

(21)申請案號：100113033

(22)申請日：中華民國 100 (2011) 年 04 月 14 日

(51)Int. Cl. : **H01F1/053 (2006.01)**
C22C1/05 (2006.01)

H01F1/08 (2006.01)

(30)優先權：2010/04/15 日本
2011/02/22 日本

2010-093875
2011-036281

(71)申請人：住友電氣工業股份有限公司 (日本) SUMITOMO ELECTRIC INDUSTRIES, LTD.
(JP)
日本

(72)發明人：前田徹 MAEDA, TORU (JP)；渡邊麻子 WATANABE, ASAKO (JP)

(74)代理人：陳長文

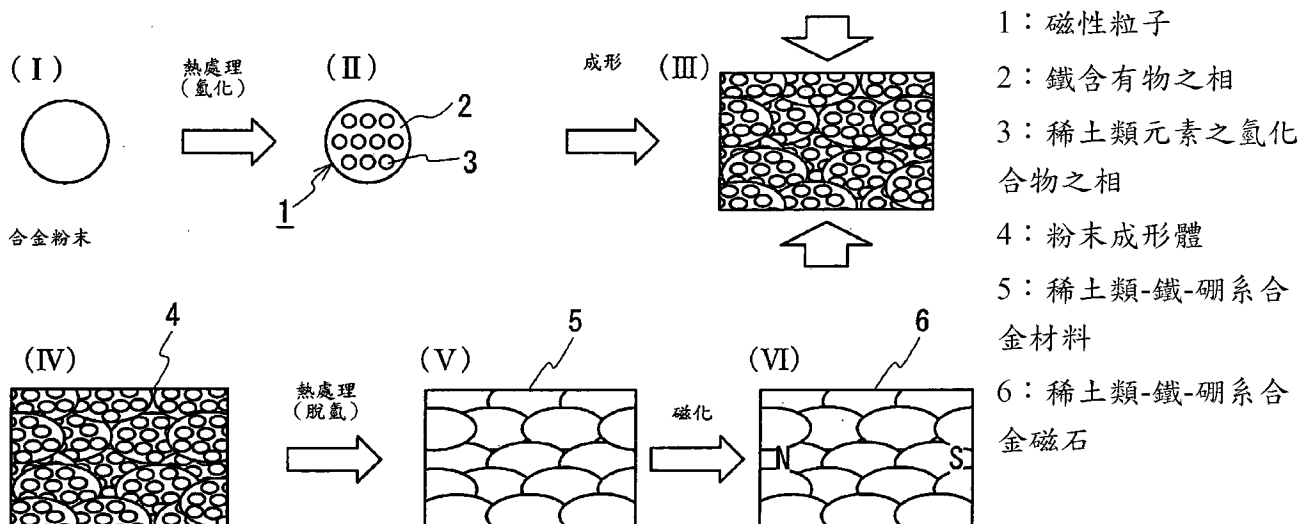
申請實體審查：無 申請專利範圍項數：12 項 圖式數：1 共 38 頁

(54)名稱

磁石用粉末

(57)摘要

本發明提供一種可獲得磁特性優異之稀土類磁石且成形性優異之磁石用粉末及其製造方法、粉末成形體、稀土類-鐵-硼系合金材料。構成磁石用粉末之磁性粒子 1 具有稀土類元素之氮化合物之相 3 之粒子分散存在於鐵含有物之相 2 中的組織。藉由使鐵含有物之相 2 均勻地存在於磁性粒子 1 中，該粉末之成形性優異，易提高粉末成形體 4 之密度。該磁石用粉末係藉由如下方式獲得：於氮氣環境中於 R-Fe-B 系合金之不均化溫度以上之溫度對稀土類-鐵-硼系合金(R-Fe-B 系合金)之粉末進行熱處理而將稀土類元素與鐵含有物分離，且生成稀土類元素之氮化合物。對該磁石用粉末進行壓縮成形而獲得粉末成形體 4，於真空中對該粉末成形體 4 進行熱處理而獲得 R-Fe-B 系合金材料 5，將 R-Fe-B 系合金材料 5 磁化而獲得 R-Fe-B 系合金磁石 6。



(21)申請案號：100113033

(22)申請日：中華民國 100 (2011) 年 04 月 14 日

(51)Int. Cl. : **H01F1/053 (2006.01)**
C22C1/05 (2006.01)

H01F1/08 (2006.01)

(30)優先權：2010/04/15 日本
2011/02/22 日本

2010-093875
2011-036281

(71)申請人：住友電氣工業股份有限公司 (日本) SUMITOMO ELECTRIC INDUSTRIES, LTD.
(JP)
日本

(72)發明人：前田徹 MAEDA, TORU (JP)；渡邊麻子 WATANABE, ASAKO (JP)

(74)代理人：陳長文

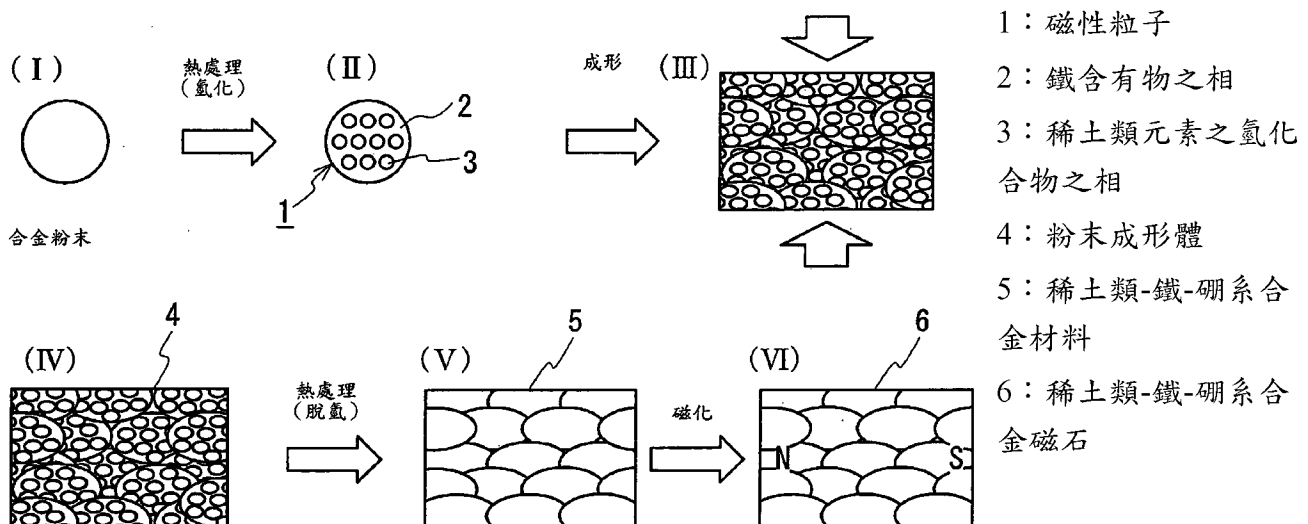
申請實體審查：無 申請專利範圍項數：12 項 圖式數：1 共 38 頁

(54)名稱

磁石用粉末

(57)摘要

本發明提供一種可獲得磁特性優異之稀土類磁石且成形性優異之磁石用粉末及其製造方法、粉末成形體、稀土類-鐵-硼系合金材料。構成磁石用粉末之磁性粒子 1 具有稀土類元素之氮化合物之相 3 之粒子分散存在於鐵含有物之相 2 中的組織。藉由使鐵含有物之相 2 均勻地存在於磁性粒子 1 中，該粉末之成形性優異，易提高粉末成形體 4 之密度。該磁石用粉末係藉由如下方式獲得：於氮氣環境中於 R-Fe-B 系合金之不均化溫度以上之溫度對稀土類-鐵-硼系合金(R-Fe-B 系合金)之粉末進行熱處理而將稀土類元素與鐵含有物分離，且生成稀土類元素之氮化合物。對該磁石用粉末進行壓縮成形而獲得粉末成形體 4，於真空中對該粉末成形體 4 進行熱處理而獲得 R-Fe-B 系合金材料 5，將 R-Fe-B 系合金材料 5 磁化而獲得 R-Fe-B 系合金磁石 6。



六、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明係關於一種用於稀土類-鐵-硼系磁石之原料的磁石用粉末及其製造方法、由該粉末而獲得之粉末成形體、稀土類-鐵-硼系合金材料及其製造方法。尤其關於一種可形成成形性優異且相對密度較高之粉末成形體之磁石用粉末。

