

(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2014-177660

(P2014-177660A)

(43) 公開日 平成26年9月25日(2014.9.25)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
B 2 2 F 1/00 (2006.01)	B 2 2 F 1/00 Y	4 K 0 1 8
H 0 1 F 1/057 (2006.01)	H 0 1 F 1/04 H	5 E 0 4 0
H 0 1 F 1/09 (2006.01)	H 0 1 F 1/09 A	5 E 0 6 2
H 0 1 F 1/06 (2006.01)	H 0 1 F 1/06 A	
C 2 2 C 38/00 (2006.01)	B 2 2 F 1/00 G	

審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 14 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2013-50830 (P2013-50830)
 (22) 出願日 平成25年3月13日 (2013.3.13)

(71) 出願人 000166443
 戸田工業株式会社
 広島県広島市南区京橋町1番23号
 (72) 発明者 片山 信宏
 広島県大竹市明治新開1番4 戸田工業株式会社大竹創造センター内
 (72) 発明者 川崎 浩史
 広島県大竹市明治新開1番4 戸田工業株式会社大竹創造センター内
 (72) 発明者 森本 耕一郎
 広島県大竹市明治新開1番4 戸田工業株式会社大竹創造センター内
 Fターム(参考) 4K018 BA18 BC01 BD01 KA46
 5E040 AA04 AA19 BB04 CA01 HB11
 NN01 NN18
 5E062 CC05 CD04

(54) 【発明の名称】 R-T-B系希土類磁石粉末、R-T-B系希土類磁石粉末の製造方法、及びボンド磁石

(57) 【要約】

【課題】磁性相結晶粒界に連続したR-Rich粒界相の形成を促進することにより磁粉の保磁力を増大させ、且つ高い残留磁束密度も兼備するR-T-B系希土類磁石粉末を得る。

【解決手段】HDDR処理して得られる、Alを含むR-T-B系希土類磁石粉末を、真空またはAr雰囲気中にて670以上820以下の温度で30分以上300分以下熱処理することでR-Rich粒界相の形成を促進することができ、Al量を低減しても高い保磁力を備え、且つ高い残留磁束密度を持つR-T-B系希土類磁石粉末を得る。

【選択図】なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

R - T - B系希土類磁石粉末において、該粉末はR (R : Yを含む一種以上の希土類元素)、T (T : Fe、またはFe及びCo)、B (B : ホウ素)及びAl (Al : アルミニウム)を含み、該粉末の平均組成はR量が12.5 at. %以上14.3 at. %以下であり、B量が4.5 at. %以上7.5 at. %以下であり、Al量が1.0 at. %未満であって、該粉末は、 $R_2T_{14}B$ 磁性相を含む結晶粒と粒界相とから成り、粒界相は、R (R : Yを含む一種以上の希土類元素)、T (T : Fe、またはFe及びCo)、B (B : ホウ素)及びAl (Al : アルミニウム)を含み、粒界相の組成はR量が13.5 at. %以上30 at. %以下、Al量が1.5 at. %以下であることを特徴とするR - T - B系希土類磁石粉末。

10

【請求項 2】

R - T - B系希土類磁石粉末がGa及びZrを含み、該粉末の平均組成は、Co量が10.0 at. %以下であり、Ga量が0.1 at. %以上1.0 at. %以下であり、Zr量が0.05 at. %以上0.15 at. %以下である請求項1に記載のR - T - B系希土類磁石粉末。

【請求項 3】

R (R : Yを含む一種以上の希土類元素)、T (T : Fe、またはFe及びCo)、B (B : ホウ素)及びAl (Al : アルミニウム)を含む原料合金をHDDR処理して得られる、Alを含み、1.5 at. %未満のAlを含むR - T - B系希土類磁石粉末を、真空またはAr雰囲気中にて670 以上820 以下の温度で30分以上300分以下の熱処理を行うR - T - B系希土類磁石粉末の製造方法。

20

【請求項 4】

原料合金の組成はR量が12.5 at. %以上14.3 at. %以下であり、B量が4.5 at. %以上7.5 at. %以下であり、Al量が1.5 at. %未満である請求項3に記載のR - T - B系希土類磁石粉末の製造方法。

【請求項 5】

原料合金がGa及びZrを含み、該原料合金の組成はCo量が10.0 at. %以下であり、Ga量が0.1 at. %以上1.0 at. %以下であり、Zr量が0.05 at. %以上0.15 at. %以下である請求項3又は4に記載のR - T - B系希土類磁石粉末の製造方法。

30

【請求項 6】

請求項3～5のいずれかに記載のR - T - B系希土類磁石粉末の製造方法によって得られるR - T - B系希土類磁石粉末。

【請求項 7】

請求項1、2又は6に記載のR - T - B系希土類磁石粉末を用いたボンド磁石。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明はR - T - B系希土類磁石粉末とその製造方法に関するものである。

