

19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 717 445**

51 Int. Cl.:

<b>B22F 3/16</b>	(2006.01) <b>H01F 1/08</b>	(2006.01)
<b>C22C 30/02</b>	(2006.01) <b>H01F 41/02</b>	(2006.01)
<b>C22C 33/02</b>	(2006.01) <b>B22F 1/00</b>	(2006.01)
<b>C22C 38/00</b>	(2006.01) <b>B22F 3/24</b>	(2006.01)
<b>C22C 38/06</b>	(2006.01) <b>B22F 9/04</b>	(2006.01)
<b>C22C 38/10</b>	(2006.01)	
<b>C22C 38/12</b>	(2006.01)	
<b>C22C 38/14</b>	(2006.01)	
<b>C22C 38/16</b>	(2006.01)	
<b>H01F 1/057</b>	(2006.01)	

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

- 86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **11.08.2014 PCT/JP2014/071229**
- 87 Fecha y número de publicación internacional: **19.02.2015 WO15022946**
- 96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **11.08.2014 E 14836886 (3)**
- 97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **13.03.2019 EP 3035346**

54 Título: **Imán sinterizado R-T-B y método para producir un imán sinterizado R-T-B**

30 Prioridad:

**12.08.2013 JP 2013167333**  
**26.11.2013 JP 2013243497**  
**28.02.2014 JP 2014037836**

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:  
**21.06.2019**

73 Titular/es:

**HITACHI METALS, LTD. (100.0%)**  
**2-70, Konan 1-chome Minato-ku**  
**Tokyo 1088224, JP**

72 Inventor/es:

**ISHII, RINTARO;**  
**KUNIYOSHI, FUTOSHI y**  
**SATOH, TEPPEI**

74 Agente/Representante:

**UNGRÍA LÓPEZ, Javier**

ES 2 717 445 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín Europeo de Patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre Concesión de Patentes Europeas).

## DESCRIPCIÓN

Imán sinterizado R-T-B y método para producir un imán sinterizado R-T-B

5 **Campo técnico**

La presente divulgación se refiere a un imán sinterizado a base de R-T-B y a un método para producir un imán sinterizado a base de R-T-B.

10 **Antecedentes en la técnica**

Los imanes sinterizados a base de R-T-B que incluyen un compuesto de tipo  $R_2T_{14}B$  como fase principal (R está compuesto de elemento(s) de tierras raras ligero(s), RL, y elemento(s) de tierras raras pesado(s), RH, RL es Nd y/o Pr, RH es al menos uno entre Dy, Tb, Gd y Ho y T es al menos uno de los elementos de metal de transición e incluye inevitablemente Fe) son conocidos como los imanes permanentes con el máximo rendimiento entre los imanes permanentes y se han utilizado en varios motores para coches híbridos, coches eléctricos y electrodomésticos.

Sin embargo, en los imanes sinterizados a base de R-T-B, la fuerza coercitiva  $H_{cJ}$  (en adelante denominada simplemente " $H_{cJ}$ ") disminuye a alta temperatura para causar una desmagnetización térmica irreversible. Por lo tanto, cuando se utiliza en particular en motores para coches híbridos y coches eléctricos, existe la necesidad de mantener una alta  $H_{cJ}$  incluso a alta temperatura.

Para aumentar la  $H_{cJ}$ , hasta el momento, se añadía una gran cantidad de elementos pesados de tierras raras (principalmente Dy) al imán sinterizado a base de R-T-B. Sin embargo, surgía el problema de la disminución de la densidad de flujo magnético residual  $B_r$  (en adelante denominada a veces simplemente " $B_r$ "). Por lo tanto, recientemente se ha venido utilizando un método en el que se difunden elementos pesados de tierras raras desde la superficie hacia dentro del imán sinterizado a base de R-T-B para aumentar así la concentración de los elementos pesados de tierras raras en la parte de la cubierta exterior de los granos de cristal de la fase principal, obteniendo de este modo una alta  $H_{cJ}$  al tiempo que se elimina la disminución de  $B_r$ .

Dy presenta problemas como un suministro inestable y fluctuaciones en los precios debido a las restricciones del distrito de producción. Por lo tanto, existe la necesidad de desarrollar una tecnología para mejorar la  $H_{cJ}$  de los imanes sinterizados a base de R-T-B sin utilizar elementos pesados de tierras raras como Dy en la mayor medida de lo posible (reduciendo la cantidad en la mayor medida de lo posible).

El Documento de Patente 1 divulga que se disminuye la cantidad de B en comparación con una aleación a base de R-T-B convencional y se incluye uno o más elementos metálicos M seleccionados entre Al, Ga y Cu para formar una fase  $R_2T_{17}$  y se asegura suficientemente una fracción del volumen de una fase rica en metal de transición ( $R_6T_{13}M$ ) formada a partir de la fase  $R_2T_{17}$  como materia prima para obtener un imán sinterizado de tierras raras a base de R-T-B que tiene una fuerza coercitiva al mismo tiempo que se elimina el contenido en Dy.

El Documento de Patente 2 divulga aleaciones sinterizadas a base de R-T-B con adiciones de Ga, Cu, Al, Co y Zr, fabricadas mezclando varias aleaciones en polvo, compactándolas, sinterizándolas y envejeciéndolas.

45 **Documentos de la técnica anterior****Documentos de patente**

50 Documento de patente 1: WO 2013/008756 A  
Documento de patente 2: JP 2011 211056 A

**Sumario de la invención**55 **Problemas que se resuelven con la invención**

Sin embargo, el imán sinterizado de tierras raras a base de R-T-B de acuerdo con el Documento de patente 1 presenta el problema de que aumenta la cantidad de R y disminuye la cantidad de B más que antes, de manera que la relación de existencia en la fase principal disminuye lo cual conlleva una significativa reducción de la  $B_r$ .

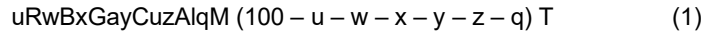
60 La presente divulgación se ha realizado para resolver los problemas mencionados y un objeto de la misma es proporcionar un imán sinterizado a base de R-T-B que tiene una alta  $B_r$  y una alta  $H_{cJ}$  al mismo tiempo que se elimina el contenido en Dy y un método para producirlo.

65

**Medios para resolver los problemas**

El aspecto 1 de la presente invención se refiere a un imán sinterizado a base de R-T-B representado por la siguiente fórmula (1):

5 donde:



10 R se compone de elemento(s) de tierras raras ligero(s) RL y elemento(s) de tierras raras pesado(s) RH; RL es Nd y/o Pr, RH es al menos uno entre Dy, Tb, Gd y Ho, T es Fe y 10 % en masa o menos de Fe puede estar reemplazado por Co, M es Nb y/o Zr y u, w, x, y, z, q y 100-u-w-x-y-z-q se expresan por lo que respecta al % en masa;

15 dicho RH representa 5 % en masa o menos del imán sinterizado a base de R-T-B, satisfaciéndose las siguientes expresiones de inequación (2) a (5):

$$0,20 \leq x \leq 0,70 \quad (2)$$

$$0,07 \leq y \leq 0,2 \quad (3)$$

$$0,05 \leq z \leq 0,5 \quad (4)$$

$$0 \leq q \leq 0,1 \quad (5)$$

25  $v = u - (6\alpha + 10\beta + 8\gamma)$ , donde la cantidad de oxígeno (% en masa) del imán sinterizado a base de R-T-B es  $\alpha$ , la cantidad de nitrógeno (% en masa) es  $\beta$  y la cantidad de carbono (% en masa) es  $\gamma$ ; cuando  $0,40 \leq x \leq 0,70$ , v y w satisfacen las siguientes expresiones de inequación (6) y (7):

$$50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 14 \quad (6)$$

$$-12,5w + 38,75 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (7)$$

30 y, cuando  $0,20 \leq x < 0,40$ , v y w satisfacen las siguientes expresiones de inequación (8) y (9) y x satisface la siguiente expresión de inequación (10):

$$50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 15,5 \quad (8)$$

$$-12,5w + 39,125 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (9)$$

$$-(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,5 \leq x \leq -(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,8 \quad (10)$$

El aspecto 2 de la presente invención se refiere a un imán sinterizado a base de R-T-B de acuerdo con el aspecto 1, donde, cuando  $0,40 \leq x \leq 0,70$ , v y w satisfacen las siguientes expresiones de inequación (11) y (7):

$$50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 16,25 \quad (11)$$

$$-12,5w + 38,75 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (7)$$

50 y, cuando  $0,20 \leq x < 0,40$ , v y w satisfacen las siguientes expresiones de inequación (12) y (9) y x satisface la siguiente expresión de inequación (10):

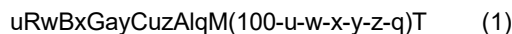
$$50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 17,0 \quad (12)$$

$$-12,5w + 39,125 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (9)$$

$$-(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,5 \leq x \leq -(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,8 \quad (10)$$

60 En el aspecto 1 y 2, la cantidad de oxígeno de imán sinterizado a base de R-T-B es preferentemente 0,15 % en masa o menos.

El aspecto 3 de la presente invención es un aspecto preferente del método para producir el imán sinterizado a base de R-T-B del aspecto 1, representándose el imán sinterizado a base de R-T-B mediante la siguiente fórmula (1):



65

## ES 2 717 445 T3

donde:

R se compone de elemento(s) de tierras raras ligero(s), RL, y elemento(s) de tierras raras pesado(s), RH, RL es Nd y/o Pr, RH es al menos uno entre Dy, Tb, Gd y Ho, T es Fe y 10 % en masa o menos de Fe puede estar reemplazado por Co, M es Nb y/o Zr y u, w, x, y, z, q y 100-u-w-x-y-z-q se expresan por lo que respecta al % en masa; dicho RH representa 5 % en masa o menos del imán sinterizado a base de R-T-B, satisfaciéndose las siguientes expresiones de inecuación (2) a (5):

$$0,20 \leq x \leq 0,70 \quad (2)$$

$$0,07 \leq y \leq 0,2 \quad (3)$$

$$0,05 \leq z \leq 0,5 \quad (4)$$

$$0 \leq q \leq 0,1 \quad (5)$$

$v = u - (6\alpha + 10\beta + 8\gamma)$ , donde la cantidad de oxígeno (% en masa) de imán sinterizado a base de R-T-B es  $\alpha$ , la cantidad de nitrógeno (% en masa) es  $\beta$  y la cantidad de carbono (% en masa) es  $\gamma$ ; y cuando  $0,40 \leq x \leq 0,70$ , v y w satisfacen las siguientes expresiones de inecuación (6) y (7):

$$50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 14 \quad (6)$$

$$-12,5w + 38,75 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (7)$$

y, cuando  $0,20 \leq x < 0,40$ , v y w satisfacen las siguientes expresiones de inecuación (8) y (9) y x satisface la siguiente expresión de inecuación (10):

$$50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 15,5 \quad (8)$$

$$-12,5w + 39,125 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (9)$$

$$-(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,5 \leq x \leq -(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,8 \quad (10)$$

incluyendo el método:

- una etapa de preparación de uno o más tipos de aleaciones en polvo adicionales y uno o más tipos de aleaciones en polvo principales;
- una etapa de mezclado de uno o más tipos de aleaciones en polvo adicionales con 0,1 % en masa o más y 40 % en masa o menos entre el 100 % en masa de la aleación en polvo mixta tras el mezclado para obtener una aleación en polvo mixta del uno o más tipos de aleaciones en polvo adicionales y el uno o más tipos de las aleaciones en polvo principales;
- una etapa de compactación de la aleación en polvo mixta para obtener un compacto;
- una etapa de sinterización de sinterización del compacto para obtener un cuerpo sinterizado; y
- una etapa de tratamiento térmico para someter el cuerpo sinterizado a un tratamiento térmico;

donde el uno o más tipos de aleaciones en polvo adicionales se representan respectivamente mediante la siguiente expresión de inecuación (13), teniendo cada una la composición que satisface las siguientes expresiones de inecuación (14) a (20):

$$aRbBcGadCueAlfM(100-a-b-c-d-e-f)T \quad (13)$$

donde

R se compone de elemento(s) de tierras raras ligero(s) RL y elemento(s) de tierras raras pesado(s) RH, RL es Nd y/o Pr, RH es al menos uno entre Dy, Tb, Gd y Ho, T como resto es Fe y 10 % en masa o menos de Fe puede estar reemplazado por Co, M es Nb y/o Zr y a, b, c, d, e, f y 100-a-b-c-d-e-f se expresan por lo que respecta al % en masa:

$$32 \% \leq a \leq 66 \% \quad (14)$$

$$0,2 \% \leq b \quad (15)$$

$$0,7 \% \leq c \leq 12 \% \quad (16)$$

$$0 \% \leq d \leq 4 \% \quad (17)$$

$$0 \% \leq e \leq 10 \% \quad (18)$$

$$0 \% \leq f \leq 2 \% \quad (19)$$

$$100-a-b-c-d-e-d-f \leq 72,4 \quad (20)$$

5 y el contenido en Ga de uno o más de los tipos de aleaciones en polvo principales es 0,4 % en masa o menos.

