B含量为1.16%,且Nd_{1.1}Fe₄B₄含量为71.5%。接着,将所得快速固化条烧结以制备烧结体(烧结温度:650℃;400MPa),并在烧结体上进行高形变(加工温度:750℃;加工程度:75%),由此制备稀土磁体前体。接着,根据“方法B”在所得稀土磁体前体上进行热处理使得3.5质量%Nd-Cu合金扩散和浸透到其中(作为改性改进,使用Nd₇₀Cu₃₀合金)。

[0085] 此处,“方法B”指其中老化处理和改性合金的扩散和浸透处理不同时进行的方法。在该方法中,将稀土磁体前体切成具有1mm×1mm×1mm的尺寸的块,并使用VSM和TPM评估其磁性能。然后,将块放入高温炉中,并在10⁻³Pa的气氛中在580℃下保持30分钟以进行老化处

理以后萃取。接着,在3.5质量%Nd-Cu合金与经受老化处理的块的表面接触的状态下,将块再次放入高温炉中并在 10^{-3} Pa的气氛中在580℃下保持300分钟以后萃取,然后再次评估其磁性能。

[0086] (实验结果)

[0087] 图9和10分别为阐述在其中老化处理以及改性合金的扩散和浸透处理同时进行的情况以及其中上述处理不同时进行的情况下,热处理以后的磁化变化和矫顽力变化的图。另外,图11和12分别为阐述在其中老化处理以及改性合金的扩散和浸透处理同时进行,同时改变硼含量(B含量)的情况以及其中上述处理不同时进行,同时改变硼含量(B含量)的情况下,热处理以后的磁化变化和矫顽力变化的图。

[0088] 首先,从图9和10中证明,与其中上述处理不同时进行的对比例8和9的那些相比,在其中老化处理和改性合金的扩散和浸透处理同时进行的实施例6和7中,剩余磁化的降低明显降至约1/5至1/4,且矫顽力提高约50%。

[0089] 另外,从图11和12中证明,与其中以上处理分别进行的方法或者其中仅进行改性合金的扩散和浸透的方法的那些相比,在其中老化处理和改性合金的扩散和浸透处理同时进行的方法中,通过热处理抑制剩余磁化降低的效果是更高的且改进矫顽力的效果是更高的。

[0090] 图13为阐述取决于硼含量(B含量)的变化,热处理期间的磁化和矫顽力变化的图。在该实验中,主相的含量为95质量%,且晶界相的含量为5质量%。

[0091] 从图13中发现,当B含量为0.95质量%至1.05质量%时,矫顽力和剩余磁化都通过老化处理提高。当B含量为少于0.95质量%时,磁性能由于软磁性 Nd_2Fe_{17} 的出现而降低,当B含量为多于1.05质量%时,磁性能由于过大量的 $Nd_{1.1}Fe_4B_4$ 也降低。

[0092] 通过同时进行老化处理和改性合金的扩散和浸透处理而改进矫顽力并抑制磁化的降低的原因认为如下:晶粒的粗化由于短加热历史而被抑制;并且当Nd-Cu合金在热处理以前的晶界相不完全的状态下(在富Fe状态下)浸透时,Nd浓度梯度是大的,因此Nd-Cu合金容易浸透。