40

【背景技術】

【0002】

R - T - B系希土類磁石粉末は優れた磁気特性を有しており、自動車等の各種モータ用磁石として広く工業的に利用されている。しかし、R - T - B系希土類磁石粉末は温度に依存した磁気特性の変化が大きいことから、高温になると保磁力が急激に低下する。

【0003】

R - T - B系希土類磁石粉末は原料合金をHDDR処理 (Hydrogenation - Decomposition - Desorption - Recombination : 水素化 - 相分解 - 脱水素 - 再結合) することによって製造できることが知られている。HDDR処理によるR - T - B系希土類磁石粉末の製造においては、これまで、種々の元

50

素を磁石粉末に含有させて磁性相結晶粒界に連続した R - R i c h 粒界相の形成を促進することにより磁石粉末の保磁力を増大させてきた。しかしながら、磁性相を構成しない元素の添加量が増えると粒界相の磁化が下がるため磁石粉末の残留磁束密度の低下を招いていた。

【 0 0 0 4 】

特許文献 1 には R - T - B 系合金に微量の D y を添加したものを H D D R 処理することにより保磁力に優れた磁石粉末が得られることが記載されている。

【 0 0 0 5 】

特許文献 2 では、R F e B H _x 粉末に D y 水素化物等からなる拡散粉末を混合し、拡散熱処理工程、脱水素工程を行うことにより、D y 等が表面及び内部に拡散し、保磁力に優れた磁石粉末が得られることが記載されている。

10

【 0 0 0 6 】

特許文献 3 では、H D D R 処理によって作製された R - F e - B 系磁石粉末に Z n 含有粉末を混合、混合粉碎、拡散熱処理、時効熱処理を行うことにより Z n を粒界に拡散させた、保磁力に優れた磁石粉末が得られることが記載されている。

【 0 0 0 7 】

また、特許文献 4 では、H D D R 処理によって作製された R - F e - B 系磁石粉末に、N d - C u 粉末を混合、熱処理拡散させ主相の粒界に N d - C u を拡散させた、保磁力に優れた磁石粉末が得られることが記載されている。

【 先行技術文献 】

20

【 特許文献 】

【 0 0 0 8 】

【 特許文献 1 】 特開平 9 - 1 6 5 6 0 1 号公報

【 特許文献 2 】 特開 2 0 0 2 - 0 9 6 1 0 号公報

【 特許文献 3 】 特開 2 0 1 1 - 4 9 4 4 1 号公報

【 特許文献 4 】 国際公開第 2 0 1 1 / 1 4 5 6 7 4 号パンフレット

【 発明の概要 】

【 発明が解決しようとする課題 】

【 0 0 0 9 】

従来から D y を原料合金に添加する方法や H D D R 工程の途中または H D D R 工程の後に添加元素を拡散させることにより、磁石粉末の保磁力を向上させる検討がなされてきた。しかしながら、磁性相を構成しない元素の添加量が増えると粒界相の磁化が下がるため磁石粉末の残留磁束密度の低下を招くという課題があった。

30

【 0 0 1 0 】

本発明は磁性相を構成しない元素の添加量を抑制することにより高い残留磁束密度を持つ R - T - B 系希土類磁石粉末を得る。また R - R i c h 相の形成を促進することを目的として添加する元素の添加量抑制による R - R i c h 粒界相の形成能力低下を、H D D R 処理後の熱処理で補うことにより、優れた保磁力と残留磁束密度を有する R - T - B 系希土類磁石粉末を製造することを目的としている。

【 課題を解決するための手段 】

40

【 0 0 1 1 】

すなわち、本発明は、R - T - B 系希土類磁石粉末において、該粉末は R (R : Y を含む一種以上の希土類元素)、T (T : F e、または F e 及び C o)、B (B : ホウ素) 及び A l (A l : アルミニウム) を含み、該粉末の平均組成は R 量が 1 2 . 5 a t . % 以上 1 4 . 3 a t . % 以下であり、B 量が 4 . 5 a t . % 以上 7 . 5 a t . % 以下であり、A l 量が 1 . 0 a t . % 未満であって、該粉末は、R₂T₁₄B 磁性相を含む結晶粒と粒界相とから成り、粒界相は、R (R : Y を含む一種以上の希土類元素)、T (T : F e、または F e 及び C o)、B (B : ホウ素) 及び A l (A l : アルミニウム) を含み、粒界相の組成は R 量が 1 3 . 5 a t . % 以上 3 0 a t . % 以下、A l 量が 1 . 5 a t . % 以下であることを特徴とする R - T - B 系希土類磁石粉末である (本発明 1) 。