El aspecto 4 de la presente invención es un aspecto preferente del método para producir un imán sinterizado a base de R-T-B de acuerdo con el aspecto 2, donde, cuando  $0,40 \leq x \leq 0,70$ , v y w satisfacen las siguientes expresiones de inecuación (11) y (7):

$$10 \quad 50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 16,25 \quad (11)$$

$$-12,5w + 38,75 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (7)$$

15 y, cuando  $0,20 \leq x < 0,40$ , v y w satisfacen las siguientes expresiones de inecuación (12) y (9) y x satisface la siguiente expresión de inecuación (10):

$$20 \quad 50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 17,0 \quad (12)$$

$$-12,5w + 39,125 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (9)$$

$$-(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,5 \leq x \leq -(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,8 \quad (10)$$

25 En los aspectos 3 y 4 de la presente invención, la cantidad de oxígeno de imán sinterizado a base de R-T-B es preferentemente 0,15 % en masa o menos.

### Efectos de la invención

30 De acuerdo con el aspecto de la presente invención, es posible proporcionar un imán sinterizado a base de R-T-B que tiene una alta  $B_r$  y una alta  $H_{cJ}$  al mismo tiempo que se elimina el contenido en Dy o Tb, y un método para su producción.

### Breve descripción de los dibujos

35 La Fig. 1 es un gráfico explicativo en el que se muestran los intervalos de v y w cuando la cantidad de Ga está dentro del intervalo de 0,40 % en masa o más y 0,70 % en masa o menos en un aspecto de la presente invención.

40 Fig. 2 es un gráfico explicativo en el que se muestran los intervalos de v y w cuando la cantidad de Ga está dentro del intervalo de 0,20 % en masa o más y menos de 0,40 % en masa en un aspecto de la presente invención.

Fig. 3 es un gráfico explicativo en el que se muestra la relación relativa entre los intervalos presentados en la Fig. 1 y los intervalos presentados en la Fig. 2.

45 Fig. 4 es un gráfico explicativo en el que se muestran los valores correspondientes de v y w de muestras del ejemplo y muestras del ejemplo comparativo de acuerdo con "<Ejemplo 1>" representado en gráfico en la Fig. 1.

Fig. 5 es una fotografía de una imagen de barrido de electrones retrodispersados (BSE) obtenida por observación FE-SEM de una sección transversal de un imán sinterizado a base de R-T-B.

Fig. 6 es una fotografía de una imagen BSE obtenida por observación FE-SEM de una sección transversal de un imán sinterizado a base de R-T-B.

### 50 Modo de realización de la invención

Los autores de la invención han llevado a cabo un exhaustivo estudio para resolver los problemas mencionados y han observado que se obtiene un imán sinterizado a base de R-T-B que tiene una alta  $B_r$  y una alta  $H_{cJ}$  a través de la composición representada por la fórmula presentada en el aspecto 1 o 2 de la presente invención. Es decir, la presente invención se refiere a un imán sinterizado a base de R-T-B en el que se incluyen R, B, Ga, Cu, Al, R, B, Ga, Cu, Al y, si es necesario, M, en la proporción específica presentada en el aspecto 1 o 2. Si bien el imán sinterizado a base de R-T-B de la presente invención presentado en el aspecto 1 o 2 puede producirse a través de un método de producción conocido, los autores de la invención han observado que es posible obtener un imán sinterizado a base de R-T-B que tiene una alta  $B_r$  y una alta  $H_{cJ}$  utilizando una aleación en polvo adicional con una composición específica en un método en el que se mezclan uno o más tipos de aleaciones en polvo adicionales y uno o más tipos de aleaciones en polvo principales entre sí en una cantidad de mezclado específica y la mezcla así obtenida se compacta, se sinteriza y se somete después a un tratamiento térmico, como el aspecto 3 y 4, como aspecto preferente, en el que se produce el imán sinterizado a base de R-T-B presentado en el aspecto 1 o 2.

65 Quedan pendientes de aclaración aún algunos puntos relacionados con el mecanismo según el cual se obtiene un imán sinterizado a base de R-T-B que tiene una alta  $B_r$  y una alta  $H_{cJ}$  controlando la composición en la proporción

que se muestra en el aspecto 1 o 2 de la presente invención y el mecanismo en el que se obtiene un imán sinterizado a base de R-T-B que tiene una alta  $B_r$  y una alta  $H_{cJ}$  utilizando una aleación en polvo adicional con una composición específica en un método en el que se mezclan uno o más tipos de aleaciones en polvo adicionales y uno o más tipos de aleaciones en polvo principales entre sí en una cantidad de mezclado específica y la mezcla así obtenida se compacta, se sinteriza y se somete después a un tratamiento térmico, como el aspecto 3 y 4. Se describirá el mecanismo propuesto por los autores de la invención sobre la base de los hallazgos que han realizado hasta el momento. Debe advertirse que la descripción en relación con el siguiente mecanismo no pretende limitar el alcance de la presente invención.

El imán sinterizado a base de R-T-B permite un aumento de  $B_r$  aumentando la relación de existencia de un compuesto de tipo  $R_2T_{14}B$  que es una fase principal. Para aumentar la relación de existencia del compuesto de tipo  $R_2T_{14}B$ , la cantidad de R, la cantidad de T y la cantidad de B puede aproximarse a una relación estequiométrica del compuesto de tipo  $R_2T_{14}B$ . Si la cantidad de B para la formación del compuesto de tipo  $R_2T_{14}B$  es menos de la relación estequiométrica, precipita una fase  $R_2T_{17}$  magnética suave sobre el límite de grano, lo cual conlleva una rápida reducción de  $H_{cJ}$ . Sin embargo, si Ga se incluye en la composición del imán, se forma una fase R-T-Ga en lugar de la fase  $R_2T_{17}$ , lo cual permite evitar la reducción de  $H_{cJ}$ .

Sin embargo, como resultado de un exhaustivo estudio realizado por los autores de la invención, se ha observado que la fase R-T-Ga tiene también un ligero magnetismo y si existe en exceso la fase R-T-Ga en el límite del grano del imán sinterizado a base de R-T-B, en particular, el límite del grano que existe entre las dos fases principales (denominado a veces más adelante también "límite de grano entre dos granos") que, según se considera, ejerce una influencia sobre todo en la  $H_{cJ}$ , el magnetismo de la fase R-T-G evita que aumente la  $H_{cJ}$ . También se puede deducir que se forman la fase R-Ga y la fase R-G-Cu sobre el límite del grano entre dos granos, junto con la formación de la fase R-T-Ga. Por lo tanto, los autores de la invención establecieron la hipótesis de que se mejora la  $H_{cJ}$  a través de la existencia de la fase R-Ga y la fase R-Ga-Cu en el límite de grano entre dos granos del imán sinterizado a base de R-T-B. Se estableció la hipótesis de que es necesario que se forme la fase R-T-Ga para formar la fase R-Ga y la fase R-G-Cu y para eliminar la fase  $R_2T_{17}$  y es necesario reducir la cantidad de formación para obtener una alta  $H_{cJ}$ . Se estableció la hipótesis de que es posible mejorar más la  $H_{cJ}$  si se evita la fase R-T-Ga para que sea lo más reducida posible al tiempo que se forma la fase R-Ga y la fase R-Ga-Cu en el límite del grano entre dos granos.

Para reducir la cantidad de formación de la fase R-T-Ga en un imán sinterizado a base de R-T-B, es necesario eliminar la cantidad de formación de la fase  $R_2T_{17}$  estableciendo la cantidad de R y a cantidad de B dentro de un intervalo apropiado, y establecer la cantidad de R y la cantidad de Ga dentro del intervalo óptimo que corresponde a la cantidad de formación de la fase  $R_2T_{17}$ . Sin embargo, una parte de R se consume como resultado de la unión a oxígeno, nitrógeno y carbono en el proceso de producción de un imán sinterizado a base de R-T-B, de manera que la cantidad real de R utilizada para la fase  $R_2T_{17}$  o R-T-Ga varía en el proceso de producción. Por lo tanto, fue difícil eliminar la cantidad de formación de la fase  $R_2T_{17}$  o RT-Ga controlando la cantidad de R para reducir la cantidad de formación al mismo tiempo que se forma la fase T-Ga. Los resultados de un exhaustivo estudio de los autores de la invención llevó a la conclusión de que, tal como se muestra en el aspecto 1 o 2, es posible ajustar la cantidad de formación de la fase  $R_2T_{17}$  o R-T-Ga utilizando el valor (v) obtenido al sustraer  $6\alpha + 10\beta + 8\gamma$ , donde la cantidad de oxígeno (% en masa) de imán sinterizado a base de R-T-B es  $\alpha$ , la cantidad de nitrógeno (% en masa) es  $\beta$  y la cantidad de carbono (% en masa) es  $\gamma$ , de la cantidad de R(u). Se puede deducir asimismo que se obtiene una alta  $B_r$  y una alta  $H_{cJ}$  incluyendo R (el valor (v) obtenido al sustraer  $6\alpha + 10\beta + 8\gamma$  de la cantidad de R(u)), B, Ga, Cu y Al en una proporción específica. Siendo así, se considera obtener una estructura en la que existen grandes cantidades de una fase R-Ga y R-Ga-Cu en el límite del grano entre dos granos en el imán sinterizado a base de R-T-B en su totalidad y también una gran cantidad de un límite de grano entre dos granos que no incluyen sustancialmente fase R-T-Ga. Gracias a la obtención de dicha estructura, se elimina la reducción de  $H_{cJ}$  como consecuencia de la eliminación de la fase R-T-Ga y también la formación de la cantidad de la fase R-T-Ga, haciendo así posible establecer la cantidad de R y la cantidad de B en una cantidad que no cause una disminución significativa de la relación de existencia en la fase principal, lo cual lleva a una alta  $B_r$ .

Los autores de la invención han realizado un exhaustivo estudio y han observado que es posible obtener un imán sinterizado a base de R-T-B que tiene una alta  $B_r$  y una alta  $H_{cJ}$  utilizando una aleación en polvo adicional con una composición específica y una aleación en polvo principal que tiene un contenido en Ga de 0,4 % en masa o menos en un método en el que se mezclan entre sí uno o más tipos de las aleaciones en polvo adicionales y uno o más tipos de las aleaciones en polvo principales en una cantidad de mezclado específica y la mezcla así obtenida se compacta, se sinteriza y después se somete a un tratamiento térmico, como aspecto preferente en el que se produce un imán sinterizado a base de R-T-B. A continuación, se mencionan los detalles.

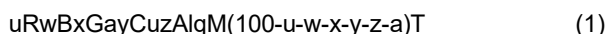
La composición de la aleación en polvo adicional presentada en el aspecto 3 o 4 de la presente invención es la composición en la que las cantidades de R y B son superiores a las de la composición estequiométrica  $R_2T_{14}B$  del imán sinterizado a base de R-T-B. Por lo tanto, la cantidad de R o B es relativamente mayor que la de T en comparación con la composición estequiométrica  $R_2T_{14}B$ . Siendo así, se forman con mayor facilidad la fase  $R_1T_4B_4$  o R-Ga y la fase R-Ga-Cu que la fase R-T-Ga. La aleación en polvo principal puede eliminar la cantidad de Ga y la aleación en polvo de la fase principal ya que la aleación en polvo adicional contiene una gran cantidad de Ga. Por lo tanto, se elimina también la formación de la fase R-T-Ga en la aleación en polvo principal. El uso de la aleación en

polvo adicional y la aleación en polvo principal permite reducir de forma significativa la formación de la cantidad de fase R-T-Ga en la etapa de una aleación en polvo. La eliminación de la cantidad de formación en la etapa de una aleación en polvo permite eliminar la cantidad de formación de la fase de R-T-Ga en el imán sinterizado a base de R-T-B obtenido finalmente.