[0093] 上文参考图描述了本发明的实施方案。然而,具体构型不限于该实施方案,且在不偏离本发明范畴的范围内做出的设计改变等包括在本发明中。

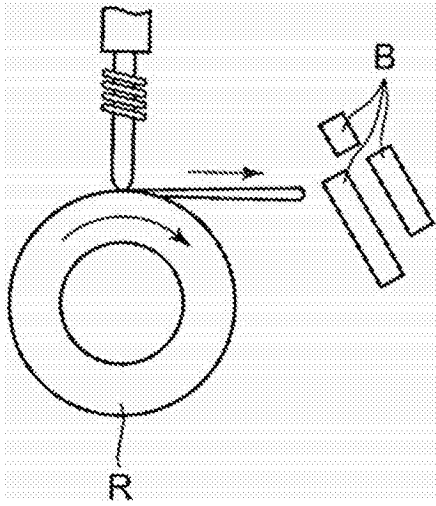


图1A

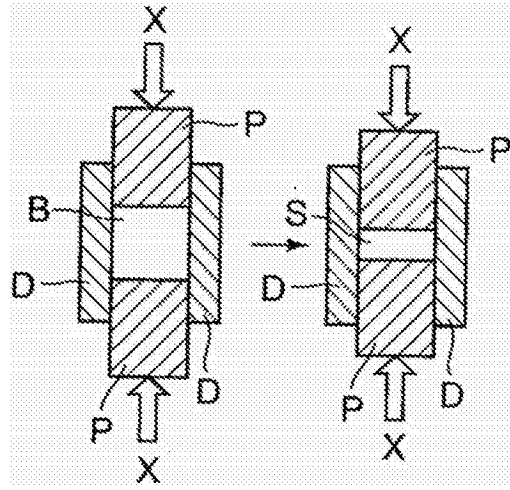


图1B

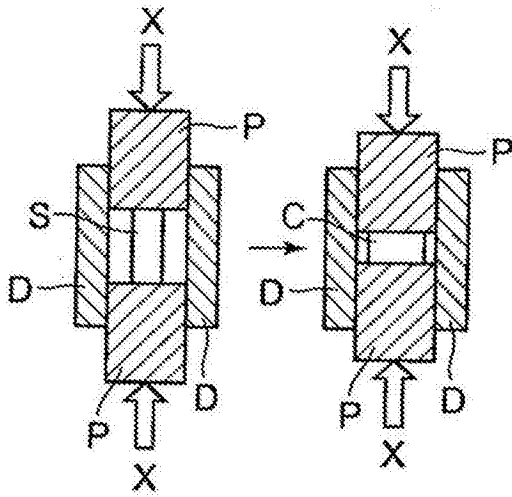


图1C

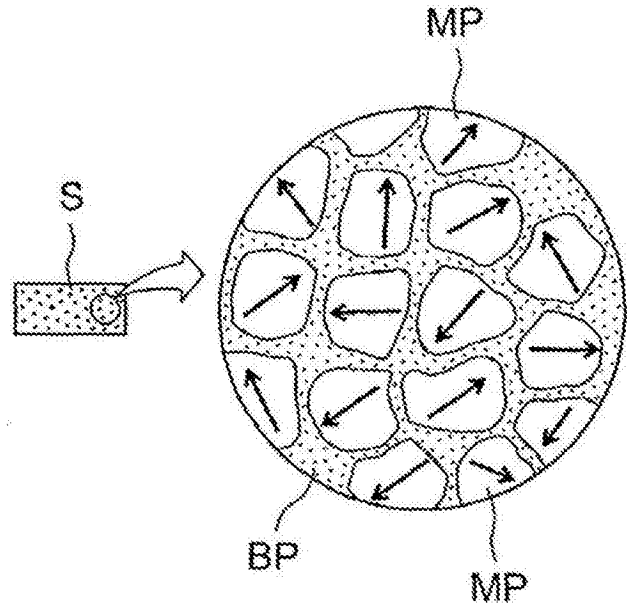