50

【0012】

また、本発明は、R - T - B系希土類磁石粉末がGa及びZrを含み、該粉末の平均組成は、Co量が10.0at.%以下であり、Ga量が0.1at.%以上1.0at.%以下であり、Zr量が0.05at.%以上0.15at.%以下である本発明1に記載のR - T - B系希土類磁石粉末である（本発明2）。

【0013】

また、本発明は、R（R：Yを含む一種以上の希土類元素）、T（T：Fe、またはFe及びCo）、B（B：ホウ素）及びAl（Al：アルミニウム）を含む原料合金をHDDR処理して得られる、1.5at.%未満のAlを含むR - T - B系希土類磁石粉末を、真空またはAr雰囲気中にて670以上820以下の温度で30分以上300分以下の熱処理を行うR - T - B系希土類磁石粉末の製造方法である（本発明3）。

10

【0014】

また、本発明は、原料合金の組成はR量が12.5at.%以上14.3at.%以下であり、B量が4.5at.%以上7.5at.%以下であり、Al量が1.5at.%未満である本発明3に記載のR - T - B系希土類磁石粉末の製造方法である（本発明4）。

【0015】

また、本発明は、原料合金がGa及びZrを含み、該原料合金の組成はCo量が10.0at.%以下であり、Ga量が0.1at.%以上1.0at.%以下であり、Zr量が0.05at.%以上0.15at.%以下である本発明3又は4に記載のR - T - B系希土類磁石粉末の製造方法である（本発明5）。

20

【0016】

また、本発明は、本発明3～5のいずれかに記載のR - T - B系希土類磁石粉末の製造方法によって得られるR - T - B系希土類磁石粉末である（本発明6）。

【0017】

また、本発明は、本発明1、2又は6に記載のR - T - B系希土類磁石粉末を用いたボンド磁石である（本発明7）。

【発明の効果】

【0018】

本発明に係るR - T - B系希土類磁石粉末は、優れた保磁力及び残留磁束密度を有するので、ボンド磁石用磁性粉末として好適である。

30

【0019】

本発明は原料合金にR - Rich粒界相を促進するための添加元素としてAlを含有していることにより、Rを粒界相に拡散させるための複雑な工程がなくとも優れた保磁力を有するR - T - B系希土類磁石粉末を製造することができる。

【0020】

また、本発明によれば、磁性相を構成しない元素の添加量を抑制することができるため、高い残留磁束密度を持つR - T - B系希土類磁石粉末が得られる。さらには、R - Rich粒界相の形成を促進するための添加元素の添加量抑制によるR - Rich粒界相の形成能力低下を、HDDR処理後の熱処理により補うことにより、優れた保磁力と残留磁束密度を有するR - T - B系希土類磁石粉末を製造することができる。

40

【発明を実施するための形態】

【0021】

まず、本発明に係るR - T - B系希土類磁石粉末について説明する。

【0022】

本発明に係るR - T - B系希土類磁石粉末は、R（R：Yを含む一種以上の希土類元素）、T（T：Fe、またはFe及びCo）、B（B：ホウ素）及びAl（Al：アルミニウム）を含むものである。

【0023】

本発明に係るR - T - B系希土類磁石粉末を構成する希土類元素RとしてはY、La、

50

Ce、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Luから選ばれた一種または二種以上が利用できるが、コスト、磁気特性の理由からNdを用いることが望ましい。該粉末の平均組成はR量が12.5at.%以上14.3at.%以下である。平均組成のR量が12.5at.%より少ないと粒界相に存在するR量が13.5at.%以下となり、保磁力向上の効果を十分に得ることができない。平均組成のR量が14.3at.%を超えると粒界相の非磁性相量が多くなることから磁石粉末の残留磁束密度が低くなる。平均組成のR量は、好ましくは12.8at.%以上14.0at.%以下である。

【0024】

本発明に係るR-T-B系希土類磁石粉末を構成する元素TはFe、またはFe及びCoである。該粉末の平均組成のT量は、該粉末を構成する他の元素を除いた残部である。また、Feを置換する元素としてCoを添加することによりキュリー温度を上げることができるが、磁石粉末の残留磁束密度の低下を招くことから該粉末中の平均組成のCo量は10.0at.%以下であることが好ましく、2.0at.%以上8.0at.%以下であることがより好ましい。

10

【0025】

本発明に係るR-T-B系希土類磁石粉末の平均組成はB量が4.5at.%以上7.5at.%以下である。平均組成のB量が4.5at.%より少ないと、 R_2Fe_{17} 相等が析出するために磁気特性が低下し、またB量が7.5at.%より多いと残留磁束密度が低くなる。平均組成のB量は、好ましくは5.0at.%以上7.0at.%以下である。