【先前技術】

作為用於馬達或發電機等之永久磁石，現廣泛採用稀土類磁石。稀土類磁石之代表例為包含Nd(釹)-Fe-B之類的R-Fe-B系合金(R：稀土類元素、Fe：鐵、B：硼)之燒結磁石或黏接磁石。

燒結磁石係藉由將包含R-Fe-B系合金之粉末壓縮成形後進行燒結而製造，黏接磁石係藉由對將包含R-Fe-B系合金之合金粉末與結合樹脂混合而成之混合物進行壓縮成形、或射出成形而製造。尤其對於用於黏接磁石之粉末，為了提高保磁力而實施HDDR處理(Hydrogenation-Disproportionation-Desorption-Recombination，HD：氫化及不均化，DR：脫氫及重組)。

燒結磁石雖然因磁性相之比率較高而磁石特性優異，但形狀之自由度較小，難以成形為例如圓筒狀或圓柱狀、罐形狀(有底筒形狀)之類的複雜形狀，於為複雜形狀之情形時，需切割燒結材料。另一方面，黏接磁石雖然形狀之自由度高，但磁石特性遜於燒結磁石。相對於此，專利文獻

1中揭示有如下情況，將包含Nd-Fe-B系合金之合金粉末製成微細粉末，對該合金粉末進行壓縮成形，並對所獲得之壓粉體(粉末成形體)實施HDDR處理，藉由可獲得形狀之自由度提高且磁石特性優異之磁石。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

[專利文獻1]日本專利特開2009-123968號公報

【發明內容】

[發明所欲解決之問題]

如上所述，燒結磁石雖然磁石特性優異，但形狀之自由度較小，黏接磁石雖然形狀之自由度較高，但因存在黏合樹脂故而磁性相之比率至多80體積%左右，難以提高磁性相之比率。因此，業界期待開發出一種磁性相之比率較高且即使為複雜形狀亦可容易地製造之稀土類磁石用原料。

如專利文獻1所揭示之包含Nd-Fe-B系合金之合金粉末或對該合金粉末實施HDDR處理而獲得之粉末，其構成粉末之粒子本身之硬度較高，難以變形。因此，為了獲得不進行燒結而磁性相之比率較高之稀土類磁石，若藉由對相對密度較高之粉末成形體進行壓縮成形來獲得，則需要相對較大之壓力。尤其是，若將構成合金粉末之粒子製成粗大粒子，則需要更大壓力。因此，期待開發出一種易成形相對密度較高之粉末成形體的原料。

又，若如專利文獻1所示對壓粉體實施HDDR處理，則於該處理時壓粉體會膨脹收縮，而有所獲得之磁石用多孔質

體發生崩散之虞。因此，期待開發出一種可獲得製造過程中不易崩散，具備充分之強度，且磁特性優異之稀土類磁石的原料或製造方法。

因此，本發明之目的之一在於提供一種磁石用粉末，其可獲得成形性優異且相對密度較高之粉末成形體。又，本發明之另一目的在於提供上述磁石用粉末之製造方法。

進而，本發明之又一目的在於提供適合於包含磁特性優異之稀土類-鐵-硼系合金之稀土類磁石之原料的粉末成形體、稀土類-鐵-硼系合金材料及其製造方法。

[解決問題之技術手段]

本發明者為了不進行燒結而獲得稀土類磁石之磁性相之比率提高、磁石特性優異之磁石，對利用粉末成形體而非如黏接磁石般利用黏合樹脂進行成形之情況進行了研究。如上所述，先前之原料粉末、即包含Nd-Fe-B系合金之合金粉末、或對該合金粉末實施HDDR處理而獲得之處理粉末較硬且變形能力小，壓縮成形時之成形性差，難以提高粉末成形體之密度。因此，本發明者等人為了提高成形性而進行了各種研究，結果獲得以下知識見解：若不形成如稀土類-鐵-硼系合金般之化合物之狀態、即稀土類元素與鐵鍵結之狀態，而形成稀土類元素不與鐵鍵結、即鐵成分或鐵-硼合金成分獨立於稀土類元素而存在之組織之粉末，則可獲得變形能力較高、成形性優異且相對密度較高之粉末成形體。又，獲得如下知識見解：具有上述特定組織之粉末可藉由對包含稀土類-鐵-硼系合金之合金粉末實

施特定之熱處理而製造。並且獲得如下知識見解：藉由對所獲得之粉末進行壓縮成形後，對粉末成形體實施特定之熱處理，可獲得與對壓粉體實施HDDR處理之情形、或使用經HDDR處理之處理粉末而製作成形體之情形相同之稀土類-鐵-硼系合金材料，尤其是藉由使用由相對密度較高之粉末成形體而獲得之稀土類-鐵-硼系合金材料，可獲得磁性相之比率較高、磁特性優異之稀土類磁石，具體為稀土類-鐵-硼系合金磁石。本發明係基於上述知識見解而成者。

本發明之磁石用粉末係用於稀土類磁石之粉末，構成該磁石用粉末之各磁性粒子係由未達40體積%之稀土類元素之氫化合物及剩餘為鐵含有物所構成。上述鐵含有物含有鐵、含有鐵及硼之鐵-硼合金。於上述各磁性粒子中，上述稀土類元素之氫化合物之相與上述鐵含有物之相係鄰接存在，以上述鐵含有物之相為介隔而相鄰之上述稀土類元素之氫化合物之相間的間距為3 μm 以下。

上述本發明之磁石用粉末可藉由以下之本發明之磁石用粉末之製造方法而製造。該製造方法係製造用於稀土類磁石之磁石用粉末的方法，其具備以下之準備步驟與氫化步驟，係製造構成上述磁石用粉末之各磁性粒子包含未達40體積%之稀土類之氫化合物及剩餘為鐵含有物，上述鐵含有物含有鐵、含有鐵及硼之鐵-硼合金，上述稀土類元素之氫化合物之相與上述鐵含有物之相鄰接存在，且以上述鐵含有物之相為介隔而相鄰之上述稀土類元素之氫化合物

之相間的間距為3 μm 以下的磁石用粉末。

準備步驟：準備包含稀土類-鐵-硼系合金之合金粉末的步驟。

氫化步驟：於含有氫元素之環境中，於上述稀土類-鐵-硼系合金之不均化溫度以上之溫度對上述合金粉末進行熱處理而製造上述磁石用粉末的步驟。

構成本發明之磁石用粉末之各磁性粒子並非如R-Fe-B系合金或R-Fe-N系合金般由單一相之稀土類合金所構成，而是由鐵含有物之相與包含稀土類元素之氫化合物之相之複數相所構成。上述鐵含有物之相與上述R-Fe-B系合金或R-Fe-N系合金、上述稀土類元素之氫化合物相比，更為柔軟且富於成形性。又，構成本發明之磁石用粉末之各磁性粒子藉由以含有鐵之鐵含有物作為主要成分(60體積%以上)，於對本發明之磁石用粉末進行壓縮成形時，該磁性粒子中之鐵含有物之相可充分地變形。進而，上述鐵含有物之相如上所述存在於稀土類元素之氫化合物之相間，即鐵含有物之相均勻地存在於構成上述粉末之各磁性粒子中，因此壓縮成形時，各磁性粒子均勻地進行變形。基於上述情況，藉由使用本發明之磁石用粉末，可成形相對密度較高之粉末成形體(本發明之之粉末成形體)。又，藉由利用此種相對密度較高之粉末成形體，可不進行燒結，而獲得磁性相比比例較高之稀土類-鐵-硼系合金材料(本發明之稀土類-鐵-硼系合金材料)，利用此種稀土類-鐵-硼系合金材料，可獲得磁性相比比例較高之稀土類磁石。進而，藉由

使鐵含有物充分地變形，使磁性粒子間互相咬合而結合，因此可在並非如黏合樹脂般以黏接磁石為介隔之情況下獲得磁性相之比率為80體積%以上，較佳為90體積%以上之稀土類磁石。

並且，對本發明之磁石用粉末進行壓縮成形而獲得之粉末成形體並未如燒結磁石般進行燒結，因此，不存在因燒結時產生之收縮異向性引起的形狀制約，形狀自由度較大。因此，藉由使用本發明之磁石用粉末，即使為例如圓筒狀或圓柱狀、罐形狀之類的複雜形狀，亦可在不實質性地進行切割加工之情況下飛躍性地提昇原料之良率，或提昇稀土類磁石之生產性。