图2A

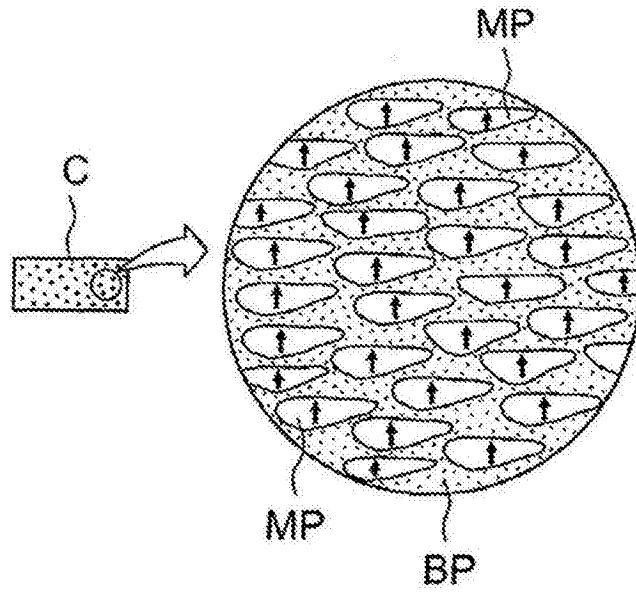


图2B

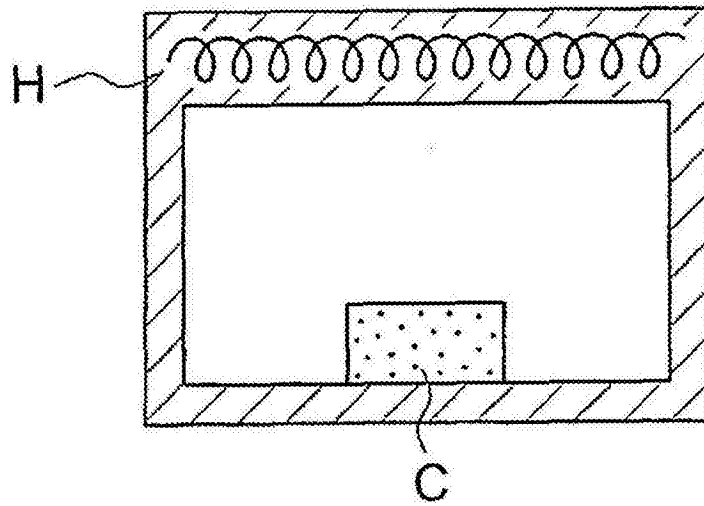


图3A