20

【0026】

本発明に係るR-T-B系希土類磁石粉末の平均組成はAl量が1.0at.%未満である。本発明において、AlはR-T-B系希土類磁石粉末の粒界に余剰のRを均一に拡散させる効果があると考えられるため、0at.%を超えて含有されていることが必要である。すみやかにRを粒界に拡散させるためには、平均組成のAl量が0.05at.%以上であることが好ましい。一方で、Al量が多いと非磁性相量が多くなるために磁石粉末の残留磁束密度が低下することから、Al量は少ないことが好ましい。平均組成のAl量が1.0at.%未満であれば高い残留磁束密度が得られるため好ましい。平均組成のAl量は、より好ましくは0.07at.%以上0.8at.%以下である。

30

【0027】

さらに、本発明に係るR-T-B系希土類磁石粉末はGa及びZrを含むことが好ましい。該粉末の平均組成はGa量が0.1at.%以上1.0at.%以下であることが好ましい。平均組成のGa量が0.1at.%未満であると保磁力向上への効果が小さく、1.0at.%を超えると残留磁束密度が低下する。また、該粉末の平均組成はZr量が0.05at.%以上0.15at.%以下であることが好ましい。平均組成のZr量が0.05at.%未満では保磁力向上への効果が小さく、0.15at.%を超えると残留磁束密度が低下する。

【0028】

また、本発明に係るR-T-B系希土類磁石粉末は、上記元素の他にTi、V、Nb、Si、Cr、Mn、Zn、Mo、Hf、W、Ta、Snのうち一種または二種以上の元素を含有していてもよい。これらの元素を添加することにより、R-T-B系希土類磁石粉末の磁気特性を上げることができる。これらの元素の含有量は合計で2.0at.%以下とすることが好ましく、1.0at.%以下であることがより好ましい。これらの元素の含有量が2.0at.%を超えた場合には、残留磁束密度の低下を招くことがある。

40

【0029】

本発明に係るR-T-B系希土類磁石粉末は、 $R_2T_{14}B$ 磁性相を含む結晶粒と、粒界相から成る。本発明に係るR-T-B系希土類磁石粉末は、粒界相が結晶粒の界面に連続的に存在しているため、結晶粒間の磁氣的結合を弱めることができていると考えられ、高い保磁力を示す。

50

【0030】

本発明に係るR-T-B系希土類磁石粉末の粒界相は、R（R：Yを含む一種以上の希土類元素）、T（T：Fe、またはFe及びCo）、B（B：ホウ素）及びAl（Al：アルミニウム）を含むものである。

【0031】

本発明に係るR-T-B系希土類磁石粉末の粒界相の組成はR量が13.5at.%以上30.0at.%以下である。粒界相の組成のR量が13.5at.%より少ないと保磁力向上の効果を十分に得ることができない。粒界相の組成のR量が30.0at.%を超えると粒界の磁化が下がるために粉末の残留磁束密度が低くなる。粒界相の組成のR量は、好ましくは20.0at.%以上30.0at.%以下である。

10

【0032】

本発明に係るR-T-B系希土類磁石粉末の粒界相の組成はAl量が1.5at.%以下である。本発明において、AlはR-T-B系希土類磁石粉末の粒界に余剰のRを均一に拡散させる効果があると考えられるため、粒界相に0at.%を超えて含有されていることが必要である。Rがより均一に粒界相に拡散されたものであるには、粒界相の組成のAl量が0.05at.%以上であることが好ましい。一方で、粒界相の組成のAl量が1.5at.%を超えた場合には非磁性相量が多くなることから磁石粉末の残留磁束密度が低下する。粒界相の組成のAl量は、好ましくは0.06at.%以上1.2at.%以下であり、より好ましくは0.07at.%以上1.0at.%未満である。

20

【0033】

本発明に係るR-T-B系希土類磁石粉末の粒界相を構成する元素TはFe、またはFe及びCoである。該粉末の粒界相の組成のT量は、粒界相を構成する他の元素を除いた残部である。

【0034】

さらに、本発明に係るR-T-B系希土類磁石粉末の粒界相には、上記元素の他にGa、Zr、Ti、V、Nb、Si、Cr、Mn、Zn、Mo、Hf、W、Ta、Snのうち一種または二種以上の元素を含有していてもよい。

【0035】

続いて、本発明に係るR-T-B系希土類磁石粉末の製造方法を詳細に説明する。本発明のR-T-B系希土類磁石粉末の製造方法は、原料合金粉末にHDDR処理を行い、得られた粉末に熱処理を行ってR-T-B系希土類磁石粉末を得るものである。

30

【0036】

まず、本発明におけるR-T-B系希土類磁石粉末の原料合金について説明する。

【0037】

本発明におけるR-T-B系希土類磁石粉末の原料合金は、R（R：Yを含む一種以上の希土類元素）、T（T：Fe、またはFe及びCo）、B（B：ホウ素）及びAl（Al：アルミニウム）を含むものである。