進而，上述之本發明之磁石用粉末可如上述般藉由於含有氫元素之環境中，於特定溫度對稀土類-鐵-硼系合金之粉末進行熱處理而容易地製造。

而且，上述本發明之磁石用粉末由於如上述般成形性優異，故而可製成相對粗大之粉末，原料粉末亦可利用100 μm 左右之粗大粉末。因此，於製造本發明之磁石用粉末時，例如可利用對熔接鑄造錠塊僅進行平均粒徑為100 μm 左右之粗粉碎而製成之粉末、或藉由霧化法(例如，溶液噴霧法)所製成之粉末作為原料粉末。此處，對於燒結磁石與黏接磁石中，形成燒結前之成形體之原料粉末或與樹脂混合之原料粉末係利用10 μm 以下之微粒者。本發明之磁石用粉末藉由使用上述粗大粉末作為原料，無需用於將原料粉末製成10 μm 以下之微粒的微粉碎步驟，藉由製造

步驟之縮短等可實現製造成本之降低。

[發明之效果]

本發明之磁石用粉末可獲得成形性優異、相對密度較高之本發明之粉末成形體。藉由使用此種本發明之粉末成形體或本發明之稀土類-鐵-硼系合金材料，可獲得磁性相之比率較高之稀土類磁石。本發明之磁石用粉末之製造方法、本發明之稀土類-鐵-硼系合金材料之製造方法可生產性良好地製造上述本發明之磁石用粉末、上述本發明之稀土類-鐵-硼系合金材料。

【實施方式】

以下，更詳細地說明本發明。

[磁石用粉末]

構成本發明之磁石用粉末之各磁性粒子係以鐵含有物作為主要成分，其含量為60體積%以上。若鐵含量未達60體積%，則硬質之稀土類元素之氫化合物相對增多，壓縮成形時難以使鐵含有物成分充分地變形；若過多，則會引起磁特性之降低，故而較佳為90體積%以下。

上述鐵含有物係含有鐵與鐵-硼合金者。鐵-硼合金例如可列舉 Fe_3B 。除含有鐵-硼合金以外，藉由含有純鐵(Fe)，可使成形性優異。鐵-硼合金之含量於將鐵含量設為100%時，以質量比例計較佳為10%~40%。若鐵-硼合金之含量為10質量%以上，則鐵單相之析出減少，容易抑制因鐵單相較多引起之磁特性下降，若為40質量%以下，則成形性優異。鐵含有物中之鐵與鐵-硼合金之比例係例如藉由測

定X射線繞射之波峰強度(波峰面積)，並對所測得之波峰強度進行比較而球隊。此外，鐵含有物可形成將鐵之一部分置換為選自Co、Ga、Cu、Al、Si、及Nb中之至少一種元素的形態。鐵含有物含有上述元素之形態可提高稀土類磁石之磁特性或耐腐蝕性。

另一方面，上述磁性粒子，若不含有稀土類元素之氫化合物，則無法獲得稀土類磁石，因此其含量設為超過0體積%，較佳為10體積%以上、未達40體積%。鐵含有物或稀土類元素之氫化合物之含量、鐵與鐵-硼合金之比率可藉由適宜改變成為該粉末之原料之稀土類-鐵-硼系合金的組成或製造該粉末時之熱處理條件(主要為溫度)而調整。再者，構成上述磁石用粉末之各磁性粒子容許含有不可避免之雜質。

構成本發明之磁石用粉末之各磁性粒子中所含有之稀土類元素係採用選自Sc(釷)、Y(鈮)、鏷及鈳中之一種以上之元素。尤佳為含有選自Nd、Pr、Ce、Dy及Y中至少一種元素，尤其是Nd(釹)可獲得磁特性優異之R-Fe-B系合金磁石，故而較佳。稀土類元素之氫化合物例如可列舉NdH₂、DyH₂。

構成本發明之磁石用粉末之各磁性粒子具有上述稀土類元素之氫化合物之相與鐵含有物之相如上述般以特定介隔存在之組織，即，具有兩相均勻地離散而存在之組織。作為代表例，可列舉：上述兩相成為多層構造之層狀形態；上述稀土類元素之氫化合物之相為粒狀，以上述鐵含有物

之相作為母相，上述粒狀之稀土類元素之氫化合物分散存在於該母相中的分散形態。

上述兩相之存在形態取決於製造本發明之磁石用粉末時之熱處理條件(主要為溫度)，若提高上述溫度則成為分散形態，若將上述溫度設為不均化溫度附近，則有成為層狀形態之傾向。

藉由使用上述層狀形態之粉末，可不使用黏合樹脂，而獲得例如磁性相之比率與黏接磁石為同程度(80體積%左右)之稀土類磁石。再者，於上述層狀形態之情形時，所謂稀土類元素之氫化合物之相與鐵含有物之相鄰接，係指於取得構成磁石用粉末之磁性粒子之剖面時，各相實質上交替積層之狀態。又，於上述層狀形態之情形時，所謂相鄰稀土類元素之氫化合物之相間的間距，係指於上述剖面上以鐵含有物之相為介隔而相鄰之兩個上述稀土類元素之氫化合物之相之中心間的距離。

上述分散形態藉由使包含上述稀土類元素之氫化合物的粒子之周圍均勻地存在鐵含有物，較上述層狀形態更易使鐵含有成分變形，例如容易獲得圓筒狀、圓柱狀、罐形狀之類的複雜形狀之粉末成形體，或相對密度為85%以上、尤其為90%以上之高密度之粉末成形體。於上述分散形態之情形時，所謂稀土類元素之氫化合物之相與鐵含有物之相鄰接，代表例為於取得構成磁石用粉末之磁性粒子之剖面時，鐵含有物以覆蓋上述稀土類元素之氫化合物之粒子之周圍的方式存在，且鐵含有物存在於相鄰之上述各稀土

類元素之氮化合物之粒子間的狀態。又，於上述分散形態之情形時，所謂相鄰稀土類元素之氮化合物之相間の間距，係指於上述剖面上相鄰之兩個上述稀土類元素之氮化合物之粒子之中心間的距离。

上述間距之測定例如可藉由對上述剖面進行蝕刻而除去鐵含有物之相並萃取上述稀土類元素之氮化合物，或根據溶液之種類除去稀土類元素之氮化合物並萃取上述鐵含有物，或利用EDX(能量分散型X射線光譜法)對上述剖面裝置進行組成分析而測定。藉由使上述間距為3 μm 以下，於對使用該粉末之粉末成形體實施適當之熱處理，使鐵含有物與稀土類元素之氮化合物之混合組織轉化為稀土類-鐵-硼系合金而形成稀土類-鐵-硼系合金材料之情形時，無需投入過度之能量即可完成，可抑制因稀土類-鐵-硼系合金之結晶之粗大化引起的特性降低。為了使鐵含有物充分地存在於上述稀土類元素之氮化合物之相間，上述間隔較佳為0.5 μm 以上，尤佳為1 μm 以上。上述間隔可藉由調整於原料所使用之稀土類-鐵-硼系合金粉末之組成，或將製造磁石用粉末時之熱處理條件、尤其是溫度設為特定範圍而調整。例如，於上述稀土類-鐵-硼系合金粉末中，若增加鐵或硼之比率(原子比)，或於上述特定之範圍內增高上述熱處理(氮化)時之溫度，則有上述間隔增大之傾向。

構成本發明之磁石用粉末之磁性粒子之平均粒徑較佳為10 μm 以上、500 μm 以下。藉由使該平均粒徑成為10 μm 以上之相對較大值，可相對減少稀土類元素之氮化合物於各

磁性粒子之表面上所佔之比例。此處，稀土類元素一般易氧化。但是，滿足上述平均粒徑之粉末因上述佔有率較小而不易氧化，可於大氣中使用。因此，例如可將粉末成形體於大氣中進行成形，粉末成形體之生產性優異。又，本發明之磁石用粉末藉由如上述般含有鐵含有物之相而成形性優異，例如即使為平均粒徑為100 μm 以上之粗大粉末，亦可形成氣孔少、相對密度較高之粉末成形體。其中，若平均粒徑過大，則會引起粉末成形體之相對密度之降低，故而較佳為500 μm 以下。上述平均粒徑更佳為50 μm 以上、200 μm 以下。