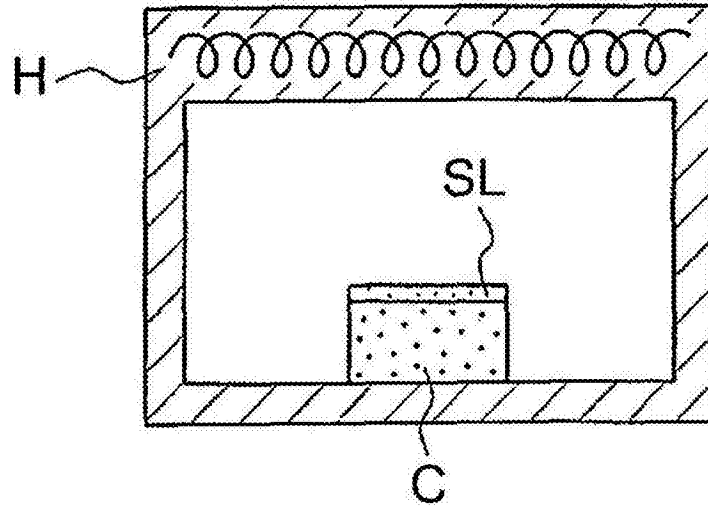


图3B

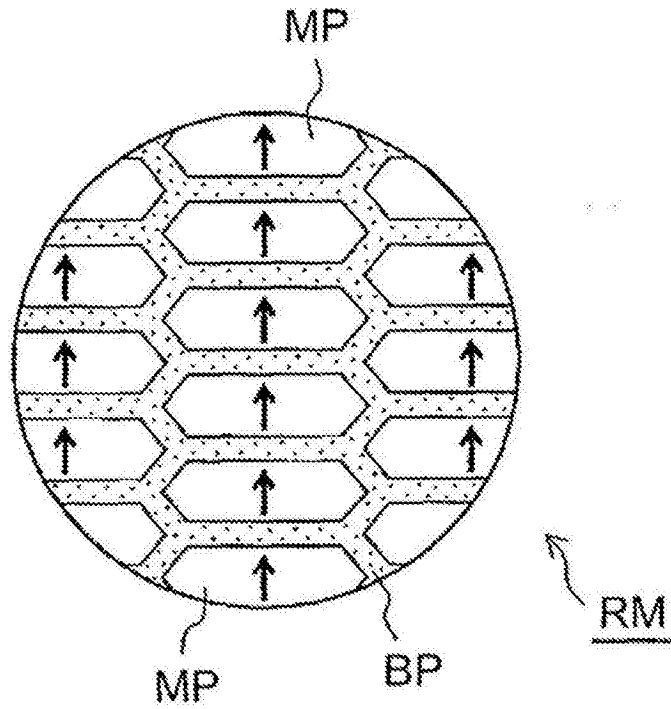


图4

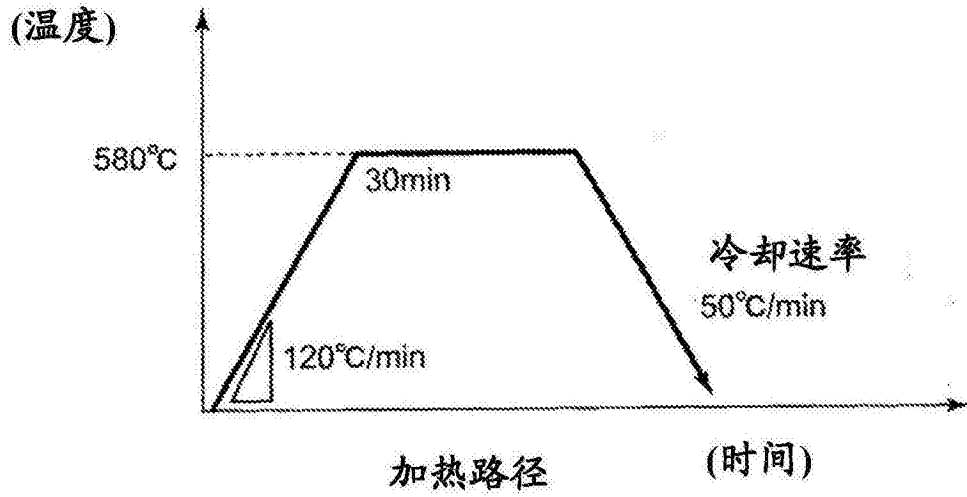


图5