5 En la tecnología divulgada en el documento de patente 1, dado que no se tiene en cuenta la cantidad de oxígeno, la cantidad de nitrógeno y la cantidad de carbono con respecto a la cantidad de R, es difícil eliminar la cantidad de formación de la fase  $R_2T_{17}$  o R-T-Ga. La tecnología divulgada en el documento de patente 1 es una tecnología en la que se mejora la  $H_{cJ}$  promoviendo la formación de la fase R-T-Ga y no existe ningún concepto técnico de eliminación de la cantidad de formación de la fase R-T-Ga. Por lo tanto, existe la necesidad de disminuir la cantidad de B más que antes para favorecer la formación de la fase  $R_2T_{17}$  que sirve como materia prima de la fase R-T-Ga y aumentar la cantidad de R más que antes para favorecer la formación de la fase R-T-Ga, de manera que la relación de existencia en la fase principal disminuye significativamente, no obteniéndose una alta  $B_r$  en el documento de patente 1. Por lo tanto, en el documento de patente 1 no existe un concepto técnico para el mezclado de la aleación en polvo adicional con la aleación en polvo principal.

[Imán sinterizado a base de R-T-B]

20 Un aspecto de acuerdo con la presente invención se refiere a un imán sinterizado a base de R-T-B representado por la fórmula:



donde

25 R se compone de elemento(s) de tierras raras ligero(s) RL y elemento(s) de tierras raras pesado(s) RH; RL es Nd y/o Pr, RH es al menos uno entre Dy, Tb, Gd y Ho, T es Fe y 10 % en masa o menos de Fe puede estar reemplazado por Co, M es Nb y/o Zr y u, w, x, y, z, q y 100-u-w-x-y-z-q se expresan por lo que respecta al % en masa;

30 dicho RH representa 5 % en masa o menos del imán sinterizado a base de R-T-B, satisfaciéndose las siguientes expresiones de inequación (2) a (5):

$$0,20 \leq x \leq 0,70 \quad (2)$$

$$35 \quad 0,07 \leq y \leq 0,2 \quad (3)$$

$$0,05 \leq z \leq 0,5 \quad (4)$$

$$40 \quad 0 \leq q \leq 0,1 \quad (5)$$

$v = u - (6\alpha + 10\beta + 8\gamma)$ , donde la cantidad de oxígeno (% en masa) del imán sinterizado a base de R-T-B es  $\alpha$ , la cantidad de nitrógeno (% en masa) es  $\beta$  y la cantidad de carbono (% en masa) es  $\gamma$ ; cuando  $0,40 \leq x \leq 0,70$ , v y w satisfacen las siguientes expresiones de inequación (6) y (7):

$$45 \quad 50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 14 \quad (6)$$

$$-12,5w + 38,75 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (7)$$

50 y, cuando  $0,20 \leq x < 0,40$ , v y w satisfacen las siguientes expresiones de inequación (8) y (9) y x satisface la siguiente expresión de inequación (10):

$$50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 15,5 \quad (8)$$

$$55 \quad -12,5w + 39,125 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (9)$$

$$-(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,5 \leq x \leq -(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,8 \quad (10)$$

Alternativamente, una realización de acuerdo con la presente invención se refiere a un imán sinterizado a base de R-T-B representado por la fórmula:



donde

65 R se compone de elemento(s) de tierras raras ligero(s) RL y elemento(s) de tierras raras pesado(s) RH; RL es Nd y/o Pr, RH es al menos uno entre Dy, Tb, Gd y Ho, T es Fe y 10 % en masa o menos de Fe puede estar

reemplazado por Co, M es Nb y/o Zr y u, w, x, y, z, q y 100-u-w-x-y-z-q se expresan por lo que respecta al % en masa y se incluyen las inevitables impurezas; dicho RH representa 5 % en masa o menos del imán sinterizado a base de R-T-B, satisfaciéndose las siguientes expresiones de inequación (2) a (5):

5 
$$0,20 \leq x \leq 0,70 \quad (2)$$

$$0,07 \leq y \leq 0,2 \quad (3)$$

10 
$$0,05 \leq z \leq 0,5 \quad (4)$$

$$0 \leq q \leq 0,1 \quad (5)$$

15  $v = u - (6\alpha + 10\beta + 8\gamma)$ , donde la cantidad de oxígeno (% en masa) del imán sinterizado a base de R-T-B es  $\alpha$ , la cantidad de nitrógeno (% en masa) es  $\beta$  y la cantidad de carbono (% en masa) es  $\gamma$ ; cuando  $0,40 \leq x \leq 0,70$ , v y w satisfacen las siguientes expresiones de inequación (11) y (7):

$$50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 16,25 \quad (11)$$

20 
$$-12,5w + 38,75 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (7)$$

y, cuando  $0,20 \leq x < 0,40$ , v y w satisfacen las siguientes expresiones de inequación (12) y (9):

25 
$$50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 17,0 \quad (12)$$

$$-12,5w + 39,125 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (9)$$

y x satisface la siguiente expresión de inequación (10)

30 
$$-(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,5 \leq x \leq -(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,8 \quad (10)$$

El imán sinterizado a base de R-T-B de la presente invención puede incluir las impurezas inevitables. Incluso aunque el imán sinterizado incluya las impurezas inevitables incluidas normalmente en una aleación de didimio (Nd-Pr), hierro electrolítico, ferro-boro y similares, es posible ejercer el efecto de la presente invención. El imán sinterizado incluye por ejemplo como impurezas inevitables una cantidad traza de La, Ce, Cr, Mn, Si y similares.

En un aspecto de acuerdo con la presente invención, es posible ejercer el efecto de obtener una alta  $B_r$  y una alta  $H_{cJ}$  aplicando la composición representada por la fórmula anterior al imán sinterizado a base de R-T-B. Los detalles se mencionan a continuación.

R en el imán sinterizado a base de R-T-B de acuerdo con un aspecto de la presente invención se compone de elemento(s) de tierras raras ligero(s) RL y elemento(s) de tierras raras pesado(s) RH, RL es Nd y/o Pr, RH es al menos uno entre Dy, Tb, Gd y Ho y RH representa 5 % en masa o menos del imán sinterizado a base de R-T-B. En la presente invención, dado que se puede obtener una alta  $B_r$  y una alta  $H_{cJ}$  incluso cuando no se utiliza ningún elemento de tierras raras pesado, puede reducirse la cantidad de adición de RH incluso cuando se requiere una mayor  $H_{cJ}$ . T es Fe y 10 % en masa o menos de Fe puede estar reemplazado por Co. B es boro.

Es de sobra conocido que cuando se intenta obtener un elemento de tierras raras específico, se incluyen otros elementos de tierras raras no pretendidos como impurezas durante el proceso, por ejemplo refinado. Por lo tanto, R en la frase anterior "R en el imán sinterizado a base de R-T-B de acuerdo con un aspecto de la presente invención se compone de elemento(s) de tierras raras ligero(s) RL y elemento(s) de tierras raras pesado(s) RH, RL es Nd y/o Pr, RH es al menos uno entre Dy, Tb, Gd y Ho y RH representa 5 % en masa o menos de imán sinterizado a base de R-T-B" no excluye completamente el caso de que se incluya el elemento de tierras raras excepto Nd, Pr, Dy, Tb, Gd y Ho y significa que es posible incluir el elemento de tierras raras excepto Nd, Pr, Dy, Tb, Gd y Ho en el grado en el que se suelen incluir como impurezas.

La cantidad de oxígeno (% en masa), la cantidad de nitrógeno (% en masa) y la cantidad de carbono (% en masa) en el aspecto de acuerdo con la presente invención son el contenido (concretamente, el contenido en el caso en el que la masa del imán a base de R-T-B en su totalidad es 100 % en masa) del imán sinterizado a base de una alta  $H_{cJ}$  R-T-B y la cantidad de oxígeno pueden medirse utilizando un método de absorción infrarroja-fusión de gas, se puede medir la cantidad de nitrógeno utilizando un método de conductividad térmica- fusión de gas y la cantidad de carbono se puede medir utilizando un método de absorción infrarroja de combustión. En la presente invención, se utiliza el valor (v) que se obtiene sustrayendo la cantidad consumida como resultado de la unión a oxígeno, nitrógeno y carbono de la cantidad de R(u) aplicando el método descrito a continuación. Siendo así, es posible ajustar la cantidad de formación de la fase  $R_2T_{17}$  o R-T-Ga. El valor v mencionado se determina sustrayendo  $6\alpha + 10\beta + 8\gamma$ , donde la cantidad de oxígeno (% en masa) es  $\alpha$ , la cantidad de nitrógeno (% en masa) es  $\beta$  y la cantidad



de carbono (% en masa) es  $\gamma$ , de la cantidad de R(u).  $6\alpha$  se ha definido, ya que el óxido de  $R_2O_3$  está formado principalmente de impurezas, de modo que se consume R con aproximadamente 6 veces más en masa de oxígeno como óxido.  $10\beta$  se ha definido ya que el nitruro de RN está formado principalmente para que se consuma R con aproximadamente 10 veces más en masa de nitrógeno como nitruro.  $8\gamma$  se ha definido ya que un carburo de  $R_2C_3$  está formado principalmente para que se consuma R con aproximadamente 8 veces más en masa de carbono como carburo.

La cantidad de oxígeno, la cantidad de nitrógeno y la cantidad de carbono se obtienen respectivamente por medición utilizando el analizador de gas que se ha mencionado, mientras que u, w, x, y, z y q entre u, w, x, y, z, q y  $100-u-w-x-y-z-q$ , que son los contenidos correspondientes (% en masa) de R, B, Ga, Cu, Al, M y T presentados en la fórmula (1), pueden medirse utilizando espectrometría de emisión con plasma de acoplamiento inductivo de alta frecuencia (ICP espectrometría de emisión óptica, ICP-OES).  $100-u-w-x-y-z-q$  puede determinarse por cálculo utilizando los valores medidos de u, w, x, y, z y q obtenidos por espectrometría de emisión óptica ICP.

Por consiguiente, la fórmula (1) se define para que la cantidad total de elementos medibles por espectrometría de emisión óptica ICP sea 100 % en masa. Al mismo tiempo, la cantidad de oxígeno, la cantidad de nitrógeno y la cantidad de carbono no se pueden medir por espectrometría de emisión óptica ICP.

Por lo tanto, en un aspecto de acuerdo con la presente invención, es permisible que la cantidad total de u, w, x, y, z, q y  $100-u-w-x-y-z-q$  definida en la fórmula (1), la cantidad de oxígeno ( $\alpha$ ), la cantidad de nitrógeno  $\beta$  y la cantidad de carbono y exceda 100 % en masa.

La cantidad de oxígeno de imán sinterizado a base de R-T-B es preferentemente 0,15 % en masa o menos. Dado que v es el valor obtenido sustrayendo  $6\alpha + 10\beta + 8\gamma$ , donde la cantidad de oxígeno (% en masa) es  $\alpha$ , la cantidad de nitrógeno (% en masa) es  $\beta$  y la cantidad de carbono (% en masa) es  $\gamma$  en la Tabla 1, de la cantidad de R(u), es necesario aumentar la cantidad de R en la etapa de la aleación de materia prima en caso de una gran cantidad de oxígeno ( $\alpha$ ). En particular, entre las regiones 1 y 2 de acuerdo con un aspecto de la presente invención en la Fig. 1 que se menciona más adelante, la región 1 presenta un v relativamente más alto que el de la región 2, de manera que la cantidad de R puede aumentar significativamente en la etapa de la aleación de materia prima en el caso de una gran cantidad de oxígeno ( $\alpha$ ). Siendo así, la relación de existencia de la fase principal disminuye llevando a una reducción de la  $B_r$ . Por lo tanto, en la región 1 de la presente invención de Fig. 1, la cantidad de oxígeno es particularmente preferentemente 0,15 % en masa o menos.