進而，上述本發明之磁石用粉末可製成於各磁性粒子之外周具備包含絕緣材料之絕緣被覆層的形態。藉由使用具備絕緣被覆之粉末，可獲得電阻較大之稀土類磁石，例如於將該磁石用於馬達之情形時，可降低渦流損耗。作為絕緣被覆層，例如可列舉：Si、Al、Ti等之氧化物之結晶性覆膜或非晶質之玻璃覆膜、Me-Fe-O(Me=Ba、Sr、Ni、Mn等金屬元素)之鐵氧體或磁鐵礦(Fe_3O_4)、 Dy_2O_3 之類的金屬氧化物、聚矽氧樹脂之類的樹脂、倍半矽氧烷化合物等含有機無機混成化合物之覆膜。上述結晶性覆膜或玻璃質覆膜、氧化物覆膜、陶瓷覆膜等有時具有抗氧化機能，於該情形時，亦可防止磁性粒子之氧化。又，為了提高熱傳導性，亦可施加Si-N、Si-C系之陶瓷被覆層。於製成具備絕緣被覆層等被覆層之粉末之情形時，為了抑制壓縮成形時之被覆層之破損，較期待構成該粉末之各磁性粒子近似

於球形。

關於其他稀土類磁石，例如作為可獲得稀土類-鐵-碳系合金磁石之磁石用粉末，可列舉上述之鐵含有物含有鐵與鐵及碳之鐵-碳合金的形態。該含有鐵-碳合金之粉末亦可與含有上述鐵-硼合金之粉末同樣地藉由將包含稀土類-鐵-碳系合金之合金粉末於含有氫元素之環境中且於該稀土類-鐵-碳系合金之不均化溫度以上之溫度進行熱處理而製造。再者，上述及下述之各項目中之鐵-硼合金與稀土類-鐵-硼系合金之記載可換為鐵-碳合金或稀土類-鐵-碳系合金。稀土類-鐵-碳系合金之代表例可列舉 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{C}$ 。

[磁石用粉末之製造方法]

上述磁石用粉末係藉由如下方式獲得：準備包含稀土類-鐵-硼系合金之合金粉末(例如 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$)，於含有氫元素之環境中對該合金粉末進行熱處理，將上述合金中之稀土類元素與鐵與鐵-硼合金分離，同時將該稀土類元素與氫化合。上述合金粉末例如可將包含稀土類-鐵-硼系合金之熔接鑄造錠塊或藉由急冷凝固法而獲得之箔狀體，利用顎碎機、噴射磨機或球磨機等粉碎裝置進行粉碎，或利用氣霧化法之類的霧化法而製造。尤其於利用氣霧化法之情形時，藉由於非氧化性環境中形成粉末，可製成實質上不含氧之粉末(氧濃度為1000質量ppm以下，較佳為500質量ppm以下)。即，構成合金粉末之磁性粒子中之氧濃度為1000質量ppm以下係可成為表示其為藉由非氧化性環境之氣霧化法所製造之粉末的指標之一。此外，包含上述稀土

類-鐵-硼系合金之合金粉末亦可採用藉由公知之粉末之製造方法而獲得者或對藉由霧化法而製造之粉末進一步粉碎而成者。藉由適當變更粉碎條件與製造條件，可調整磁石用粉末之粒度分佈與磁性粒子之形狀。例如，若利用霧化法，則圓球度較高，易獲得成形時之填充性優異之粉末。構成上述合金粉末之各磁性粒子可為多結晶體，亦可為單結晶體。可對包含多結晶體之磁性粒子實施適宜之熱處理而製成包含單結晶體之粒子。

該準備步驟中所準備之上述合金粉末之大小，於以其後步驟之氫化處理時不實質性地改變大小之方式實施該熱處理之情形時，實質上為本發明之磁石用粉末之大小。本發明之粉末如上所述成形性優異，因此例如可製成平均粒徑為100 μm 左右之相對粗大者。因此，於準備步驟中，上述合金粉末可利用平均粒徑為100 μm 左右者。

上述含有氫元素之環境，可列舉僅有氫(H_2)之單一環境、或氫氣(H_2)與氬氣(Ar)或氮氣(N_2)之類的惰性氣體之混合環境。上述氫化步驟之熱處理時之溫度係設為進行上述稀土類-鐵-硼系合金之不均化反應之溫度、即不均化溫度以上。所謂不均化反應，係指藉由稀土類元素之優先氫化，而分離為稀土類元素之氫化合物與鐵與鐵-硼合金的反應，將該反應產生之下限溫度稱為不均化溫度。上述不均化溫度根據上述合金之組成或稀土類元素之種類而有所不同。例如於稀土類-鐵-硼系合金為 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 之情形時，可列舉650°C以上。若將熱處理時之溫度設為不均化溫度

附近，則可獲得上述層狀形態，若將溫度提高至不均化溫度 + 100°C 以上，則可獲得上述分散形態。越提高上述氫化步驟之熱處理時之溫度，越易出現鐵之相或鐵-硼合金之相，同時析出之硬質之稀土類元素之氫化合物越難成為變形之阻礙因子而可提高粉末之成形性，但若過高，則會發生粉末之熔融黏著等不良情況，因此上述熱處理時之溫度較佳為 1100°C 以下。尤其於上述稀土類-鐵-硼系合金為 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 之情形時，若將上述氫化步驟之熱處理時之溫度設為 750°C 以上、900°C 以下之相對較低溫度，則會形成上述間距較小之微細組織，藉由利用該粉末易獲得保磁力較高之稀土類磁石。保持時間可列舉 0.5 小時以上、5 小時以下。該熱處理相當於上述 HDDR 處理之不均化步驟前之處理，可應用公知之不均化條件。

[粉末成形體]

藉由經過對上述本發明之磁石用粉末進行壓縮成形而成為粉末成形體之成形步驟，獲得本發明之粉末成形體。如上所述，本發明之磁石用粉末於成形性方面優異，因此可形成相對密度(相對於粉末成形體之真密度的實際密度)較高之粉末成形體。例如作為本發明之粉末成形體之一形態，可列舉相對密度為 85% 以上，進而為 90% 以上者。藉由利用此種高密度之粉末成形體，可獲得磁性相之比率較高之稀土類磁石。相對密度越高，磁性相之比率越高，因此不特別設置相對密度之上限。

又，本發明之磁石用粉末於成形性方面優異，因此可相

對減小壓縮成形時之壓力，例如可設為8 ton/cm²以上、15 ton/cm²以下。進而，本發明之磁石用粉末於成形性方面優異，因此即使為複雜形狀之粉末成形體，亦可容易地形成。此外，本發明之磁石用粉末藉由可使構成該粉末之各磁性粒子充分地變形，可獲得磁性粒子間之接合性優異(由磁性粒子表面之凹凸之咬合所產生之強度(所謂頸縮強度)之表現)，強度較大，製造中不易崩散之粉末成形體。

此外，於壓縮成形時，藉由適當加熱成形用模具，可促進變形，變得易獲得高密度之粉末成形體。又，若於壓縮成形時設為非氧化性環境，可防止本發明之磁石用粉末之氧化，故而較佳。

[稀土類-鐵-硼系合金材料及其製造方法]

以不與上述磁性粒子反應且可效率良好地除去氫之方式，於非氫氣環境中進行對上述粉末成形體實施熱處理(脫氫處理)之脫氫步驟，而自上述稀土類元素之氫化合物中除去氫，同時將鐵與鐵-硼合金與除去氫之稀土類元素化合，藉此可獲得本發明之稀土類-鐵-硼系合金材料。作為本發明之稀土類-鐵-硼系合金材料，可列舉如下形態：實質上由稀土類-鐵-硼系合金之相構成之單一形態；實質上由選自鐵相、鐵-硼合金相及稀土類-鐵合金相中之至少一種相與稀土類-鐵-硼系合金之相之組合所構成的混合形態(具備混相之形態)，例如鐵相與稀土類-鐵-硼系合金之相之形態、鐵-硼合金相與稀土類-鐵-硼系合金之相之形態、稀土類-鐵合金相與稀土類-鐵-硼系合金之相之形態。

上述單一形態例如可列舉包含實質上與上述之本發明之磁石用粉末之原料中使用之稀土類-鐵-硼系合金相同之組成者。上述混合形態之代表例根據原料所使用之稀土類-鐵-硼系合金之組成而有所變化，例如若使用鐵之比率(原子比)較高者，則可形成鐵相與稀土類-鐵-硼合金之相之形態。

上述非氫氣環境可列舉惰性環境(例如氫氣或氮氣之類的惰性氣體之環境)或減壓環境(壓力低於標準大氣壓之真空環境)。尤其是減壓環境由於可完全進行稀土類-鐵-硼合金化，不易殘留稀土類元素之氫化合物，獲得具有優異之磁特性之本發明之稀土類-鐵-硼系合金材料，故而較佳。於設為真空環境之情形時，最終真空度較佳為10 Pa以下。