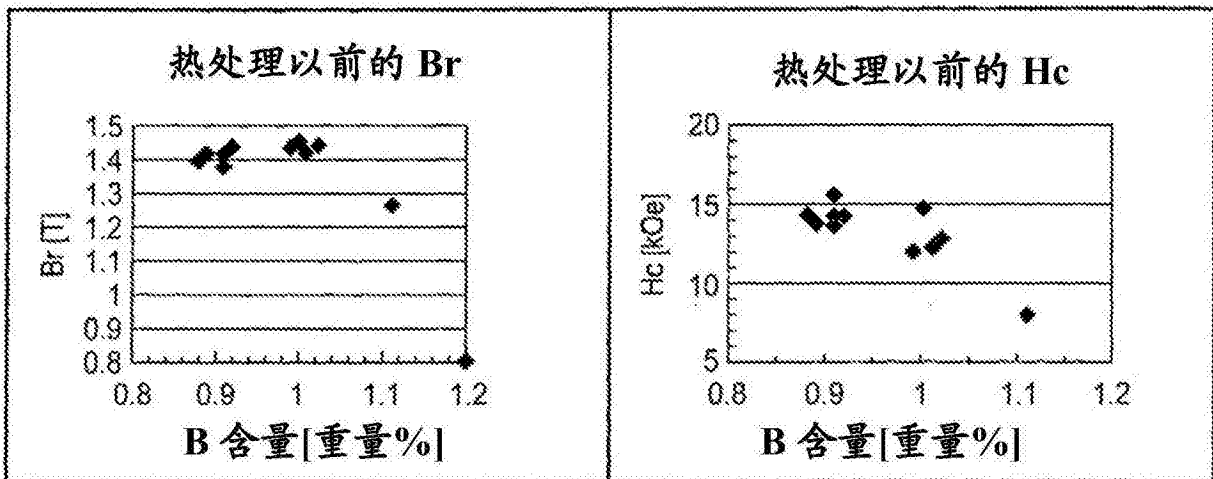


图6

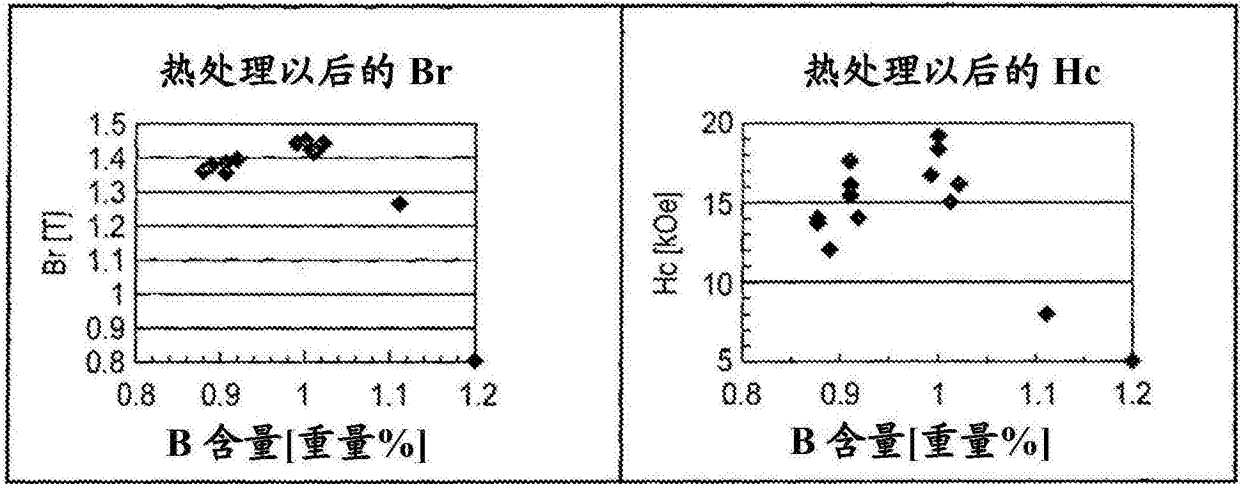


图7

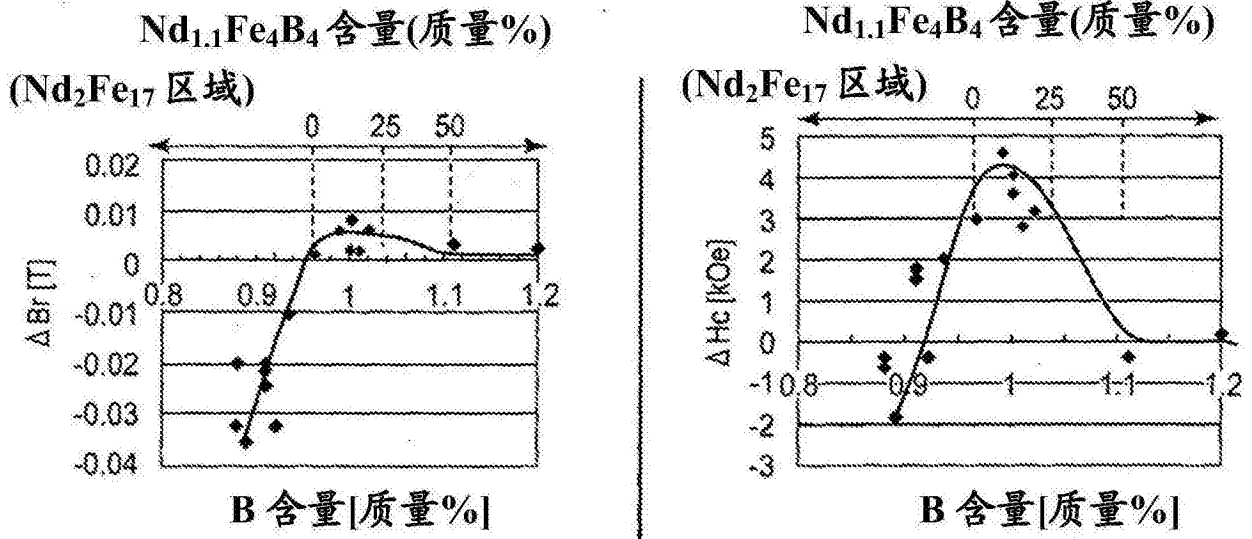