La cantidad de Ga es 0,20 % en masa o más y 0,70 % en masa o menos. Los intervalos de los valores v y w varían en el caso en el que la cantidad de Ga es 0,40 % en masa o más y 0,70 % en masa o menos y el caso en el que la cantidad de Ga es 0,20 % en masa o más y 0,40 % en masa o menos. A continuación, se mencionan los detalles.

En un aspecto de la presente invención, cuando la cantidad de Ga es 0,40 % en masa o más y 0,70 % en masa o menos, v y w tienen la siguiente relación:

$$50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 14 \quad (6)$$

$$-12,5w + 38,75 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (7)$$

Los intervalos de v y w que satisfacen las expresiones de inequación anteriores (6) y (7) se presentan en la Fig. 1. El valor v en la Fig. 1 es el valor obtenido sustrayendo  $6\alpha + 10\beta + 8\gamma$ , donde la cantidad de oxígeno (% en masa) es  $\alpha$ , la cantidad de nitrógeno (% en masa) es  $\beta$  y la cantidad de carbono (% en masa) es  $\gamma$ , de la cantidad de R(u) y w es el valor de la cantidad de B. La expresión de inequación (6), en concreto  $50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 14$  corresponde al intervalo sostenido entre la línea recta que incluye un punto A y un punto B (línea recta que conecta un punto A y un punto B) y una línea recta que incluye un punto C y un punto D (línea recta que conecta un punto C con un punto D) en la Fig. 1, al mismo tiempo que la expresión de inequación (7) concretamente,  $-12,5w + 38,75 \leq v \leq -2,5w + 86,125$  corresponde a un intervalo sostenido entre línea recta que incluye un punto D, un punto F, un punto B y un punto G y una línea recta que incluye un punto C, un punto E, un punto A y un punto G. Las regiones 1 y 2 (región rodeada por un punto A, un punto B, un punto D y un punto C) que satisfacen ambas regiones están dentro del intervalo de acuerdo con un aspecto de la presente invención. Se puede obtener una alta  $B_r$  y una alta  $H_{cJ}$  ajustando v y w dentro del intervalo de las regiones 1 y 2. Se considera que, en lo que respecta a la región 10 (región por debajo de la línea recta que incluye un punto D, un punto F, un punto B y un punto G en el dibujo) que se desvía del intervalo de las regiones 1 y 2, la cantidad de formación de la fase R-T-Ga disminuye ya que v está muy por debajo de w, de modo que no se elimina la fase  $R_2T_{17}$  o no se reduce la cantidad de formación de fase R-Ga y la fase R-Ga-Cu. Siendo así, no se puede obtener una alta  $H_{cJ}$ . Al mismo tiempo, en lo que respecta a la región 20 (la región por encima de la línea recta que incluye un punto C, un punto E, un punto A y un punto G en el dibujo) que se desvía del intervalo de las regiones 1 y 2, la cantidad de Fe es relativamente deficiente ya que w está muy por encima de v. Si la cantidad de Fe es deficiente, R y B se hacen excesivos, de manera que no se forma la fase R-T-Ga, lo cual lleva a la formación de la fase  $R_1Fe_4B_4$ . Siendo así, las cantidades de formación de la fase R-Ga-Cu disminuyen de modo que no se obtiene una alta  $H_{cJ}$ . Asimismo, en la región 30 (la región por encima de la línea recta que incluye un punto C y un punto D en el dibujo) que se desvía del intervalo en las regiones 1 y 2, se forman

las fase R-T-Ga o R-Ga y la fase R-Ga-Cu ya que  $v$  es demasiado grande y también  $w$  es demasiado pequeño y disminuye la relación de existencia de la fase principal, de manera que no se obtiene una alta  $B_r$ . Asimismo, en la región 40 (región en la que se eliminan las regiones 1 y 2 de la región rodeada por un punto C, un punto D y un punto G) que se desvía del intervalo de las regiones 1 y 2, la relación de existencia de la fase principal es alta, mientras que la fase R-T-G apenas se forma ya que la cantidad de R es demasiado pequeña y también la cantidad de B es demasiado grande y disminuye la relación de existencia de la fase R-G y la fase R-Ga-Cu, de modo que no se obtiene una alta  $H_{cJ}$ .

En un aspecto de la presente invención, cuando la cantidad de Ga es 0,20 % en masa o más y menos de 0,40 % en masa,  $v$  y  $w$  tienen la siguiente relación:

$$50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 15,5 \quad (8)$$

$$-12,5w + 39,125 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (9)$$

En la Fig. 2 se presentan los intervalos de la presente invención de  $v$  y  $w$ , que satisfacen las expresiones de inequación (8) y (9). La expresión de inequación (8), concretamente,  $50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 15,5$  corresponde al intervalo sostenido entre una línea recta que incluye un punto A y un punto L y una línea recta que incluye un punto J y un punto K en la Fig. 2 y la expresión de inequación (9), concretamente  $-12,5w + 39,25 \leq v \leq -62,5w + 86,125$  corresponde al intervalo sostenido entre una línea recta que incluye un punto K, un punto I y un punto L y una línea recta que incluye un punto J, un punto H y un punto A. Las regiones 3 y 4 (región rodeada por un punto A, un punto L, un punto K y un punto J) que satisface ambas regiones están dentro del intervalo de acuerdo con un aspecto de la presente invención. Como referencia, la relación de posición (relación relativa entre el intervalo presentado en la Fig. 1 y el intervalo presentado en la Fig. 2) entre la Fig. 1 (cuando la cantidad de Ga es 0,40 % en masa o más y 0,70% o menos en masa o menos) y Fig. 2 (cuando la cantidad de Ga es 0,20 % en masa o más y menos de 0,40 % en masa) se presenta en la Fig. 3. Incluso si  $x(\text{Ga})$  es 0,20 % en masa o más y menos de 0,40 % en masa, se puede obtener una alta  $B_r$  y una alta  $H_{cJ}$  estableciendo apropiadamente  $x$  de acuerdo con  $v$  y  $w$  tal como se menciona a continuación, dentro del intervalo anterior (regiones 3 y 4 rodeadas por un punto A, un punto L, un punto K y un punto J).

Si  $x$  es 0,20 % en masa o más y menos de 0,40 % en masa, en un aspecto de la presente invención,  $x$  se ajusta dentro del intervalo de la siguiente expresión de inequación (10) de acuerdo con  $v$  y  $w$ :

$$-(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,5 \leq x \leq -(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,8 \quad (10)$$

Al ajustar  $x$  dentro del intervalo de la expresión de inequación (10) de acuerdo con  $v$  y  $w$ , es posible formar la fase R-T-Ga mínimamente necesaria para obtener propiedades magnéticas superiores. Si  $x$  está por debajo del intervalo mencionado, puede disminuir  $H_{cJ}$  debido a la cantidad de formación demasiado pequeña de la fase R-T-Ga. Al mismo tiempo, si  $x$  excede el intervalo mencionado, existe Ga innecesario y la relación de existencia de la fase principal puede disminuir llevando a una reducción de la  $B_r$ .

En la presente invención, cuando la cantidad de Ga es 0,40 % en masa o más y 0,70 % en masa o menos, más preferentemente,  $v$  y  $w$  tienen la siguiente relación:

$$50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 16,25 \quad (11)$$

$$-12,5w + 38,75 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (7)$$

Los intervalos de  $v$  y  $w$ , que satisfacen las expresiones de inequación (11) y (7) se presentan en la Fig. 1. La expresión de inequación (11), concretamente  $50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 16,25$  corresponde al intervalo sostenido entre la línea recta que incluye un punto A y un punto B y una línea recta que incluye un punto E y un punto F y la expresión de inequación (7), concretamente  $-12,5w + 38,75 \leq v \leq -62,5w + 86,125$  corresponde al intervalo sostenido entre la línea recta que incluye un punto D, un punto F, un punto B y un punto G y una línea recta que incluye un punto C, un punto E, un punto A y un punto G. La región 2 (región rodeada por un punto A, un punto B, un punto F y un punto E) que satisface ambas regiones está dentro del intervalo de la presente invención. Con la composición mencionada, es posible disminuir  $v$  y aumentar  $w$  al mismo tiempo que se asegura la cantidad de formación de la fase R-T-Ga, de manera que la relación de existencia de la fase principal no disminuye de modo que se obtiene una  $B_r$  más alta.

En la presente invención, cuando la cantidad de Ga es 0,20 % en masa o más y menos de 0,40 % en masa, más preferentemente,  $x$  y  $w$  tienen la relación de las siguientes expresiones de inequación (12) y (9).

$$50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 17,0 \quad (12)$$

$$-12,5w + 39,125 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (9)$$

En la Fig. 2 se presenta el intervalo, que satisface las expresiones de inequación (12) y (9). La expresión de inequación (12), concretamente  $50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 17,0$  corresponde al intervalo sostenido entre una línea recta que incluye un punto A y un punto L y una línea recta que incluye un punto H y un punto I y la expresión de inequación (9), concretamente,  $-12,5w + 39,125 \leq v \leq -62,5w + 86,125$  corresponde al intervalo sostenido entre la línea recta que incluye un punto K, un punto I y un punto L y una línea recta que incluye un punto J, un punto H y un punto A. La región 4 (región rodeada por un punto A, un punto L, un punto I y un punto H) que satisface ambas regiones está dentro del intervalo de acuerdo con un aspecto de la presente invención. Como referencia, la relación de posición relativa entre la Fig. 1 (la cantidad de Ga es 0,40 % en masa o más y 0,70 % en masa o menos) y la Fig. 2 (la cantidad de Ga es 0,20 % en masa o más y menos de 0,40 % en masa) se muestra en la Fig. 3. Ajustando dentro del intervalo mencionado (región 4 rodeado por un punto A, un punto L, un punto I y un punto H) y ajustando también x dentro del intervalo de  $-(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,5 \leq x \leq -(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,8$  tal como se ha mencionado, es posible que disminuya y que aumente w al mismo tiempo que se asegura la cantidad de formación de la fase R-T-Ga, de manera que la relación de existencia de la fase principal no disminuye, obteniendo así una  $B_r$  más alta.

Preferentemente, se incluye Cu en la cantidad de 0,07 % en masa o más y 0,2 % en masa o menos. Si el contenido de Cu es inferior a 0,07 % en masa, la fase R-Ga y la fase R-Ga-Cu no puede formarse fácilmente en el límite del grano entre dos granos, no obteniéndose una alta  $H_{c,j}$ . Si el contenido en Cu excede 0,2 % en masa, el contenido en Cu puede ser demasiado grande como para llevar a cabo la sinterización. El contenido en Cu es más preferentemente 0,08 % en masa o más y 0,15 % en masa o menos.

Se puede incluir Al (0,05 % en masa o más 0,5 % en masa o menos) en el grado en que se incluye normalmente. Se puede mejorar  $H_{c,j}$  incluyendo Al. En el proceso de producción, se incluye generalmente 0,05 % en masa o más de Al como impurezas inevitables y se puede incluir en la cantidad total (la cantidad de Al incluida como impurezas inevitables y la cantidad de Al añadida intencionadamente) de 0,5 % en masa o menos.

Por lo general, se sabe que el crecimiento del grano anormal de los granos de cristal durante la sinterización se elimina incluyendo Nb y/o Zr en el imán sinterizado a base de R-T-B. En la presente invención, Nb y/o Zr puede incluirse en la cantidad total de 0,1 % en masa o menos. Si el contenido total de Nb y/o Zr excede 0,1 % en masa, puede disminuirse una fracción de volumen de la fase principal por la existencia de Nb y/o Zr innecesaria, lo cual conlleva una reducción de  $B_r$ .

En un aspecto de la presente invención, la fase R-T-Ga incluye: R: 15 % en masa o más y 65 % en masa o menos, T: 20 % en masa o más y 80 % en masa o menos y Ga: 2 % en masa o más y 20 % en masa o menos y entre los ejemplos se incluyen un compuesto  $R_6Fe_{13}Ga_1$ . La fase R-T-Ga incluye a veces, como impurezas inevitables, Al, Cu y Si y a veces es por ejemplo un compuesto  $R_6Fe_{13}(Ga_{1-x-y-z}Cu_xAl_ySi_z)$ . La fase R-Ga incluye: R: 70 % en masa o más 95 % en masa o menos, Ga: 5 % en masa o más 30 % en masa o menos y T(Fe): 20 % en masa o menos (incluyendo 0) y entre los ejemplos de los mismos se incluye un compuesto  $R_3Ga_1$ . Asimismo, la fase R-Ga-Cu se obtiene reemplazando una parte de la fase R-Ga de Ga con Cu y entre los ejemplos de los mismos se incluye  $R_3(Ga,Cu)_1$ .