上述脫氫處理時之溫度係設為上述粉末成形體之重組溫度(分離之鐵含有物與稀土類元素化合之溫度)以上。重組溫度根據粉末成形體(構成成形體之磁性粒子)之組成而有所不同，代表例可列舉700℃以上。該溫度越高，越可充分除去氫。其中，若上述脫氫處理時之溫度過高，則蒸汽壓較高之稀土類元素會揮發而減少，或因稀土類-鐵-硼系合金之結晶之粗大化而有稀土類磁石之保磁力降低之虞，因此較佳為1000℃以下。保持時間可列舉10分鐘以上、600分鐘(10小時)以下。該脫氫處理相當於上述HDDR處理之DR處理，可應用公知之DR處理之條件。

上述脫氫步驟之熱處理可於對上述粉末成形體施加4 T

以上之磁場的狀態下進行。

本發明者們獲得以下知識見解：於進行上述脫氫步驟之熱處理之情形時，若一邊對粉末成形體施加強磁場一邊進行處理，則可獲得磁特性之優異之稀土類磁石。認為其原因如下。於僅對上述粉末成形體實施脫氫處理之情形時，構成該粉末成形體之磁性粒子之組織中所產生之包含稀土類-鐵-硼系合金(例如 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$)之初期結晶核因脫氫處理時之加熱溫度為居里點以上，故處於電子之運動方向易受熱擾亂影響而被擾亂之狀態(易成為無規律之狀態)。因此，認為獲得結晶方向無規律之稀土類-鐵-硼系合金材料。但是，於脫氫處理時施加強磁場之情形時，藉由磁場改變初期結晶核中之電子之運動方向，生成向固定方向配向之結晶，而獲得由此種具有固定配向性之結晶所構成之稀土類-鐵-硼系合金材料。而且，以結晶方向一致為一方向之方式配向的稀土類-鐵-硼合金材料與無規律之情形相比，結晶彼此之磁性不易相互抵消，磁特性優異。

此處，通常用於稀土類磁石之磁化(磁化)之磁場為2 T左右。如下述試驗例所示，即使於施加該強度之磁場之狀態下進行脫氫處理，磁特性之相互提高程度亦較小，或未實質性提高。另一方面，藉由於脫氫處理時施加特定強磁場，可獲得磁特性更為優異之稀土類-鐵-硼系合金材料。所施加之磁場越高越好，較佳為4 T以上。

將上述粉末成形體置於惰性環境中或減壓環境中，於施加4 T以上之磁場之狀態下進行熱處理而製造之稀土類-鐵-

硼系合金材料如上所述顯示出固定之配向性。所謂具有固定之配向性，例如可列舉於該稀土類-鐵-硼系合金材料中，於取得上述磁場之施加方向成為法線方向之面之X射線繞射圖案時，結晶面之面間距為0.202 nm至0.204 nm之間所出現之繞射波峰之相對強度滿足70以上。

主要為具有上述特定之面間距之面發生配向之本發明之稀土類-鐵-硼系合金材料於磁特性方面優異。又，存在上述相對強度越高，磁特性越優異之傾向，可列舉相對強度為75以上之形態。再者，上述相對強度於將自上述法線面獲得之波峰強度中之最大波峰強度設為基準強度 I_{max} ，將結晶面之面間距為0.202 nm至0.204 nm之間所出現之繞射波峰之波峰強度設為測定強度 I_x 時，係設為測定強度 I_x 相對於基準強度 I_{max} 的比率 $(I_x/I_{max}) \times 100$ 。

[稀土類磁石]

藉由適當地將上述發明之稀土類-鐵-硼系合金材料磁化，可製造稀土類磁石。尤其是藉由利用上述相對密度較高之粉末成形體，可獲得磁性相之比率為80體積%以上，進而90體積%以上之稀土類磁石。

以下，列舉試驗例，並且一邊參照適當之圖式，一邊說明本發明之更具體之實施形態。再者，於圖式中，為了便於理解而誇張地顯示稀土類元素之氫化合物。

[試驗例1]

製造各種含有稀土類元素、鐵及硼之粉末，對所獲得之粉末進行壓縮成形而調查各粉末之成形性。

上述粉末係按照準備步驟：合金粉末之準備→氫化步驟：於氫氣環境中之熱處理的順序而製作。又，準備對按照上述順序製作之粉末進行絕緣被覆而成者，使用該附帶被覆層之粉末進行壓縮成形，而調查成形性。

首先，準備表1所示之組成(將有效數字以下四捨五入)之稀土類-鐵-硼合金($\text{Nd}_x\text{Fe}_y\text{B}_z$)之錠塊，於氫氣環境中利用超硬合金製乳鉢將該錠塊粉碎而製作平均粒徑為 $100\text{ }\mu\text{m}$ 之合金粉末(圖1(I))。上述平均粒徑係利用雷射繞射式粒度分佈裝置測定累計重量成為50%的粒徑(50%粒徑)。再者，藉由於氫氣之類的非氧化性環境中進行上述粉碎，可有效地防止粉末之氧化。

於氫氣(H_2)環境中，於 $850^\circ\text{C} \times 3$ 小時之條件下對上述合金粉末進行熱處理。於該熱處理(氫化)後，利用環氧樹脂將所獲得之粉末(磁石用粉末)固化，而製作組織觀察用之樣品。以不使上述樣品之內部之粉末氧化之方式，於任意位置切斷或研磨該樣品，利用EDX裝置調查構成該切斷面(或研磨面)上所存在之上述磁石用粉末的各粒子之組成。

又，利用光學顯微鏡或電子掃描顯微鏡(100倍~10,000倍)觀察上述切斷面(或研磨面)，調查構成上述磁石用粉末之各粒子的形態。如此確認，如圖1(II)所示，構成上述磁石用粉末之各磁性粒子1係以鐵含有物之相2(代表例為鐵(Fe)及鐵-硼合金(Fe_3B)之相)作為母相，該母相中分散存在有複數個粒狀之稀土類元素之氫化合物之相3(代表例為 NdH_2)，於相鄰之稀土類元素之氫化合物之粒子間介隔有

鐵含有物之相 2。

使用混練上述環氧樹脂而製作之樣品，求得各磁性粒子之稀土類元素之氫化合物： NdH_2 、鐵含有物： Fe 、 Fe-B 之含量(體積%)。將其結果表示於表 1。此處，上述含量係假定存在固定體積比率(0.75體積%)之下述聚矽氧樹脂之情形，使用原料中所使用之合金粉末之組成及 NdH_2 、 Fe 、 Fe_3B 之原子量，藉由演算求得體積比。此外，上述含量係例如分別求得使用上述磁石用粉末所製作之成形體之切斷面(或研磨面)之面積中 NdH_2 、 Fe 、 Fe_3B 之面積比率，再將所獲得之面積比率換算為體積比率，或進行X射線分析並利用波峰強度比而求得。

利用上述EDX裝置，並利用所獲得之各粉末之組成之面分析(面掃描分析資料)，測定相鄰稀土類元素之氫化合物之粒子間的間距。此處，對上述切斷面(或研磨面)進行面分析，抽取 NdH_2 之波峰位置，測定相鄰之 NdH_2 之波峰位置間的間距，並求得全部間距之平均值。將其結果示於表 1。

作為上述磁石用粉末，係準備被覆有成為 Si-O 覆膜之前驅物的聚矽氧樹脂作為絕緣被覆層的粉末，利用油壓壓製裝置，於面壓為 10 ton/cm^2 之條件下對具有該絕緣被覆層之粉末進行壓縮成形(圖 1(III))。其結果為，除試料No.1-15以外，於面壓為 10 ton/cm^2 之條件下均可充分地進行壓縮，可形成外徑為 $10 \text{ mm}\phi \times$ 高度為 10 mm 之圓柱狀粉末成形體 4(圖 1(IV))。認為試料No.1-15之鐵含有物之相過少，

難以充分地進行壓縮，未能形成粉末成形體。

求得所獲得之粉末成形體之實際密度(成形密度)及相對密度(相對於真密度之實際密度)。將其結果示於表1。實際密度係利用市售之密度測定裝置進行測定。真密度係將NdH₂之密度設為5.96 g/cm³，將Fe之密度設為7.874 g/cm³，將Fe₃B之密度設為7.474 g/cm³，將聚矽氧樹脂之密度設為1.1 g/cm³，利用如表1所示之體積比藉由演算求得。

[表 1]