图8

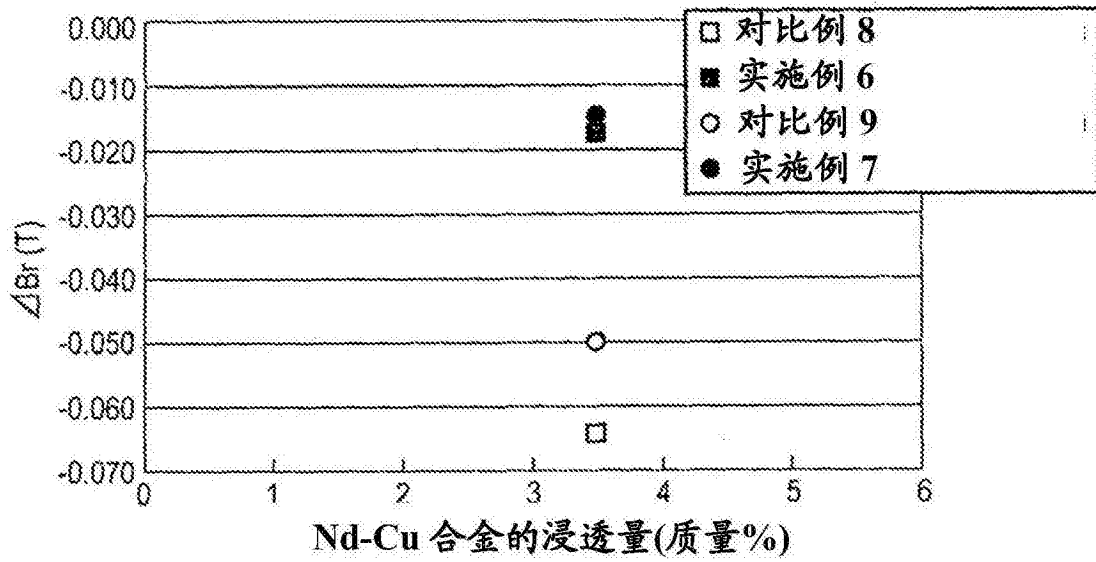


图9

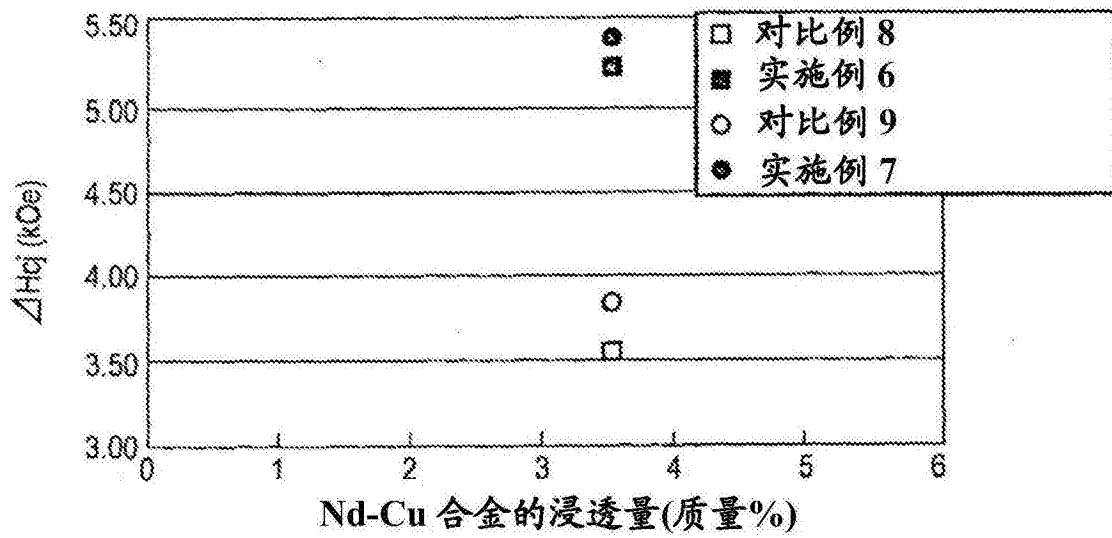


图10