[Método para producir un imán sinterizado a base de R-T-B]

Tal como se ha mencionado, el imán sinterizado a base de R-T-B de la presente invención presentado en el aspecto 1 o 2 puede producirse utilizando un método de producción conocido.

A continuación se describe un ejemplo de un método para producir un imán sinterizado a base de R-T-B. El método para producir un imán sinterizado a base de R-T-B incluye una etapa de obtención de una aleación en polvo, una etapa de compactación, una etapa de sinterización y una etapa de tratamiento térmico. A continuación se describe cada una de las etapas.

(1) Etapa de obtención de aleación en polvo

Como aleación en polvo puede utilizarse un tipo de aleación en polvo (aleación en polvo simple). Se puede utilizar lo que se conoce como método de dos aleaciones para obtener una aleación en polvo (aleación en polvo mixta) mezclando dos o más tipos de aleaciones en polvo para obtener una aleación en polvo con la composición de la presente invención aplicando el método conocido.

En el caso de una aleación en polvo simple, los metales o aleaciones de los elementos correspondientes se preparan para obtener la composición mencionada y se produce una aleación en copos a partir de ella utilizando un método de colada de bandas. La aleación en copos así obtenida se somete a triturado con hidrógeno para obtener un polvo gruesamente pulverizado que tiene un tamaño de 1,0 mm o menos. A continuación, se pulveriza finamente el polvo pulverizado gruesamente con un molino de chorro para obtener un polvo finamente pulverizado (aleación en polvo simple) que tiene un tamaño de grano  $D_{50}$  (valor obtenido a través del método de difracción por láser utilizando un método de dispersión de flujo de aire (tamaño mediana sobre la base del volumen)) de 3 a 7  $\mu m$ . Puede utilizarse un lubricante conocido como asistente de pulverización en un polvo pulverizado gruesamente antes de la

pulverización en el molino de chorro, o una aleación en polvo durante y después la pulverización en molino de chorro.

5 Cuando se utiliza la aleación en polvo mixta, en un aspecto preferente, tal como se presenta a continuación, se preparan primero uno o más tipos de aleaciones en polvo adicionales y uno o más tipos de aleaciones en polvo principales y después se mezclan uno o más tipos de aleaciones en polvo adicionales con uno o más tipos de aleaciones en polvo principales en una cantidad de mezclado específica para obtener una aleación en polvo mixta.

10 Los metales o aleaciones de los elementos correspondientes se preparan para obtener una composición dada, que se menciona con mayor detalle a continuación, a partir de uno o más tipos de aleaciones en polvo adicionales y uno o más tipos de aleaciones en polvo principales. De la misma manera que en el caso de la aleación en polvo simple que se ha mencionado, se produce la aleación en copos y después se somete la aleación en copos a triturado con hidrógeno para obtener un polvo pulverizado gruesamente. La aleación en polvo adicional (polvo pulverizado gruesamente de la aleación en polvo adicional) y la aleación en polvo principal (polvo pulverizado gruesamente de la aleación en polvo principal) se cargan en una mezcladora de tipo V, seguido del mezclado para obtener una aleación en polvo mixta. Cuando se mezcla en la etapa de polvo pulverizado gruesamente de esta forma, se pulveriza finamente la aleación en polvo mixta así obtenida con un molino de chorro para obtener un polvo finalmente pulverizado, obteniendo así una aleación en polvo mixta. Naturalmente, la aleación en polvo adicional y la aleación en polvo principal pueden pulverizarse finalmente respectivamente mediante un molino de chorro para obtener un polvo pulverizado finalmente, que se mezcla después para obtener una aleación en polvo mixta. Si se mezcla una gran cantidad de R de la aleación en polvo adicional, dado que tiene lugar fácilmente la ignición durante la pulverización final, preferentemente se pulverizan finamente la aleación en polvo adicional y la aleación en polvo principal después del mezclado.

25 En este punto, la "aleación en polvo adicional" tiene la composición dentro del intervalo que se menciona con mayor detalle a continuación. Es posible utilizar varios tipos de aleaciones en polvo adicionales. En tal caso, cada una de las aleaciones en polvo adicionales tiene la composición dentro del intervalo mencionado con detalle a continuación. La "aleación en polvo principal" significa una aleación en polvo que tiene la composición que se desvía del intervalo de la composición de la aleación en polvo adicional y se prepara también para obtener la composición del imán sinterizado a base de R-T-B antes mencionado por mezclado con la aleación en polvo adicional. Se pueden utilizar varios tipos de aleaciones en polvo principales. En tal caso, debe ser una aleación en polvo principal que tenga una composición que se desvíe de la composición de la aleación en polvo adicional y se prepara también para obtener la composición del imán sinterizado a base de R-T-B antes mencionado mezclando varios tipos de aleaciones en polvo principales con la aleación en polvo adicional.

35 [Aleación en polvo adicional]

En un aspecto preferente, la aleación en polvo adicional se representa mediante la fórmula:



y tiene la composición representada por:

45 
$$32 \% \leq a \leq 66 \% \quad (14)$$

$$0,2 \% \leq b \quad (15)$$

$$0,7 \% \leq c \leq 12 \% \quad (16)$$

50 
$$0 \% \leq d \leq 4 \% \quad (17)$$

$$0 \% \leq e \leq 10 \% \quad (18)$$

$$0 \% \leq f \leq 2 \% \quad (19)$$

55 
$$100-a-b-c-d-e-d-f \leq 72,4 \quad (20)$$

60 y el resto T (R se compone de elemento(s) de tierras raras ligero(s) RL y elemento(s) de tierras raras pesado(s) RH, RL es Nd y/o Pr, RH es al menos uno entre Dy, Tb, Gd y Ho, T es Fe y 10 % en masa o menos de Fe puede estar reemplazado por Co, M es Nb y/o Zr, a, b, c, d, e, f y 100-a-b-c-d-e-f se expresan por lo que respecta al % en masa y se incluyen las impurezas inevitables).

65 Con la composición anterior, la aleación en polvo adicional tiene la composición en la que las cantidades de R y B son relativamente más que las de la composición estequiométrica R<sub>2</sub>T<sub>14</sub>B. Por lo tanto, la fase R<sub>1</sub>T<sub>4</sub>B<sub>4</sub> y la fase R-Ga se forman con mayor facilidad que la fase R-T-Ga.

Si la cantidad de R(a) es menos de 32 % en masa, la cantidad de R es relativamente demasiado pequeña para la composición estequiométrica de  $R_2T_{14}B$ , de manera que es difícil formar la fase R-Ga. En cambio, si la cantidad de R(a) excede el 66 % en masa, se produce un problema de oxidación por la cantidad demasiado grande de R lo cual causa el deterioro de las propiedades magnéticas y riesgo de ignición, con el resultado de problemas de producción.

5 Si la cantidad de B(b) es menos de 0,2 % en masa, la cantidad de B es relativamente demasiado pequeña para la composición estequiométrica de  $R_2T_{14}B$ , de manera que se forma la fase R-T-Ga más fácilmente que la fase  $R_1T_4B_4$ .

10 Si la cantidad de Ga(c) es menos de 0,7 % en masa, no se puede formar fácilmente la fase R-Ga, en cambio si la cantidad de Ga(c) excede 12 % en masa, se puede segregar Ga, no obteniéndose así un imán sinterizado a base de R-T-B que tiene una alta  $H_{cJ}$ .

15 La aleación en polvo adicional satisface la expresión de inecuación (20), concretamente, la relación:  $100-a-b-c-d-e-f \leq 72,4b$ . La composición en la que la cantidad de B es más de T(Fe) en relación con la composición estequiométrica  $R_2T_{14}B$  se obtiene satisfaciendo la relación de la expresión de inecuación (20). Por lo tanto, se forman fácilmente la fase  $R_1T_4B_4$  y la fase R-Ga haciendo posible eliminar la formación de la fase R-T-Ga.

20 La aleación en polvo adicional tiene un contenido en Ga mayor que la de la aleación en polvo principal. La razón es que la formación de la fase R-T-Ga en la aleación en polvo principal puede no eliminarse si el contenido en Ga de la aleación en polvo adicional es inferior a la de la aleación en polvo principal. La aleación en polvo adicional puede ser de un tipo de aleación en polvo o puede componerse de dos o más tipos de aleaciones en polvo cada uno de ellos con una composición diferente. Cuando se utilizan dos o más tipos de aleaciones en polvo adicionales, la composición entra dentro del intervalo mencionado en todas las aleaciones en polvo adicionales.

25 [Aleación en polvo principal]

En un aspecto preferente, el contenido en Ga de la aleación en polvo principal es 0,4 % en masa o menos y la aleación en polvo principal se produce con una composición opcional ajustada para obtener un imán sinterizado a base de R-T-B con la composición de la presente invención por mezclado con la aleación en polvo adicional. Si el contenido en Ga de la aleación en polvo principal excede el 0,4 % en masa, no se puede eliminar la formación de la fase R-T-Ga en la aleación en polvo principal. La aleación en polvo principal puede ser de un tipo de aleación en polvo o puede estar compuesta de dos o más tipos de aleaciones en polvo con una composición diferente cada una.

35 En un aspecto preferente de la presente invención, la cantidad de mezclado de la aleación en polvo adicional en la aleación en polvo mixta está dentro del intervalo de 0,5 % en masa o más y 40 % en masa o menos sobre la base de 100 % en masa de la aleación en polvo mixta. El imán sinterizado a base de R-T-B producido mediante el control de la cantidad de mezclado en la aleación en polvo adicional dentro del intervalo indicado puede presentar una alta  $B_r$  y una alta  $H_{cJ}$ .

40 (2) Etapa de compactación

Utilizando la aleación en polvo así obtenida (aleación en polvo simple o aleación en polvo mixta), se realiza la compactación bajo un campo magnético para obtener un compacto. La compactación bajo un campo magnético puede realizarse utilizando cualquiera de los métodos de compactación bajo un campo magnético conocidos incluyendo el método de compactación en seco en el que se carga una aleación en polvo seca en la cavidad de un molde y se compacta después mientras se aplica un campo magnético y un método de compactación en húmedo en el que se inyecta una suspensión (que contiene la aleación en polvo dispersada) en una cavidad de un molde y después se compacta al mismo tiempo que se descarga un medio de dispersión de la suspensión.

50 (3) Etapa de sinterización

Se sinteriza el compacto para obtener un cuerpo sinterizado. Se puede utilizar un método conocido para sinterizar el compacto. Para evitar que se produzca la oxidación debido a una atmósfera durante la sinterización, preferentemente, se lleva a cabo la sinterización en una atmósfera de vacío o un gas atmosférico. Preferentemente, se utiliza como gas atmosférico un gas inerte como helio o argón.

(4) Etapa de tratamiento térmico

60 El cuerpo sinterizado así obtenido se somete preferentemente a un tratamiento térmico con el fin de mejorar las propiedades magnéticas. Para el tratamiento térmico pueden emplearse las condiciones conocidas de temperatura y tiempo del tratamiento térmico. Para ajustar el tamaño del imán sinterizado, se puede someter el imán sinterizado obtenido a mecanizado, como triturado. En tal caso, se puede llevar a cabo el tratamiento térmico antes o después del mecanizado. Asimismo, se puede someter el imán sinterizado a un tratamiento superficial. El tratamiento superficial puede ser un tratamiento superficial conocido y es posible llevar a cabo tratamiento superficiales, como por ejemplo, deposición de vapor Al, electrodepósito con Ni, revestimiento con resina y similares.

65

## Ejemplos

A continuación, se describirá la presente invención con mayor detalle mediante ejemplos, si bien la presente invención no queda limitada con ellos.