【0038】

本発明におけるR-T-B系希土類磁石粉末の原料合金を構成する希土類元素RとしてはY、La、Ce、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Luから選ばれた一種または二種以上が利用できるが、コスト、磁気特性の理由からNdを用いることが望ましい。原料合金中のR量は12.5at.%以上14.3at.%以下である。原料合金中のR量が12.5at.%より少ないと粒界に拡散する余剰のNdが少なくなり、保磁力向上の効果を十分に得ることができない。原料合金中のR量が14.3at.%を超えると粒界相の非磁性相量が多くなることから磁石粉末の残留磁束密度が低くなる。原料合金中のR量は、好ましくは12.8at.%以上14.0at.%以下である。

40

【0039】

本発明におけるR-T-B系希土類磁石粉末の原料合金を構成する元素TはFe、またはFe及びCoである。原料合金中のT量は、原料合金を構成する他の元素を除いた残部

50

である。また、Feを置換する元素としてCoを添加することによりキュリー温度を上げることができるが、残留磁束密度の低下を招くことから原料合金中のCo量は10.0at.%以下とするのが好ましく、2.0at.%以上8.0at.%以下であることがより好ましい。

【0040】

本発明におけるR-T-B系希土類磁石粉末の原料合金中のB量は4.5at.%以上7.5at.%以下である。原料合金中のB量が4.5at.%より少ないと、 R_2Fe_{17} 相等が析出するために磁気特性が低下し、また原料合金中のB量が7.5at.%より多いと残留磁束密度が低くなる。原料合金中のB量は、好ましくは5.0at.%以上7.0at.%以下である。

10

【0041】

本発明におけるR-T-B系希土類磁石粉末の原料合金中のAl量は1.5at.%未満である。本発明において、AlはR-T-B系希土類磁石粉末の粒界に余剰のRを均一に拡散させる効果があると考えられるため、原料合金に0at.%を超えて含有されていることが必要である。すみやかにRを粒界に拡散させるためには、原料合金中のAl量が0.05at.%以上であることが好ましい。一方で、Al量が多いと非磁性相量が多くなるために残留磁束密度が低下することから、Al量は少ないことが好ましい。原料合金中のAl量が1.0at.%以下であれば高い残留磁束密度が得られるため好ましい。原料合金中のAl量は、より好ましくは0.07at.%以上0.8at.%以下である。

20

【0042】

さらに、本発明におけるR-T-B系希土類磁石粉末の原料合金はGa及びZrを含むことが好ましい。原料合金中のGa量は0.1at.%以上1.0at.%以下であることが好ましい。原料合金中のGa量が0.1at.%未満であると保磁力向上への効果が小さく、1.0at.%を超えると残留磁束密度が低下する。また、原料合金中のZr量は0.05at.%以上0.15at.%以下であることが好ましい。原料合金中のZr量が0.05at.%未満では保磁力向上への効果が小さく、0.15at.%を超えると残留磁束密度が低下する。

【0043】

また、本発明におけるR-T-B系希土類磁石粉末の原料合金は、上記元素の他にTi、V、Nb、Si、Cr、Mn、Zn、Mo、Hf、W、Ta、Snのうち一種または二種以上の元素を含有していてもよい。これらの元素を添加することにより、R-T-B系希土類磁石粉末の磁気特性を上げることができる。これらの元素の含有量は合計で2.0at.%以下とすることが好ましく、1.0at.%以下であることがより好ましい。これらの元素の含有量が2.0at.%を超えた場合には、残留磁束密度の低下や他相の析出を招くことがある。

30

【0044】

(原料合金粉末の作製)

R-T-B系希土類磁石粉末の原料合金としては、ブックモールド法、遠心鑄造法で作製したインゴットやストリップキャスト法で作製したストリップを用いることができる。これらの合金は鑄造時に組成の偏析が生じることから、HDDR処理の前に組成の均質化熱処理を行っても良い。均質化熱処理は真空もしくは不活性ガス雰囲気中にて好ましくは950以上1200以下、より好ましくは1000以上1170以下で行われる。次に、粗粉碎と微粉碎を行い、HDDR処理用原料合金粉末とする。粗粉碎にはジョークラッシャーなどを用いることができる。その後、一般的な水素吸蔵粉碎、機械粉碎を行いR-T-B系希土類磁石粉末の原料合金粉末とする。

40

【0045】

次に、前記原料合金粉末を用いてR-T-B系希土類磁石粉末を製造する方法について説明する。

【0046】

(HDDR処理)

50

HDDR処理は水素化によりR-T-B系原料合金を α -Fe相、 RH_2 相、 Fe_2B 相に分解するHD工程と、減圧により、水素を排出し、前記各相から $Nd_2Fe_{14}B$ を生成する逆反応を起こすDR工程から成る。