試料 No.	組成(at%)			假定體積比(%)			真密度	成形 密度	相對 密度	間距
	Nd	Fe	B	NdH ₂	Fe Fe-B	聚矽氧 樹脂	g/cm ³	g/cm ³	%	μm
1-1	3.0	89.8	3.4	10.2	89.1	0.75	7.58	7.29	96.2	9.8
1-2	5.0	86.8	4.4	16.3	82.9	0.75	7.45	7.11	95.4	6.7
1-3	6.1	85.7	4.8	19.2	80.1	0.75	7.40	6.88	93.0	2.8
1-4	7.6	84.5	5.2	23.1	76.1	0.75	7.32	6.69	91.4	2.4
1-5	9.5	83.3	5.6	27.6	71.6	0.75	7.23	6.54	90.5	1.9
1-6	3.0	76.9	20.1	10.9	88.3	0.75	7.33	6.94	94.7	10.2
1-7	3.8	77.4	18.9	13.3	85.9	0.75	7.31	6.78	92.8	6.3
1-8	6.1	78.8	15.2	19.8	79.5	0.75	7.25	6.66	91.8	2.9
1-9	7.6	79.7	12.7	23.6	75.7	0.75	7.22	6.52	90.3	2.5
1-10	9.5	81.0	9.5	27.9	71.4	0.75	7.18	6.44	89.7	2.2
1-11	11.8	82.4	5.9	32.2	67.0	0.75	7.14	6.32	88.5	1.7
1-12	13.3	76.7	5.0	36.7	62.5	0.75	7.07	6.11	86.5	1.3
1-13	17.3	74.7	4.0	43.7	55.5	0.75	6.95	4.92	70.8	0.9
1-14	24.4	71.1	2.2	53.6	45.6	0.75	6.78	4.69	69.2	0.7
1-15	28.0	69.3	1.3	57.6	41.6	0.75	6.71	無法 成形	-	-

根據表 1 可知，稀土類元素之氫化合物未達 40 體積%，剩餘部分實質上為 Fe 或 Fe_3B 之類的鐵含有物，且具有稀土類元素之氫化合物離散於上述鐵含有物中之組織(相之間的間距為 3 μm 以下)的粉末，可獲得複雜形狀之粉末成形體或相對密度為 85% 以上之高密度之粉末成形體。尤其可知，若利用稀土類元素之氫化合物未達 25 體積%之粉末，則可更加容易地獲得相對密度為 90% 以上之高密度之粉末成形體。

於氫氣環境中將所獲得之粉末成形體升溫至 800°C ，其後切換至真空(VAC)，於真空(VAC)中(最終真空度為 5 Pa)，於 $800^\circ\text{C} \times 10 \text{ min}$ 之條件下進行熱處理。藉由於氫氣環境中進行升溫，可於升至極高溫度後開始脫氫反應，而抑制反應不均。於該熱處理後，利用 EDX 裝置調查所獲得之圓柱狀部件之組成。將其結果示於表 2。根據表 2 可知，各圓柱狀部件係實質上包含稀土類-鐵-硼合金之稀土類-鐵-硼合金材料 5(圖 1(V))、或包含(鐵、稀土類-鐵-硼合金)、(鐵-硼合金、稀土類-鐵-硼合金)、(稀土類-鐵合金、稀土類-鐵-硼合金)之類的複數相的稀土類-鐵-硼合金材料 5，藉由上述熱處理除去了氫。

於 2.4 MA/m(=30 kOe)之脈衝磁場中，將所獲得之各稀土類-鐵-硼合金材料磁化後，使用磁滯曲線追蹤器(理研電子股份有限公司製造之 DCBH Tracer)調查所獲得之各試料(稀土類-鐵-系合金磁石 6(圖 1(VI)))之磁特性。將其結果示於表 2。此處，作為磁特性，係求得飽和磁通密度：

$B_s(T)$ 、剩餘磁通密度： $B_r(T)$ 、固有保磁力： $iH_c(kA/m)$ 、
磁通密度 B 與減磁場之大小 H 之乘積的最大值：
 $(BH)_{\max}(kJ/m^3)$ 。

[表 2]

試料 No.	脫氫時出現之相	磁特性			
		B_s	B_r	iH_c	$(BH)_{\max}$
		T	T	kA/m	kJ/m^3
1-1	Fe、 $Nd_2Fe_{14}B$	1.66	0.23	0.3	< 10
1-2	Fe、 $Nd_2Fe_{14}B$	1.57	0.28	0.9	< 10
1-3	Fe、 $Nd_2Fe_{14}B$	1.51	0.82	443	113
1-4	Fe、 $Nd_2Fe_{14}B$	1.46	0.77	518	134
1-5	Fe、 $Nd_2Fe_{14}B$	1.42	0.73	581	138
1-6	Fe_3B 、 $Nd_2Fe_{14}B$	1.45	0.18	2.3	< 10
1-7	Fe_3B 、 $Nd_2Fe_{14}B$	1.42	0.24	4.2	< 10
1-8	Fe_3B 、 $Nd_2Fe_{14}B$	1.41	0.62	490	105
1-9	Fe_3B 、 $Nd_2Fe_{14}B$	1.39	0.73	538	147
1-10	Fe_3B 、 $Nd_2Fe_{14}B$	1.39	0.71	607	148
1-11	$Nd_2Fe_{14}B$	1.37	0.69	630	141
1-12	$Nd_2Fe_{14}B$ 、Nd-Fe	1.20	0.63	642	128
1-13	$Nd_2Fe_{14}B$ 、Nd-Fe	0.92	0.46	661	63
1-14	$Nd_2Fe_{14}B$ 、Nd-Fe	0.72	0.35	658	39

根據表 2 可知，使用包含未達 40 體積 % 之稀土類元素之
氫化合物、剩餘部分實質上為 Fe 或 Fe_3B 之類的鐵含有物，
且相鄰之稀土類元素之氫化合物之相間的間距為 3 μm 以下
之粉末(磁石用粉末)而製作之稀土類磁石於磁特性方面優
異。尤其可知，藉由使用鐵含有物之含量為 90 體積 % 以下

之粉末，或使用相對密度為85%以上之粉末成形體，可不進行燒結而獲得磁特性優異之稀土類磁石。

[試驗例2]

與試驗例1同樣地製作稀土類磁石，並調查磁特性。

於該試驗中，準備以Nd、Fe、B之原子比(at%)為Nd:Fe:B $\approx$ 11.8:82.4:5.9之Nd₂Fe₁₄B合金作為主相(95質量%以上)的錠塊，與試驗例1同樣地製作平均粒徑為100 μ m之合金粉末，於氫氣環境中，於表3所示之溫度熱處理1小時。於該熱處理後，針對所獲得之粉末(磁石用粉末)，與試驗例1同樣地調查NdH₂、鐵含有物(Fe、Fe-B)之含量(體積%)、相鄰之NdH₂之相間的間隔。將其結果示於表3。又，與試驗例1同樣地，於上述熱處理後，調查構成所獲得之粉末之各粒子的形態，結果No.2-3~2-6之NdH₂相為粒子狀、No.2-2之NdH₂相與鉄相、鉄-硼合金相均為層狀。再者，對於試料No.2-1之合金粉末，未實施上述熱處理。

進而，與試驗例1同樣地對上述熱處理後所獲得之粉末進行絕緣被覆，其後與試驗例1同樣地進行壓縮成形，而製作粉末成形體，結果試料No.2-1未能成形，試料No.2-2未能充分地成形。認為其原因為：未能充分地使上述合金粉末不均化，未能使鐵含有物(Fe、Fe-B)相充分地出現。

針對所獲得之粉末成形體，與試驗例1同樣地求得真密度、實際密度及相對密度。將其結果示於表3。

[表 3]

試料 No.	熱處理溫度 (氫化處理)	假定體積比(%)			真密度	成形 密度	相對 密度	間距
	℃	NdH ₂	Fe Fe-B	聚矽氧 樹脂	g/cm ³	g/cm ³	%	μm
2-1	無	-	-	-	-	無法 成形	-	-
2-2	650	-	-	-	-	無法 成形	-	-
2-3	750	32.2	67.0	0.75	7.14	6.08	85.1	0.9
2-4	850	32.2	67.0	0.75	7.14	6.32	88.5	1.7
2-5	950	32.2	67.0	0.75	7.14	6.42	89.9	2.3
2-6	1050	32.2	67.0	0.75	7.14	6.59	92.3	5.6

根據表3可知，越提高氫化處理時之溫度，越可獲得相對密度較高之粉末成形體。認為其原因為：藉由提高上述溫度，可使鐵含有物(Fe、Fe-B)之相充分出現，而提高成形性。

於氫氣環境中將所獲得之粉末成形體升溫至800℃，切換至真空(VAC)，於真空(VAC)中(最終真空度為5 Pa)，於800℃×10 min之條件下進行熱處理，其後與試驗例1同樣地調查組成，結果確認試料No.2-3~2-5為實質上包含Nd₂Fe₁₄B之稀土類-鐵-硼合金材料。