5

### <Ejemplo 1>

Se mezclaron metal Nd, metal Pr, metal Dy, metal Tb, aleación de ferro-boro, Co electrolítico, metal Al, metal Cu, metal Ga, aleación de ferro-niobio, aleación de ferro-circonio y hierro electrolítico (cualquiera de los metales tiene una pureza de 99 % en masa o más) para obtener una composición determinada y a continuación, se fundieron estas materias primas y se sometieron a colada según un método de colada de bandas para obtener una aleación en copos con un espesor de 0,2 a 0,4 mm. Se sometió la aleación en copos obtenida a triturado con hidrógeno en una atmósfera de hidrógeno bajo una mayor presión y a continuación se sometió a un tratamiento de deshidrogenación por calentamiento a 550 °C al vacío y enfriado para obtener un polvo pulverizado gruesamente. Se añadió al polvo pulverizado gruesamente así obtenido estearato de zinc como lubricante en la proporción de 0,04 % en masa sobre la base de un 100 % en masa del polvo pulverizado gruesamente, seguido del mezclado. Utilizando un pulverizador de tipo flujo de aire (máquina de molino a chorro), se sometió la mezcla a pulverización en seco en un flujo de gas nitrógeno para obtener un polvo finalmente pulverizado (aleación en polvo) que tenía un tamaño de grano  $D_{50}$  de 4  $\mu\text{m}$ . Al mezclar el gas nitrógeno con aire atmosférico durante la pulverización, se ajustó la concentración de oxígeno en un gas nitrógeno durante la pulverización. Cuando se mezcló con aire no atmosférico, la concentración de oxígeno en el gas nitrógeno durante la pulverización es 50 ppm o menos y la concentración de oxígeno en el gas nitrógeno aumentó a 5.000 ppm a un máximo por mezclado con aire atmosférico para producir polvos pulverizados finalmente con una cantidad de oxígeno diferente cada uno de ellos. El tamaño de grano  $D_{50}$  es una mediana del tamaño sobre la base del volumen obtenido por método de difracción con láser utilizando un método de dispersión de flujo de aire. En la Tabla 1, se midió O (cantidad de oxígeno) por método de absorción infrarroja con fusión de gas, se midió N (cantidad de nitrógeno) por método de conductividad térmica – fusión de gas y se midió la cantidad de C (cantidad de carbono) por método de absorción infrarroja por combustión, utilizando un analizador de gas.

Se añadió al polvo pulverizado finamente estearato de zinc como lubricante en la proporción de 0,05 % en masa por cada 100 % en masa del polvo finalmente pulverizado, seguido de mezclado y posterior compactación en un campo magnético para obtener un compacto. El aparato de compactación utilizado fue lo que se conoce como dispositivo de compactación de campo magnético perpendicular (dispositivo de compactación de campo magnético transversal) en el que la dirección de aplicación del campo magnético y la dirección de presurización son perpendiculares entre sí.

35

Se sinterizó el compacto así obtenido al vacío a 1.020 °C durante 4 horas y después se apagó para obtener un imán sinterizado a base de R-T-B. El imán sinterizado tenía una densidad de 7,5  $\text{Mg}/\text{m}^3$  o más. Para determinar la composición del imán sinterizado así obtenido, se midió el contenido de Nd, Pr, Dy, Tb, B, Co, Al, Cu, Ga, Nb y Zr por espectrometría de emisión óptica ICP. En la Tabla 1 se muestran los resultados de la medida. El resto (obtenido al sustraer el contenido de Nd, Pr, Dy, Tb, B, Co, Al, Cu, Ga, Nb y Zr, obtenido como resultado de la medición, de 100 % en masa) fue considerado como el contenido en Fe. Asimismo, en la Tabla 1 se muestran los resultados del análisis de gas (O, N y C). Se sometió el cuerpo sinterizado a tratamiento térmico de retención a 800 °C durante 2 horas y enfriado a temperatura ambiente, seguido de retención a 500 °C durante 2 horas y enfriamiento a temperatura ambiente. Se mecanizó el imán sinterizado así obtenido tras el tratamiento térmico para producir muestras de 7 mm de longitud x 7 mm de ancho x 7 mm de espesor y a continuación, se midieron la  $B_r$  y la  $H_{cJ}$  de cada muestra con un trazador B-H. En la Tabla se presentan los resultados de las medidas.

45

[Tabla 1]  
Resultados del análisis de Imán sinterizado a base de R-T-B (% en masa)

No.	Resultados del análisis de Imán sinterizado a base de R-T-B (% en masa)														O	N	C
	Nd	Pr	Dy	Tb	B	Co	Al	Cu	Ga	Nb	Zr	Fe					
01	22,7	7,4	0	0	0,910	0,5	0,10	0,08	0,47	0,00	0,00	resto	0,10	0,05	0,10	Presente invención	
02	22,7	7,4	0	0	0,910	0,5	0,05	0,08	0,47	0,00	0,00	resto	0,10	0,05	0,10	Presente invención	
03	22,7	7,4	0	0	0,910	2,0	0,10	0,08	0,47	0,00	0,00	resto	0,10	0,05	0,10	Presente invención	
04	22,7	7,4	0	0	0,910	0,5	0,05	0,08	0,42	0,10	0,00	resto	0,10	0,05	0,10	Presente invención	
05	22,7	7,4	0	0	0,910	0,5	0,05	0,08	0,41	0,00	0,10	resto	0,10	0,05	0,10	Presente invención	
06	22,7	7,4	0	0	0,910	0,5	0,05	0,08	0,40	0,03	0,05	resto	0,10	0,05	0,10	Presente invención	
07	22,7	7,4	0	0	0,910	0,5	0,10	0,08	0,43	0,00	0,00	resto	0,10	0,05	0,10	Presente invención	
08	22,7	7,4	0	0	0,905	0,5	0,10	0,08	0,26	0,00	0,00	resto	0,10	0,05	0,10	Ejemplo comparativo	
09	22,7	7,4	0	0	0,910	0,5	0,10	0,08	0,70	0,00	0,00	resto	0,10	0,05	0,10	Presente invención	
10	22,7	7,4	0	0	0,910	0,0	0,10	0,08	0,47	0,00	0,00	resto	0,10	0,05	0,10	Presente invención	
11	23,0	7,6	0	0	0,910	0,5	0,10	0,12	0,46	0,00	0,00	resto	0,39	0,01	0,08	Presente invención	
12	23,0	7,6	0	0	0,907	0,5	0,10	0,12	0,48	0,00	0,00	resto	0,44	0,01	0,08	Ejemplo comparativo	
13	23,0	7,6	0	0	0,905	0,5	0,10	0,12	0,46	0,00	0,00	resto	0,08	0,04	0,09	Presente invención	
14	23,1	7,6	0	0	0,937	0,5	0,10	0,13	0,47	0,00	0,00	resto	0,08	0,04	0,09	Ejemplo comparativo	
15	23,1	7,6	0	0	0,920	0,5	0,10	0,12	0,47	0,00	0,00	resto	0,08	0,05	0,09	Ejemplo comparativo	
16	23,1	7,6	0	0	0,878	0,5	0,10	0,12	0,48	0,00	0,00	resto	0,41	0,01	0,08	Ejemplo comparativo	
17	23,0	7,7	0	0	0,930	0,5	0,10	0,13	0,48	0,00	0,00	resto	0,41	0,01	0,08	Ejemplo comparativo	
18	23,0	7,7	0	0	0,897	0,5	0,10	0,12	0,47	0,00	0,00	resto	0,40	0,01	0,08	Presente invención	
19	23,1	7,6	0	0	0,937	0,5	0,10	0,14	0,50	0,00	0,00	resto	0,24	0,03	0,08	Ejemplo comparativo	
20	23,1	7,7	0	0	0,887	0,5	0,10	0,12	0,47	0,00	0,00	resto	0,39	0,01	0,07	Presente invención	
21	23,1	7,7	0	0	0,894	0,5	0,10	0,12	0,50	0,00	0,00	resto	0,07	0,05	0,09	Presente invención	
22	23,1	7,7	0	0	0,860	0,5	0,10	0,12	0,47	0,00	0,00	resto	0,39	0,01	0,09	Ejemplo comparativo	
23	23,1	7,7	0	0	0,937	0,5	0,10	0,13	0,10	0,00	0,00	resto	0,43	0,01	0,08	Ejemplo comparativo	
24	23,4	7,4	0	0	0,974	0,5	0,10	0,15	0,49	0,00	0,00	resto	0,08	0,04	0,09	Ejemplo comparativo	
25	23,2	7,7	0	0	0,860	0,5	0,10	0,16	0,51	0,00	0,00	resto	0,24	0,03	0,09	Presente invención	
26	23,2	7,6	0	0	0,918	0,5	0,10	0,13	0,49	0,00	0,00	resto	0,23	0,03	0,08	Presente invención	
27	23,2	7,7	0	0	0,850	0,5	0,10	0,12	0,52	0,00	0,00	resto	0,08	0,06	0,09	Ejemplo comparativo	
28	23,2	7,7	0	0	0,875	0,5	0,10	0,20	0,55	0,00	0,00	resto	0,08	0,04	0,09	Presente invención	
29	23,3	7,6	0	0	0,890	0,5	0,10	0,15	0,45	0,00	0,00	resto	0,22	0,04	0,08	Presente invención	
30	23,4	7,6	0	0	0,896	0,5	0,10	0,15	0,10	0,00	0,00	resto	0,08	0,05	0,10	Ejemplo comparativo	

No.	Resultados del análisis de Imán sinterizado a base de R-T-B (% en masa)														C	
	Nd	Pr	Dy	Tb	B	Co	Al	Cu	Ga	Nb	Zr	Fe	O	N		
31	23,4	7,6	0	0	0,904	0,5	0,10	0,16	0,49	0,00	0,09	resto	0,07	0,05	0,11	Presente invención
32	23,3	7,9	0	0	0,830	0,5	0,20	0,11	0,15	0,00	0,00	resto	0,10	0,05	0,09	Ejemplo comparativo
33	23,3	7,9	0	0	0,830	0,5	0,20	0,11	0,15	0,00	0,00	resto	0,40	0,02	0,09	Ejemplo comparativo
34	23,6	7,7	0	0	0,883	0,5	0,10	0,15	0,48	0,00	0,00	resto	0,08	0,05	0,11	Presente invención
35	23,7	7,6	0	0	0,910	0,5	0,10	0,15	0,51	0,00	0,00	resto	0,09	0,05	0,10	Ejemplo comparativo
36	23,6	7,7	0	0	0,891	0,5	0,10	0,15	0,94	0,00	0,00	resto	0,08	0,05	0,10	Ejemplo comparativo
37	23,6	7,8	0	0	0,890	0,5	0,10	0,16	0,50	0,00	0,00	resto	0,07	0,03	0,07	Presente invención
38	23,7	7,7	0	0	0,910	0,5	0,10	0,15	0,51	0,00	0,00	resto	0,08	0,04	0,08	Ejemplo comparativo
39	24,0	8,0	0	0	0,870	0,5	0,20	0,05	0,5	0,00	0,00	resto	0,10	0,05	0,09	Ejemplo comparativo
40	24,0	8,0	0	0	0,870	0,5	0,20	0,05	0,57	0,00	0,00	resto	0,43	0,02	0,09	Ejemplo comparativo
41	24,0	8,0	0	0	0,860	0,5	0,20	0,30	0,57	0,00	0,00	resto	0,10	0,05	0,09	Ejemplo comparativo
42	24,0	8,0	0	0	0,860	0,5	0,20	0,30	0,57	0,00	0,00	resto	0,41	0,02	0,09	Ejemplo comparativo
43	24,2	8,1	0	0	0,900	0,5	0,10	0,14	0,45	0,00	0,00	resto	0,09	0,05	0,11	Ejemplo comparativo
44	24,3	8,2	0	0	0,883	0,5	0,10	0,13	0,46	0,00	0,00	resto	0,10	0,05	0,11	Ejemplo comparativo
45	24,5	8,3	0	0	0,937	0,5	0,10	0,13	0,10	0,00	0,00	resto	0,43	0,01	0,08	Ejemplo comparativo
46	23,0	7,6	0	0	0,923	0,5	0,10	0,12	0,48	0,00	0,00	resto	0,39	0,01	0,08	Ejemplo comparativo
47	21,3	7,0	2	0	0,940	0,5	0,10	0,13	0,10	0,00	0,00	resto	0,10	0,05	0,10	Ejemplo comparativo
48	21,5	7,1	0	2	0,905	0,5	0,10	0,12	0,46	0,00	0,00	resto	0,39	0,01	0,08	Presente invención
49	21,5	7,1	2	0	0,905	0,5	0,10	0,12	0,46	0,00	0,00	resto	0,39	0,01	0,08	Presente invención
50	21,5	7,2	2	0	0,944	0,5	0,10	0,13	0,10	0,00	0,00	resto	0,40	0,01	0,08	Ejemplo comparativo
51	21,5	7,2	2	0	0,890	0,5	0,10	0,13	0,10	0,00	0,00	resto	0,40	0,01	0,08	Ejemplo comparativo
52	20,7	6,7	4	0	0,940	0,5	0,10	0,12	0,10	0,00	0,00	resto	0,40	0,01	0,08	Ejemplo comparativo
53	20,7	6,7	4	0	0,894	0,5	0,10	0,12	0,46	0,00	0,00	resto	0,40	0,01	0,08	Presente invención
54	20,7	6,7	3	0	0,905	0,5	0,10	0,08	0,44	0,00	0,00	resto	0,10	0,05	0,10	Presente invención
55	20,7	6,7	3	0	0,905	0,5	0,10	0,08	0,26	0,00	0,00	resto	0,10	0,05	0,10	Presente invención
56	30,3	0,0	0	0	0,910	0,5	0,05	0,08	0,45	0,00	0,00	resto	0,10	0,05	0,10	Presente invención
57	21,5	7,1	1	1	0,905	0,5	0,10	0,12	0,46	0,00	0,00	resto	0,39	0,01	0,08	Presente invención
58	22,1	7,2	0	0	0,850	0,5	0,10	0,13	0,54	0	0	resto	0,07	0,01	0,06	Presente invención
59	21,6	7,2	0	0	0,889	0,5	0,10	0,11	0,46	0	0	resto	0,08	0,01	0,06	Presente invención
60	21,6	7,1	0	0	0,910	0,5	0,10	0,11	0,43	0	0	resto	0,08	0,01	0,07	Presente invención
61	22,4	7,3	0	0	0,900	0,5	0,10	0,11	0,38	0	0,09	resto	0,09	0,06	0,07	Presente invención