【0047】

(HD工程)

HD工程における処理温度は700以上870以下で行うことが好ましい。ここで処理温度を700以上としたのは700未満では反応が進行しないためであり、870以下としたのは、反応温度が870を超えると結晶粒が成長してしまい、保磁力が低下してしまうためである。雰囲気は水素分圧20kPa以上90kPa以下の水素ガスと不活性ガスの混合雰囲気で行うことが好ましく、水素分圧が40kPa以上80kPa以下であることがより好ましい。これは20kPa未満では反応が進行せず、90kPaを超えては反応性が高くなりすぎ、磁気特性が低下するためである。処理時間は30分以上10時間以下であることが好ましく、1時間以上7時間以下であることがより好ましい。

10

【0048】

(DR工程)

DR工程における処理温度は800以上900以下で行うことが好ましい。ここで処理温度を800以上としたのは800未満では脱水素が進行しないためであり、900以下としたのは900を超えては結晶粒が過度に成長してしまい、保磁力が低下するためである。DR工程では最終的な真空度が1Pa以下となるようにする。DR工程の排気工程は予備排気工程と完全排気工程に分けて行うことができる。

20

【0049】

(DR工程 - 予備排気工程)

予備排気工程における処理温度は800以上900以下で行うことが好ましい。ここで処理温度を800以上としたのは800未満では脱水素が進行しないためであり、900以下としたのは900を超えては結晶粒が過度に成長してしまい、保磁力が低下するためである。

【0050】

予備排気工程では真空度を2.5kPa以上4.0kPa以下として行うことが好ましい。これは RH_2 相から水素を除去するためである。予備排気工程において RH_2 相から水素を除去することにより、結晶方位の揃った $RFeBH$ 相を得ることができる。処理時間は30分以上180分以下で行うことが好ましい。

30

【0051】

(DR工程 - 完全排気工程)

完全排気工程における処理温度は予備排気工程と同様に800以上900以下で行うことが好ましい。ここで処理温度を800以上としたのは800未満ではNd-Alが溶融せず、Nd-rich相の粒界への拡散が十分に起こらないために、保磁力が向上しないためである。また900以下としたのは900を超えては結晶粒が過度に成長してしまい、保磁力が低下するためである。

【0052】

完全排気工程では、予備排気工程の雰囲気からさらに排気を行って最終的な真空度を1Pa以下とする。また、完全排気工程全体の処理時間を30分以上150分以下とし、特に真空度が1Pa以上2000Pa以下での保持時間を10分以上140分以下とすることが好ましい。より好ましくは真空度が1Pa以上2000Pa以下での保持時間を15分以上120分以下とする。真空度は、連続的に下げても良いし、段階的に下げても良い。完全排気工程全体の処理時間が30分以下であると脱水素が不完全となり保磁力が低下し、150分以上であると結晶粒が過度に成長し、保磁力の低下を招く。

40

【0053】

前記のHDDR処理によってR-T-B系希土類磁石粉末を得ることができる。得られたR-T-B系希土類磁石粉末は完全排気工程終了後に冷却を行ってもよい。完全排気工

50

程終了後の R - T - B 系希土類磁石粉末を A r 中にて急冷することにより、磁石粉末の結晶粒成長を防止することができる。

【 0 0 5 4 】

(熱処理)

R - T - B 系希土類磁石粉末の熱処理は真空もしくは A r 雰囲気で行う。熱処理温度は 6 7 0 以上 8 2 0 以下とする。熱処理温度が 6 7 0 未満では R - R i c h の粒界への拡散が進行せず保磁力増大の効果が小さい。8 2 0 を超える温度では効果が飽和するとともに、磁性相結晶粒の粗大化が起こるため、保磁力が低下する。また、D R 工程の処理温度より高い温度で熱処理を実施すると磁性相結晶粒の粗大化を招く可能性があり、磁石粉末の保磁力が低下することから D R 工程の処理温度よりも低い温度で熱処理を実施することが好ましい。熱処理温度は好ましくは 7 0 0 以上 8 0 0 以下である。

10

【 0 0 5 5 】

また熱処理時間は 3 0 分以上 3 0 0 分以下とする。熱処理時間が 3 0 分未満では R の拡散が十分に進行しないため、保磁力増大の効果が小さく、3 0 0 分を超える時間では効果が飽和するとともに磁性相結晶粒の粗大化により磁石粉末の保磁力が低下する。熱処理時間は好ましくは 4 5 分以上 1 8 0 分以下、より好ましくは 6 0 分以上 1 2 0 分以下である。