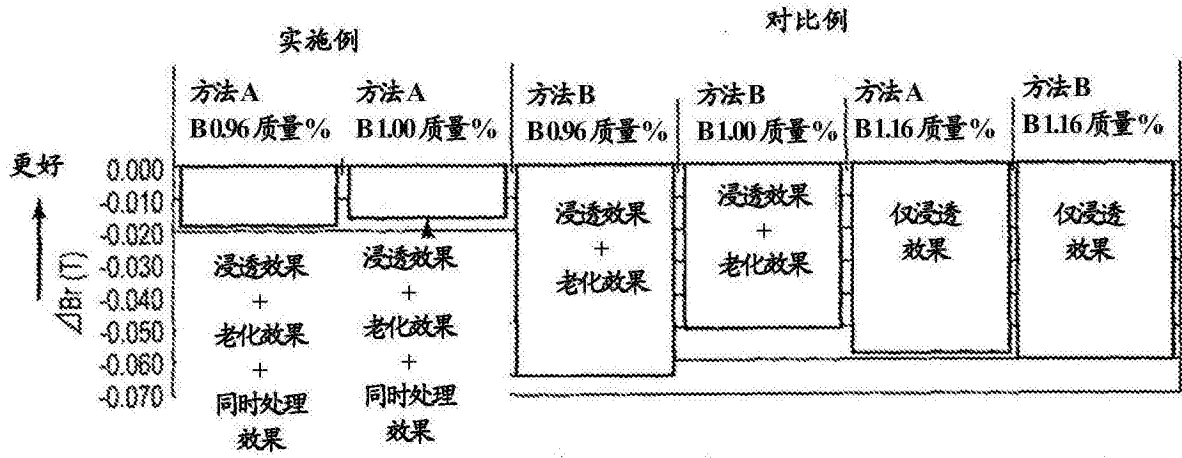


图11

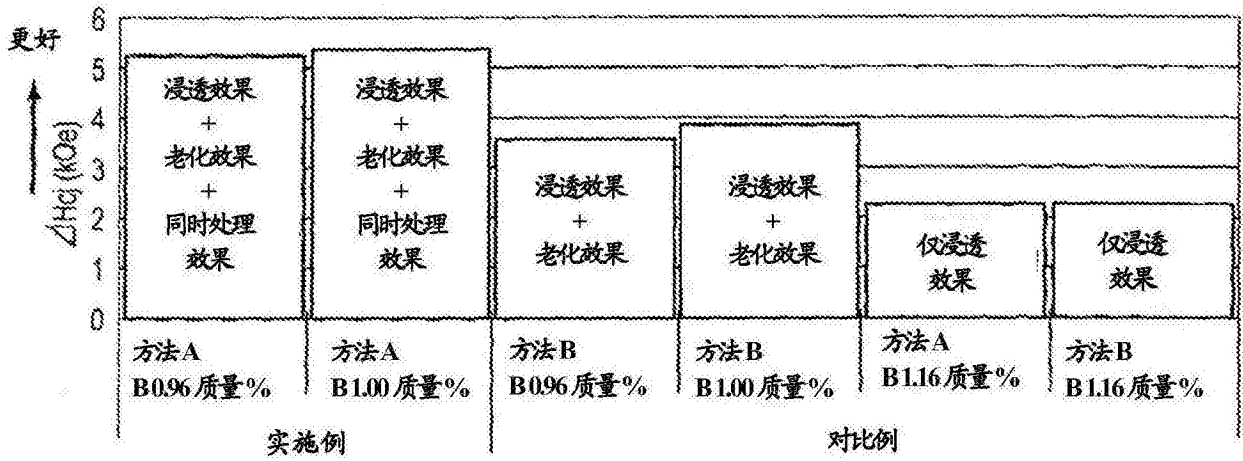


图12

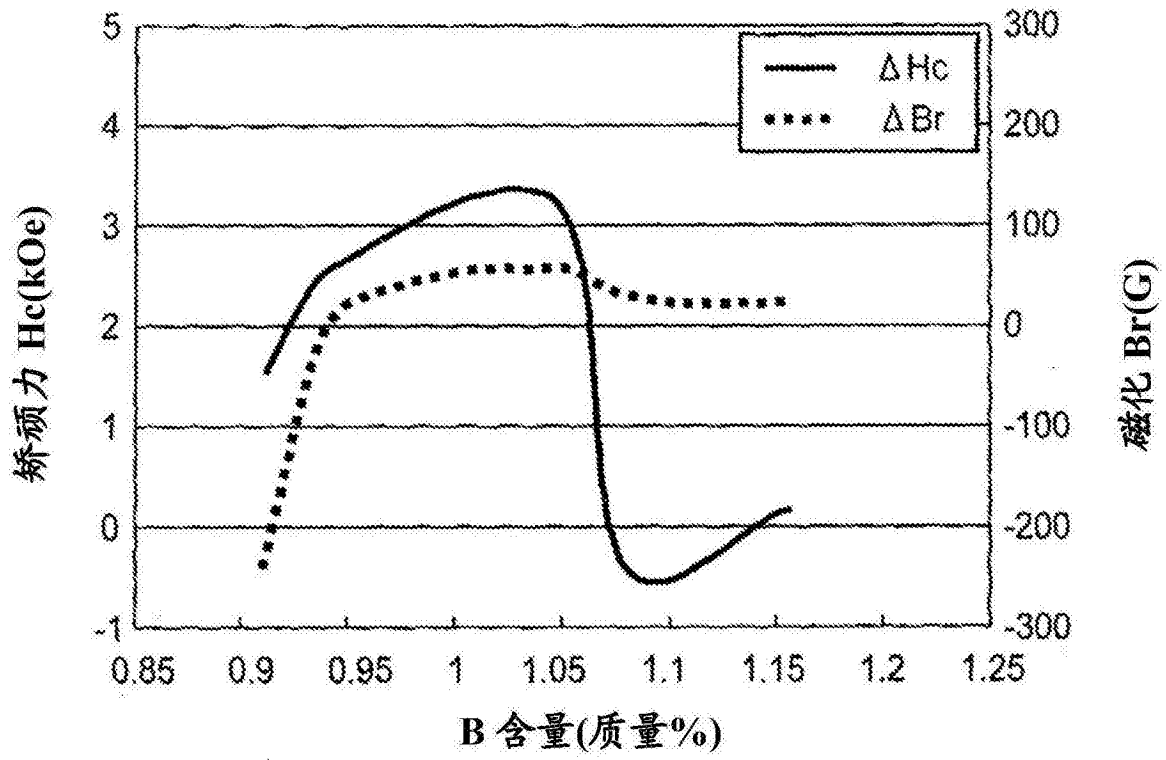


图13