進而，於2.4 MA/m(=30 kOe)之脈衝磁場中，將所獲得之各稀土類-鐵-硼合金材料磁化，其後與試驗例1同樣地調查磁特性。將其結果示於表4。

[表 4]

試料 No.	脫氫時出現之相	磁特性			
		Bs	Br	iHc	(BH)max
		T	T	kA/m	kJ/m ³
2-3	Nd ₂ Fe ₁₄ B	1.32	0.74	653	147
2-4	Nd ₂ Fe ₁₄ B	1.37	0.69	630	141
2-5	Nd ₂ Fe ₁₄ B	1.39	0.62	512	118
2-6	Nd ₂ Fe ₁₄ B、Fe ₃ B、Fe	1.49	0.36	258	27

根據表 4 可知，藉由使用包含未達 40 體積 % 之稀土類元素之氫化合物，剩餘部分實質上為鐵及鐵-硼合金之類的鐵含有物，且相鄰之稀土類元素之氫化合物之相間的間距為 3 μm 以下之粉末(磁石用粉末)，並且將氫處理時之溫度調整為較低，可不進行燒結而獲得保磁力較高、磁特性更加優異之稀土類磁石。

[試驗例 3]

改變脫氫處理時之條件而製作稀土類磁石，並調查磁特性。

於該試驗中，係使用與試驗例 2 之試料 No.2-4 相同之原料，且準備藉由相同之製法所製作之粉末成形體。將所準備之粉末成形體之規格(真密度、實際密度及相對密度)示於表 5。與試驗例 1 相同地調查真密度等。

[表 5]

試料 No.	熱處理溫度 (氫化處理)	假定體積比(%)			真密度	成形 密度	相對 密度	間距
	°C	NdH ₂	Fe Fe-B	聚矽氧 樹脂	g/cm ³	g/cm ³	%	μm
3-1~3-9	850	32.2	67.0	0.75	7.14	6.32	88.5	1.7

於氫氣環境中將所獲得之粉末成形體升溫至 800°C ，其後於自外部施加 $0\text{ T}\sim 8\text{ T}$ 之磁場的狀態下，切換至真空(VAC)，於施加表6所示之磁場的狀態下，於真空(VAC)中(最終真空度為 5 Pa)，於 $800^{\circ}\text{C}\times 10\text{ min}$ 之條件下實施熱處理(脫氫處理)。磁場係使用超導線圈而施加。於該熱處理後，調查所獲得之各試料之組成，結果確認試料No.3-1~3-9均與試料No.2-4同樣地，實質上為包含 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 之稀土類-鐵-硼合金材料。

於利用 $2.4\text{ MA/m}(=30\text{ kOe})$ 之脈衝磁場將所獲得之各稀土類-鐵-硼合金材料磁化後，與試驗例1同樣地調查磁特性。將其結果示於表6。

又，針對所獲得之各稀土類-鐵-硼合金材料，將上述脫氫處理時之磁場之施加方向成為法線方向的面作為觀察面而切出，以觀察面之表層不發生氧化的方式浸漬於乙醇中，同時進行研磨，除去由切出所產生之加工變形，而製作觀察試料。針對所製作之各觀察試料之經上述研磨的面，依據JIS K 0131(1996)測定 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 結晶之X射線繞射圖案，分別取得各觀察試料之最大波峰強度：基準強度 I_{max} 。又，此處，針對各觀察試料，測定相當於(006)面(面間距為 0.203 nm 附近)之波峰強度，將相當於該面(006)之波峰強度設為測定強度 I_x ，求得該觀察試料之測定強度 I_x 相對於各觀察試料之基準強度 I_{max} 的比率(相對強度)： $(I_x/I_{\text{max}})\times 100$ 。將其結果示於表6。

[表 6]

試料 No.	施加磁場 T	磁特性				X射線強度
		Bs	Br	iHc	(BH)max	(006)
		T	T	kA/m	kJ/m ³	相對強度
3-1	0	1.37	0.69	630	141	19
3-2	1	1.37	0.70	620	143	19
3-3	2	1.36	0.68	640	140	23
3-4	3	1.37	0.74	650	147	29
3-5	4	1.37	0.86	640	178	71
3-6	5	1.37	0.89	660	182	72
3-7	6	1.38	0.88	650	180	74
3-8	7	1.38	0.92	670	186	76
3-9	8	1.38	0.95	670	193	79

根據表6可知，藉由於施加4 T以上之磁場的狀態下實施脫氫處理，可獲得磁特性(此處尤其係指Br及(BH)max)更為優異之稀土類磁石。又，可知施加磁場越大，越可提高磁特性。進而可知，若所獲得之稀土類磁石之相對強度較大，為70以上，具有一定之配向性(此處，主要為(006)面進行配向)，並且施加磁場越大，相對強度越大。

再者，上述之實施形態可在不脫離本發明之要旨的情況下進行適當變更，並不限定於上述構成。例如可適當地變更稀土類元素之種類、磁石用粉末之平均粒徑、粉末成形體之相對密度、各種熱處理條件(加熱溫度、保持時間)等。

[產業上之可利用性]

本發明之磁石用粉末、由該粉末而獲得之粉末成形體、

稀土類-鐵-硼系合金材料可較佳地用於各種馬達、尤其是混合動力車(HEV)或硬碟驅動器(HDD)等中所具備之高速馬達所使用之永久磁石之原料、材料。本發明之磁石用粉末之製造方法、本發明之稀土類-鐵-硼系合金材料之製造方法可較佳地用於製造上述本發明之磁石用粉末、本發明之稀土類-鐵-硼系合金材料。

【圖式簡單說明】

圖1係說明使用本發明之磁石用粉末來製造磁石之步驟之一例的步驟說明圖。

【主要元件符號說明】

- | | |
|---|--------------|
| 1 | 磁性粒子 |
| 2 | 鐵含有物之相 |
| 3 | 稀土類元素之氫化合物之相 |
| 4 | 粉末成形體 |
| 5 | 稀土類-鐵-硼系合金材料 |
| 6 | 稀土類-鐵-硼系合金磁石 |

發明專利說明書

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號： 100113033

※申請日： 2011.03.23

※IPC 分類：H01F 1/03 2006.01

一、發明名稱：(中文/英文)

磁石用粉末

C22C 1/05 2006.01

二、中文發明摘要：

本發明提供一種可獲得磁特性優異之稀土類磁石且成形性優異之磁石用粉末及其製造方法、粉末成形體、稀土類-鐵-硼系合金材料。構成磁石用粉末之磁性粒子1具有稀土類元素之氫化合物之相3之粒子分散存在於鐵含有物之相2中的組織。藉由使鐵含有物之相2均勻地存在於磁性粒子1中，該粉末之成形性優異，易提高粉末成形體4之密度。該磁石用粉末係藉由如下方式獲得：於氫氣環境中於R-Fe-B系合金之不均化溫度以上之溫度對稀土類-鐵-硼系合金(R-Fe-B系合金)之粉末進行熱處理而將稀土類元素與鐵含有物分離，且生成稀土類元素之氫化合物。對該磁石用粉末進行壓縮成形而獲得粉末成形體4，於真空中對該粉末成形體4進行熱處理而獲得R-Fe-B系合金材料5，將R-Fe-B系合金材料5磁化而獲得R-Fe-B系合金磁石6。

三、英文發明摘要：

七、申請專利範圍：

1. 一種磁石用粉末，其係用於稀土類磁石者；且

構成上述磁石用粉末之各磁性粒子包含未達40體積%之稀土類元素之氫化合物、及剩餘為鐵含有物；

上述鐵含有物含有鐵、與含有鐵及硼之鐵-硼合金；

上述稀土類元素之氫化合物之相與上述鐵含有物之相係鄰接存在；

以上述鐵含有物之相為介隔而相鄰之上述稀土類元素之氫化合物之相間的間距為3 μm 以下。

2. 如請求項1之磁石用粉末，其中上述稀土類元素含有選自Nd、Pr、Ce、Dy及Y中之至少一種元素。

3. 如請求項1或2之磁石用粉末，其中上述氫化合物之相為粒狀；

上述粒狀之稀土類元素之氫化合物分散存在於上述鐵含有物之相中。

4. 如請求項1或2之磁石用粉末，其中上述磁性粒子之平均粒徑為10 μm 以上、500 μm 以下。

5. 一種粉末成形體，其係對請求項1至4中任一項之磁石用粉末進行壓縮成形而製造者；

上述粉末成形體之相對密度為85%以上。

6. 一種稀土類-鐵-硼系合金材料，其係於惰性環境中或減壓環境中對請求項5之粉末成形體進行熱處理而製造者。

7. 一種稀土類-鐵-硼系合金材料，其係於惰性環境中或減

壓環境中對請求項5之粉末成形體進行熱處理而製造，且由選自鐵相、鐵-硼合金相及稀土類-鐵合金相中之至少一種相與稀土類-鐵-硼合金相之混相材料所構成。

8. 一種稀土類-鐵-硼系合金材料，其係於對請求項5之粉末成形體施加4 T以上之磁場之狀態下，於惰性環境中或減壓環境中實施熱處理而製造，於取得上述磁場之施加方向成為法線方向之面之X射線繞射圖案時，結晶面之面間距為0.202 nm至0.204 nm之間所出現之繞射波峰的相對強度為70以上。