【 0 0 5 6 】

熱処理終了後に冷却を行って、本発明に係る R - T - B 系希土類磁石粉末を得ることができる。熱処理後の R - T - B 系希土類磁石粉末を A r 雰囲気中にて急冷を行うことにより、磁石粉末の磁性相結晶粒の粗大化を防ぎ、保磁力の低下を防止することができる。

20

【 0 0 5 7 】

本発明においては、H D D R 処理後の熱処理を、H D D R 処理が完了した後に、D R 工程と比較して低い温度で行うことにより、磁石粉末の結晶粒の粗大化を起こすことなく、保磁力を増大させ、高い残留磁束密度を維持することができる。

【 0 0 5 8 】

A l を含有する R - T - B 系磁石粉末の H D D R 処理後の熱処理による保磁力増大と残留磁束密度の維持という効果は、原料合金の A l 量、ひいては R - T - B 系希土類磁石粉末の平均組成の A l 量が 1 . 5 a t . % 未満のときに発現する。A l 量が 1 . 5 a t . % 以上の場合、H D D R 処理において R の拡散が十分に行われているために保磁力の向上は見られず、そもそもの磁石粉末の残留磁束密度が低い。本発明においては、H D D R 処理後の熱処理によって、H D D R 処理のみでは不十分であった A l による粒界相への R の拡散による保磁力向上の効果が得られるため、A l が存在し、且つ A l の含量が少ない磁石粉末において、より優れた保磁力向上効果を発揮する。高い保磁力と高い残留磁束密度を備えた R - T - B 系希土類磁石粉末を得るためには、A l 量が 0 . 0 5 a t . % 以上 1 . 0 a t . % 以下であることが好ましく、0 . 0 7 a t . % 以上 0 . 8 a t . % 以下であることがより好ましい。

30

【 0 0 5 9 】

(ボンド磁石の製造)

本発明の R - T - B 系希土類磁石粉末を用いて、ボンド磁石を製造する。磁石粉末に熱可塑性樹脂、カップリング材、潤滑材を添加混練した後、磁界中で圧縮成形、射出成形、等をしてボンド磁石を製造することができる。また、エポキシ樹脂等の熱硬化性樹脂に磁石粉末を混合し、加圧成形等により成形した後、熱処理を行うことによりボンド磁石を製造することができる。

40

【 実施例 】

【 0 0 6 0 】

以下に、本発明の実施例と比較例を詳細に示す。

【 0 0 6 1 】

本発明における R - T - B 系希土類磁石粉末の平均組成及び原料合金の組成の分析には、B 及び A l の分析には I C P 発光分光分析装置 (サーマフィッシャーサイエンティフィ

50

ック製：iCAP6000)を用い、B及びAl以外の分析については蛍光X線分析装置(理学電機工業株式会社製：RIX2011)を用いた。

【0062】

本発明におけるR-T-B系希土類磁石粉末の粒界の組成分析にはエネルギー分散形X線分析装置(日本電子株式会社製：JED-2300F)を用いた。

【0063】

本発明におけるR-T-B系希土類磁石粉末の磁気特性として、保磁力(H_{c_j})、最大エネルギー積(BH_{max})、残留磁束密度(B_r)を振動試料型磁束計(VSM：東英工業製VSM-5型)にて測定した。

【0064】

(原料合金粉末の作製)

表1に示す各組成の合金インゴットA1～A3を作製した。これらの合金インゴットを真空雰囲気下において1150で20時間の熱処理をし、組成の均質化を行った。均質化熱処理後、ジョークラッシャーを用いて粗粉碎を行い、さらに水素吸蔵させ、機械粉碎を行って、原料合金粉末A1～A3を得た。

【0065】

【表1】

	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

※単位 at%

【0066】

(実施例1)

(HDDR処理-HD工程)

HD工程では5kgの原料合金粉末A1を炉に仕込み水素分圧が60kPaである全圧100kPa(大気圧)の水素-Ar混合気体中で840まで昇温し200分保持した。

【0067】

(HDDR処理-予備排気工程)

HD工程終了後、ロータリーポンプで真空排気を行い、炉内の真空度を3.2kPaとする予備排気工程を行った。真空排気系のバルブ開度の調整により真空度は3.2kPaを維持し、処理温度は840とし、100分保持して脱水素を行った。

【0068】

(HDDR処理-完全排気工程)

予備排気工程終了後、さらに、真空排気を行い、炉内の真空度を3.2kPaから最終的に1Pa以下となるように完全排気工程を行った。処理温度は840とし、完全排気工程全体の処理時間を45分とした。得られた粉末を冷却してR-T-B系希土類磁石粉末を得た。得られたR-T-B系希土類磁石粉末の磁気特性を測定した。

【0069】

(熱処理)

熱処理はHDDR処理後の粉末を炉に仕込みAr雰囲気中で700まで昇温を行い、700で1時間保持を行った後Ar雰囲気にて急冷を行ってR-T-B系希土類磁石粉末を得た。得られたR-T-B系希土類磁石粉末の組成及び磁気特性を測定した。