ES 2 717 445 T3

[Tabla 2]

No.	$\mu$	$v$	$w$	Región	$B_r$ (T)	$H_{cJ}$ (kA/m)	
01	30,1	28,27	0,910	2	1,396	1502	Presente invención
02	30,1	28,27	0,910	2	1,411	1454	Presente invención
03	30,1	28,27	0,910	2	1,401	1500	Presente invención
04	30,1	28,27	0,910	2	1,407	1484	Presente invención
05	30,1	28,27	0,910	2	1,408	1473	Presente invención
06	30,1	28,27	0,910	2	1,409	1480	Presente invención
07	30,1	28,27	0,910	2	1,400	1498	Presente invención
08	30,1	28,27	0,905	2	1,401	1280	Ejemplo comparativo
09	30,1	28,27	0,910	2	1,396	1502	Presente invención
10	30,1	28,27	0,910	2	1,395	1510	Presente invención
11	30,6	27,45	0,910	2	1,361	1500	Presente invención
12	30,6	27,21	0,907	10	1,363	1213	Ejemplo comparativo
13	30,6	29,02	0,905	2	1,376	1460	Presente invención
14	30,7	29,04	0,937	20	1,398	1275	Ejemplo comparativo
15	30,7	28,94	0,920	20	1,390	1279	Ejemplo comparativo
16	30,7	27,50	0,878	10	1,345	1145	Ejemplo comparativo
17	30,7	27,54	0,930	40	1,396	1212	Ejemplo comparativo
18	30,7	27,51	0,897	2	1,361	1350	Presente invención
19	30,7	28,36	0,937	20	1,397	1249	Ejemplo comparativo
20	30,8	27,76	0,887	2	1,371	1340	Presente invención
21	30,8	29,16	0,894	1	1,360	1525	Presente invención
22	30,8	27,67	0,860	10	1,322	1010	Ejemplo comparativo
23	30,8	27,52	0,937	20	1,405	1180	Ejemplo comparativo
24	30,8	29,23	0,974	20	1,402	1200	Ejemplo comparativo
25	30,9	28,44	0,850	1	1,347	1380	Presente invención
26	30,8	28,55	0,918	2	1,385	1490	Presente invención
27	30,9	29,11	0,850	30	1,320	1600	Ejemplo comparativo
28	30,9	29,25	0,875	1	1,350	1548	Presente invención
29	30,9	28,58	0,890	1	1,360	1470	Presente invención
30	31,0	29,27	0,896	1	1,400	1272	Ejemplo comparativo
31	31,0	29,33	0,904	1	1,389	1428	Presente invención
32	31,2	29,36	0,830	30	1,315	1550	Ejemplo comparativo
33	31,2	27,86	0,830	10	1,310	1510	Ejemplo comparativo
34	31,3	29,43	0,883	1	1,371	1580	Presente invención
35	31,3	29,48	0,910	20	1,403	1250	Ejemplo comparativo
36	31,3	29,57	0,891	1	1,323	1540	Ejemplo comparativo
37	31,4	30,09	0,890	1	1,370	1573	Presente invención
38	31,4	29,88	0,910	20	1,403	1270	Ejemplo comparativo
39	32,0	30,23	0,870	30	1,320	1460	Ejemplo comparativo
40	32,0	28,55	0,870	1	1,315	1420	Ejemplo comparativo
41	32,0	30,24	0,860	30	1,310	1480	Ejemplo comparativo
42	32,0	28,68	0,860	1	1,305	1440	Ejemplo comparativo
43	32,3	30,47	0,900	20	1,326	1358	Ejemplo comparativo
44	32,5	30,48	0,883	30	1,323	1455	Ejemplo comparativo
45	32,8	29,52	0,937	20	1,363	1261	Ejemplo comparativo
46	30,6	27,43	0,923	40	1,381	1280	Ejemplo comparativo
47	30,3	28,44	0,940	20	1,389	1492	Ejemplo comparativo
48	30,6	27,52	0,905	2	1,317	1960	Presente invención
49	30,6	27,55	0,905	2	1,317	1800	Presente invención
50	30,7	27,62	0,944	20	1,360	1490	Ejemplo comparativo
51	30,7	27,62	0,890	10	1,357	1272	Ejemplo comparativo
52	31,4	27,78	0,940	20	1,324	1730	Ejemplo comparativo
53	31,4	27,78	0,894	2	1,280	2051	Presente invención
54	30,4	28,50	0,905	2	1,328	1978	Presente invención
55	30,4	28,50	0,905	2	1,329	1760	Ejemplo comparativo
56	30,3	28,40	0,910	2	1,420	1400	Presente invención
57	30,6	26,52	0,905	2	1,317	1880	Presente invención
58	29,3	28,30	0,850	1	1,387	1410	Presente invención
59	28,8	27,73	0,889	2	1,415	1400	Presente invención
60	28,7	27,57	0,910	2	1,401	1525	Presente invención
61	29,7	27,97	0,900	2	1,411	1440	Presente invención

u en la Tabla 2 es el valor obtenido al sumar las cantidades de Nd, Pr, Dy y Tb en la Tabla 1 y v es el valor obtenido al sustraer  $6\alpha + 10\beta + 8\gamma$ , donde la cantidad de oxígeno (% en masa) es  $\alpha$ , la cantidad de nitrógeno (% en masa) es  $\beta$  y la cantidad de carbono (% en masa) es  $\gamma$  en la Tabla 1, a partir de u. En lo que respecta a w, la cantidad de B en la Tabla 1 se transfirió como tal. La región en Tabla 2 indica la posición de v y w en la Fig. 1. La columna en la tabla se rellenó con "1" cuando v y w existe en la región 1 en la Fig. 1, al tiempo que se rellenó la columna en la tabla con "2" cuando v y w existe en la región 2 en la Fig. 1. Asimismo, cuando v y w existe en la región salvo las regiones 1 y 2 en la Fig. 1, se rellenó la columna de la tabla con cualquiera entre 10, 20, 30 y 40 de acuerdo con la posición. Por ejemplo, en lo que respecta al No. 01, dado que v es 28,27 % en masa y w es 0,910 % en masa y v y w existe en la región 2 en la Fig. 1, se rellenó la columna en la tabla con "2". En lo que respecta al No. 21, dado que v es 29,6 % en masa y w es 0,894 % en masa y v y w existe en la región 1 en la Fig. 1, se rellenó la columna de la tabla con "1". Asimismo, en lo que respecta al No. 47, dado que v es 28,44 % en masa y w es 0,940 % en masa y v y w existen en la región 20 en la Fig. 1, se rellenó la columna de la tabla con "20".

La Fig. 4 es un gráfico explicativo en el que se muestran los valores correspondientes de v y w de las muestras del ejemplo y las muestras del ejemplo comparativo (concretamente, la muestra mencionada en la Tabla 2) representadas en el gráfico de la Fig. 1. A partir de la Fig. 4, es posible comprender fácilmente que las muestras del ejemplo entran dentro del intervalo de la región 1 o 2, al tiempo que las muestras de los ejemplos comparativos se desvían de las regiones 1 y 2.

Tal como se ha mencionado, en la presente invención, si x es 0,40 % en masa o más y 0,70 % en masa o menos, v y w se incluyen en las siguientes proporciones:

$$50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 14 \quad (6)$$

$$-12,5w + 38,75 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (7)$$

preferentemente,

$$50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 16,25 \quad (11)$$

$$-12,5w + 38,75 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (7)$$

Cuando se incluye en la proporción indicada, los intervalos de v y w corresponden a las regiones 1 y 2, o la región 2 en la Fig. 1

Tal como se muestra en la Tabla 2, cuando no se incluyen Dy y Tb en la aleación materia prima, cualquiera de las muestras del ejemplo (muestras ilustrativas excepto los Nos. 48, 49, 53, 54 y 57), que presenta la relación entre v y w localizada en la región de la presente invención (regiones 1 y 2 en la Fig. 12) y que satisfacen también las siguientes expresiones de inequación:  $0,40 \leq x(\text{Ga}) \leq 0,70$ ,  $0,07 \leq y(\text{Cu}) \leq 0,2$ ,  $0,05 \leq z(\text{Al}) \leq 0,5$  y  $0 \leq q(\text{M})$  (Nb y/o Zr)  $\leq 0,1$ , tiene propiedades magnéticas superiores de  $B_r \geq 1,340\text{T}$  y  $H_{cJ} \geq 1,300 \text{ kA/m}$ . Al mismo tiempo, en lo que respecta a los ejemplos comparativos (por ejemplo, las muestras Nos. 12, 16, 22 y 35) en los que las cantidades de Ga, Cu y Al entran dentro del intervalo de la presente invención, pero v y w se desvían del intervalo de la presente invención (regiones excepto las regiones 1 o 2 de la Fig. 1) y los ejemplos comparativos (por ejemplo, las muestras Nos. 08, 30, 36, 40 y 42) en los que v y w entran dentro del intervalo de la presente invención (región 1 o 2 de la Fig. 1) pero las cantidades de Ga y Cu se desvían del intervalo de la presente invención, no se obtienen propiedades magnéticas superiores de  $B_r \geq 1,340\text{T}$  y  $H_{cJ} \geq 1,300 \text{ kA/m}$ . En particular, tal como se puede deducir de la muestra No. 07 que es el ejemplo y la muestras No. 08 que es el ejemplo comparativo con la misma composición salvo que el contenido de Ga es 0,17 % en masa inferior que el de la muestra No. 07,  $H_{cJ}$  disminuye significativamente cuando Ga se desvía del intervalo de la presente invención incluso si v y w entran dentro del intervalo de la presente invención. En lo que respecta a la muestra No. 08, la cantidad de Ga se desvía del intervalo de Ga de la presente invención  $(-(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,5 \leq x(\text{Ga}) \leq -(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,8)$  si la cantidad de Ga es 0,20 % en masa o más y menos de 0,40 % en masa, de manera que es imposible formar la fase R-T-Ga mínimamente necesaria para obtener propiedades magnéticas superiores, lo cual conlleva una significativa reducción de  $H_{cJ}$ .

Cuando se incluyen Dy o Tb en la aleación materia prima, disminuye  $B_r$  y mejora  $H_{cJ}$  de acuerdo con el contenido de Dy y Tb. En este caso,  $B_r$  disminuye en aproximadamente 0,024T si se incluye 1 % en masa de Dy o Tb.  $H_{cJ}$  aumenta en aproximadamente 160 kA/m si se incluye 1 % en masa de Dy y aumenta en aproximadamente 240 kA/m si se incluye 1 % en masa de Tb.