9. 一種磁石用粉末之製造方法，其係製造用於稀土類磁石之磁石用粉末者，其具備如下步驟：

準備步驟，係準備包含稀土類-鐵-硼系合金之合金粉末；及

氫化步驟，係於含有氫元素之環境中，於該稀土類-鐵-硼系合金之不均化溫度以上之溫度對上述合金粉末進行熱處理而製造上述磁石用粉末；

構成上述磁石用粉末之各磁性粒子包含未達40體積%之稀土類元素之氫化合物及剩餘為鐵含有物，上述鐵含有物含有鐵與含有鐵及硼之鐵-硼合金，上述稀土類元素之氫化合物之相與上述鐵含有物之相係鄰接存在，且以上述鐵含有物之相為介隔而相鄰之上述稀土類元素之氫化合物之相間的間距為3 μm 以下。

10. 一種稀土類-鐵-硼系合金材料之製造方法，其係製造用於稀土類磁石之稀土類-鐵-硼系合金材料者，其具備如

下步驟：

準備步驟，係準備包含稀土類-鐵-硼系合金之合金粉末；

氫化步驟，係於含有氫元素之環境中，於該稀土類-鐵-硼系合金之不均化溫度以上之溫度對上述合金粉末進行熱處理，而製造由磁性粒子構成之磁石用粉末，該磁性粒子包含未達40體積%之稀土類元素之氫化合物及剩餘為鐵含有物，上述鐵含有物含有鐵與含有鐵及硼之鐵-硼合金，上述稀土類元素之氫化合物之相與上述鐵含有物之相係鄰接存在，且以上述鐵含有物之相為介隔而相鄰之上述稀土類元素之氫化合物之相間的間距為3 μm 以下；

成形步驟，係對上述磁石用粉末進行壓縮成形而成形相對密度為85%以上之粉末成形體；及

脫氫步驟，係於惰性環境中或減壓環境中，於該粉末成形體之重組溫度以上之溫度對上述粉末成形體進行熱處理，而形成稀土類-鐵-硼合金相。

11. 一種稀土類-鐵-硼系合金材料之製造方法，其係製造用於稀土類磁石之稀土類-鐵-硼系合金材料者，其具備如下步驟：

準備步驟，係準備包含稀土類-鐵-硼系合金之合金粉末；

氫化步驟，係於含有氫元素之環境中，於該稀土類-鐵-硼系合金之不均化溫度以上之溫度對上述合金粉末進

行熱處理，而製造由磁性粒子構成之磁石用粉末，該磁性粒子包含未達40體積%之稀土類元素之氫化合物及剩餘為鐵含有物，上述鐵含有物含有鐵與含有鐵及硼之鐵-硼合金，上述稀土類元素之氫化合物之相與上述鐵含有物之相係鄰接存在，且以上述鐵含有物之相為介隔而相鄰之上述稀土類元素之氫化合物之相間的間距為3 μm 以下；

成形步驟，係對上述磁石用粉末進行壓縮成形而成形相對密度為85%以上之粉末成形體；及

脫氫步驟，係於惰性環境中或減壓環境中，於該粉末成形體之重組溫度以上之溫度對上述粉末成形體進行熱處理，而形成選自鐵相、鐵-硼合金相及稀土類-鐵合金相中之至少一種相與稀土類-鐵-硼合金相之混相。

12. 如請求項10或11之稀土類-鐵-硼系合金材料之製造方法，其中上述脫氫步驟之熱處理係於對上述粉末成形體施加4 T以上之磁場之狀態下進行。

八、圖式：

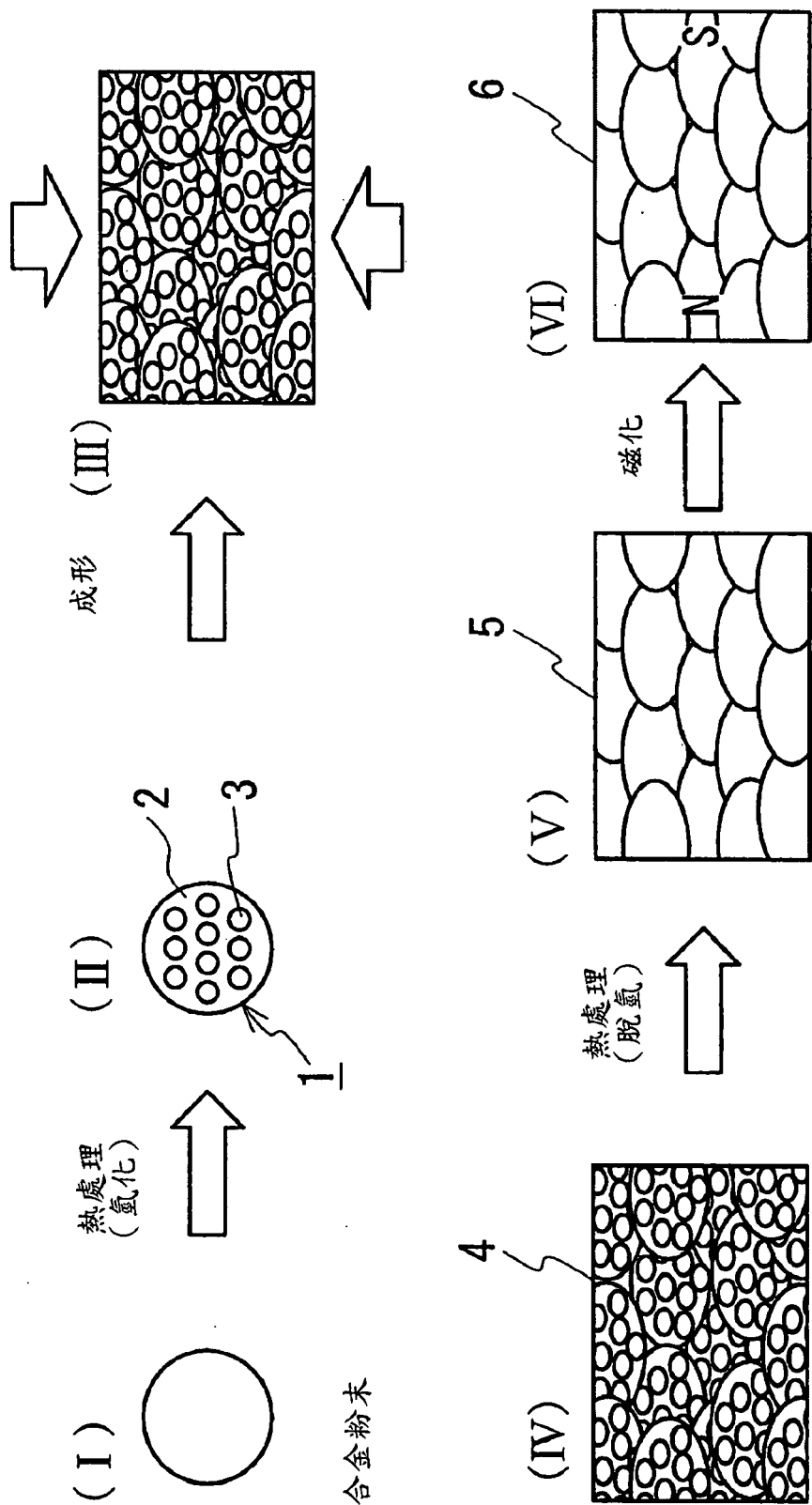


圖1

四、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：第 (1) 圖。

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

- | | |
|---|--------------|
| 1 | 磁性粒子 |
| 2 | 鐵含有物之相 |
| 3 | 稀土類元素之氮化合物之相 |
| 4 | 粉末成形體 |
| 5 | 稀土類-鐵-硼系合金材料 |
| 6 | 稀土類-鐵-硼系合金磁石 |

五、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：

(無)