【0070】

(実施例2)

熱処理温度を750とした以外は実施例1と同様にしてR-T-B系希土類磁石粉末を得た。

【0071】

(実施例3)

10

20

30

40

50

熱処理温度を800とした以外は実施例1と同様にしてR-T-B系希土類磁石粉末を得た。

【0072】

(実施例4)

熱処理時間を2時間とした以外は実施例2と同様にしてR-T-B系希土類磁石粉末を得た。

【0073】

(実施例5)

原料合金粉末A2を用いたほかは実施例1と同様にしてR-T-B系希土類磁石粉末を得た。

10

【0074】

(実施例6)

原料合金粉末A2を用いたほかは実施例2と同様にしてR-T-B系希土類磁石粉末を得た。

【0075】

(実施例7)

原料合金粉末A2を用いたほかは実施例3と同様にしてR-T-B系希土類磁石粉末を得た。

【0076】

(実施例8)

熱処理時間を3時間とした以外は実施例7と同様にしてR-T-B系希土類磁石粉末を得た。

20

【0077】

(比較例1)

原料合金粉末A3を用いたほかは実施例1と同様にしてR-T-B系希土類磁石粉末を得た。

【0078】

(比較例2)

原料合金粉末A3を用いたほかは実施例2と同様にしてR-T-B系希土類磁石粉末を得た。

30

【0079】

(比較例3)

原料合金粉末A3を用いたほかは実施例3と同様にしてR-T-B系希土類磁石粉末を得た。

【0080】

【 表 2 】

	使用合金 種類	熱処理条件		磁石粉末平均組成		磁石粉末粒界組成		熱処理前磁気特性			熱処理後磁気特性		
		温度 °C	時間 hr	Al量 at.%	Nd量 at.%	Al量 at.%	Nd量 at.%	Hcj kA/m	(BH)max kJ/m ³	Br T	Hcj kA/m	(BH)max kJ/m ³	Br T
実施例1	A1	700	1.0	0.07	12.9	0.08	21.2	1200	284	1.26	1300	289	1.26
実施例2	A1	750	1.0	0.07	12.9	0.08	21.4	1200	284	1.26	1320	291	1.27
実施例3	A1	800	1.0	0.07	12.9	0.09	21.5	1200	284	1.26	1290	289	1.27
実施例4	A1	750	2.0	0.07	12.9	0.08	21.3	1200	284	1.26	1310	288	1.26
実施例5	A2	700	1.0	0.50	12.9	0.70	23.8	1260	278	1.25	1300	279	1.25
実施例6	A2	750	1.0	0.50	12.9	0.72	24.0	1260	278	1.25	1310	280	1.25
実施例7	A2	800	1.0	0.50	12.9	0.73	24.1	1260	278	1.25	1300	279	1.25
実施例8	A2	800	3.0	0.50	12.9	0.72	24.0	1260	278	1.25	1310	275	1.25
比較例1	A3	700	1.0	1.50	12.9	1.66	23.5	1320	269	1.19	1280	261	1.19
比較例2	A3	750	1.0	1.50	12.9	1.68	23.7	1320	269	1.19	1300	262	1.19
比較例3	A3	800	1.0	1.50	12.9	1.68	23.7	1320	269	1.19	1320	269	1.19

10

20

30

40

【 0 0 8 1 】

(結果)

表 2 において実施例 1 ~ 8 では 1 2 9 0 k A / m 以上の保磁力及び 1 . 2 5 T 以上の残

50

留磁束密度を持つ磁石粉末が得られている。これは、熱処理においてNd - Rich相が粒界に拡散したことで、熱処理前よりも粒界のNd - Rich相の厚みが増したためであると推察される。

【0082】

また、比較例1～3においては、熱処理を行っても磁石粉末の保磁力は増加していない。これは原料合金へのAl添加量が多いことから、HDDR処理中にR - Rich相が十分に拡散しているため、熱処理の効果がなく保磁力の増大が見られなかったと考えられる。またAl含有量が多いことから磁石粉末の残留磁束密度は実施例と比較すると低い値となっている。

【産業上の利用可能性】

10

【0083】

本発明のR - T - B系希土類磁石粉末の製造方法によれば、保磁力を増大させる元素の添加量を抑制することにより残留磁束密度を低下させることなく、熱処理によりR - Rich相を粒界に拡散させることができ、残留磁束密度と保磁力に優れたR - T - B系希土類磁石粉末を得ることができる。

フロントページの続き

(51) Int. Cl.

H 0 1 F 41/02 (2006.01)

F I

C 2 2 C 38/00 3 0 3 D

H 0 1 F 41/02 G

テーマコード(参考)