Por lo tanto, en la presente invención, cuando no se incluyen Dy ni Tb en la aleación materia prima, tal como se ha indicado, ya que tienen propiedades magnéticas de  $B_r \geq 1,340\text{T}$  y  $H_{cJ} \geq 1,300 \text{ kA/m}$ , se obtienen propiedades magnéticas de  $B_r(\text{T}) \geq 1,340 - 0,024[\text{Dy}] - 0,024[\text{Tb}]$  y  $H_{cJ}(\text{kA/m}) \geq 1,300 + 160[\text{Dy}] + 240[\text{Tb}]$  de acuerdo con el contenido de Dy o Tb. [Dy] o [Tb] representa cada uno de los contenidos (% en masa) de Dy o Tb.

Tal como se presenta en la Tabla 1, cualquiera de los ejemplos (muestras Nos. 48, 49, 53, 54 y 57) en los que se incluyen Dy y Tb en la aleación de materia prima tiene propiedades magnéticas superiores de  $B_r(\text{T}) \geq 1,340 -$

0,024[Dy] - 0,024[Tb] y  $H_{cJ}$  (kA/m)  $\geq 1,300 + 160[Dy] + 240[Tb]$ . Al mismo tiempo, cualquiera de los ejemplos comparativos (muestras Nos. 47, 50, 51, 52 y 55) no tiene propiedades magnéticas superiores de  $B_r$  (T)  $\geq 1,340 - 0,024[Dy] - 0,024[Tb]$  y  $H_{cJ}$  (kA/m)  $\geq 1,300 + 160[Dy] + 240[Tb]$ . En particular, tal como se puede deducir de la muestra No. 54 que es un ejemplo y la muestra No. 55 que es un ejemplo comparativo con la misma composición salvo que el contenido de Ga es 0,18 % en masa por debajo de la de la muestra No. 54,  $H_{cJ}$  disminuye significativamente cuando Ga se desvía del intervalo de la presente invención incluso si v y w entran dentro del intervalo de la presente invención. En lo que respecta a la muestra No. 55, la cantidad de Ga se desvía del intervalo de Ga de la presente invención  $-(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,5 \leq x(Ga) \leq -(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,8$  cuando la cantidad de Ga es 0,20 % en masa o más y menos de 0,40 % en masa, de manera que es imposible formar la fase RT-Ga mínimamente necesaria para obtener propiedades magnéticas superiores, lo cual conlleva una reducción significativa de  $H_{cJ}$ .

Asimismo, tal como se muestra en la Tabla 2, en la presente invención, es posible obtener una alta  $B_r$  ( $B_r \geq 1,360T$  cuando no se incluyen Dy y Tb en la aleación de materia prima,  $B_r \geq 1,360T - 0,024[Dy] - 0,024[Tb]$  cuando se incluye Dy y Tb en la aleación de materia prima) en la región 2 (región 2 en la Fig. 1) en comparación con la región 1 (región 1 en la Fig. 1). [Dy] o [Tb] representa cada uno de los contenidos (% en masa) de Dy o Tb.

### <Ejemplo 2>

Se mezclaron metal Nd, metal Pr, metal Dy, metal Tb, aleación de ferro-boro, Co electrolítico, metal Al, metal Cu, metal Ga, aleación de ferro-niobio, aleación de ferro-circonio y hierro electrolítico (cualquiera de los metales tiene una pureza de 99 % en masa o más) para obtener una composición determinada y a continuación, se obtuvo un polvo finamente pulverizado (aleación en polvo) que tenía un tamaño de grano  $D_{50}$  de 4  $\mu\text{m}$  de la misma manera que en el Ejemplo 1. Al mezclar el gas nitrógeno con aire atmosférico durante la pulverización, se ajustó la concentración de oxígeno en un gas nitrógeno durante la pulverización. Cuando se mezcla con aire no atmosférico, la concentración de oxígeno en el gas nitrógeno durante la pulverización es 50 ppm o menos y la concentración de oxígeno en el gas nitrógeno aumenta a 5.000 ppm a un máximo por mezclado con aire atmosférico para producir polvos pulverizados finalmente con una cantidad de oxígeno diferente cada uno de ellos.

El tamaño de grano  $D_{50}$  es una mediana del tamaño sobre la base del volumen obtenido por método de difracción con láser utilizando un método de dispersión de flujo de aire. En la Tabla 3, se midió O (cantidad de oxígeno) N (cantidad de nitrógeno) y la cantidad de C (cantidad de carbono) de la misma manera que en el Ejemplo 1.

Se añadió al polvo pulverizado finamente estearato de zinc como lubricante en la proporción de 0,05 % en masa por cada 100 % en masa del polvo gruesamente pulverizado, seguido de mezclado para obtener un compacto de la misma manera que en el Ejemplo 1. Asimismo, se sinterizó el compacto y se sometió a tratamiento térmico de la misma manera que en el ejemplo 1. Se sometió el imán sinterizado a mecanizado tras el tratamiento de calor y a continuación, se midieron  $B_r$  y  $H_{cJ}$  de cada muestra de misma manera que la del Ejemplo 1. En la Tabla 4 se muestran los resultados de la medición.

40

[Tabla 3] Resultados del análisis de Imán sinterizado a base de R-T-B (% en masa)

No.	Resultados del análisis de Imán sinterizado a base de R-T-B (% en masa)																C
	Nd	Pr	Dy	Tb	B	Co	Al	Cu	Ga	Nb	Zr	Fe	O	N			
70	23,4	7,7	0	0	0,904	0,5	0,10	0,16	0,27	0,00	0,00	resto	0,07	0,05	0,11	Presente invención	
71	23,0	7,6	0	0	0,910	0,5	0,10	0,12	0,27	0,00	0,00	resto	0,08	0,04	0,09	Presente invención	
72	22,7	7,4	0	0	0,918	0,5	0,10	0,13	0,27	0,00	0,00	resto	0,13	0,03	0,08	Presente invención	
73	22,7	7,4	0	0	0,880	0,9	0,10	0,15	0,39	0,00	0,00	resto	0,11	0,05	0,09	Presente invención	
74	22,7	7,4	0	0	0,892	0,9	0,10	0,15	0,39	0,00	0,00	resto	0,12	0,05	0,09	Presente invención	
75	22,7	7,4	0	0	0,910	0,9	0,10	0,15	0,31	0,00	0,00	resto	0,15	0,05	0,11	Presente invención	
76	22,7	7,4	0	0	0,924	0,9	0,10	0,15	0,28	0,00	0,00	resto	0,15	0,05	0,11	Presente invención	
77	22,7	7,4	0	0	0,890	0,5	0,10	0,15	0,35	0,00	0,00	resto	0,10	0,04	0,08	Presente invención	
78	22,7	7,4	0	0	0,910	0,5	0,10	0,08	0,32	0,00	0,00	resto	0,10	0,05	0,10	Presente invención	
79	22,7	7,4	0	0	0,910	0,5	0,05	0,08	0,32	0,00	0,00	resto	0,10	0,05	0,10	Presente invención	
80	22,7	7,4	0	0	0,910	0,0	0,10	0,08	0,32	0,00	0,00	resto	0,10	0,05	0,10	Presente invención	
81	20,7	6,7	3,0	0	0,905	0,5	0,10	0,08	0,34	0,00	0,00	resto	0,10	0,05	0,10	Presente invención	
82	22,7	7,4	0	0	0,910	2,0	0,10	0,08	0,32	0,00	0,00	resto	0,10	0,05	0,10	Presente invención	
83	22,7	7,4	0	0	0,910	0,5	0,05	0,08	0,32	0,10	0,00	resto	0,10	0,05	0,10	Presente invención	
84	22,7	7,4	0	0	0,910	0,5	0,05	0,08	0,33	0,00	0,10	resto	0,10	0,05	0,10	Presente invención	
85	22,7	7,4	0	0	0,910	0,5	0,05	0,08	0,33	0,03	0,05	resto	0,10	0,05	0,10	Presente invención	
86	30,3	0,0	0	0	0,910	0,5	0,05	0,08	0,33	0,00	0,00	resto	0,10	0,05	0,10	Presente invención	
87	23,6	7,8	0	0	0,890	0,5	0,10	0,16	0,32	0,00	0,00	resto	0,07	0,03	0,07	Ejemplo comparativo	
88	23,2	7,7	0	0	0,875	0,5	0,10	0,20	0,38	0,00	0,00	resto	0,08	0,04	0,09	Ejemplo comparativo	
89	22,7	7,4	0	0	0,905	0,5	0,10	0,08	0,26	0,00	0,00	resto	0,10	0,05	0,10	Ejemplo comparativo	

[Tabla 4]

No.	u	v	w	Región	B <sub>r</sub>	(T) H <sub>cJ</sub> (kA/m)	
70	31,1	29,33	0,904	3	1,394	1431	Presente invención
71	30,6	29,02	0,910	3	1,381	1463	Presente invención
72	30,2	28,49	0,918	4	1,390	1493	Presente invención
73	30,2	28,29	0,880	3	1,373	1582	Presente invención
74	30,2	28,23	0,892	3	1,377	1527	Presente invención
75	30,1	27,82	0,910	4	1,421	1438	Presente invención
76	30,2	27,89	0,924	4	1,430	1422	Presente invención
77	30,2	28,57	0,890	3	1,378	1473	Presente invención
78	30,2	28,27	0,910	4	1,401	1505	Presente invención
79	30,2	28,27	0,910	4	1,416	1457	Presente invención
80	30,2	28,27	0,910	4	1,400	1513	Presente invención
81	30,4	28,50	0,905	3	1,333	1981	Presente invención
82	30,2	28,27	0,910	4	1,406	1503	Presente invención
83	30,2	28,27	0,910	4	1,412	1487	Presente invención
84	30,2	28,27	0,910	4	1,413	1476	Presente invención
85	30,2	28,27	0,910	4	1,414	1483	Presente invención
86	30,3	28,40	0,910	4	1,425	1403	Presente invención
87	31,4	30,09	0,890	3	1,373	1568	Ejemplo comparativo
88	30,9	29,25	0,875	3	1,359	1539	Ejemplo comparativo
89	30,1	28,27	0,905	4	1,401	1280	Ejemplo comparativo

u en la Tabla 4 es el valor obtenido sumando las cantidades (% en masa) de Nd, Pr, Dy y Tb en la Tabla 2 y v es el valor obtenido al sustraer  $6\alpha + 10\beta + 8\gamma$ , donde la cantidad de oxígeno (% en masa) es  $\alpha$ , la cantidad de nitrógeno (% en masa) es  $\beta$  y la cantidad de carbono (% en masa) es  $\gamma$  en la Tabla 3, de u. En lo que respecta a w, la cantidad de B en la tabla 3 se transfirió como tal. La región en la tabla 4 indica la posición de v y w en la Fig. 2. Se rellenó la columna de la tabla con "3" cuando v y w existe en la región 3 en la Fig. 2, al tiempo que se rellenó la columna de la tabla con "4" cuando v y w existe en la región 4 en la Fig. 2. Asimismo, cuando v y w existe en la región salvo las regiones 3 y 4 en la Fig. 2, se rellenó la columna de la tabla con la marca "x".

Tal como se presenta en la Tabla 4, cuando Dy y Tb no se incluyen en la aleación de materia prima, cualquiera de los Ejemplos (Ejemplos salvo la muestra No. 81), que presenta la relación entre v y w localizada en la región de la presente invención (regiones 3 y 4 en la Fig. 2) y satisface también las siguientes expresiones de inequación:  $-(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,5 \leq x \leq -(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,8$ ,  $0,07 \leq y(\text{Cu}) \leq 0,2$ ,  $0,05 \leq z(\text{Al}) \leq 0,5$  y  $0 \leq q(\text{Nb y/o Zr}) \leq 0,1$ , presenta  $B_r \geq 1,377\text{T}$  y  $H_{cJ} \geq 1,403\text{ kA/m}$  y tiene también propiedades magnéticas superiores, que son idénticas o superiores a las del Ejemplo 1, independientemente de la cantidad de Ga menor que la muestra de ejemplo del Ejemplo 1 ( $x(\text{Ga})$  de 0,40 % en masa o más). Al mismo tiempo, en lo que respecta a las muestras del ejemplo comparativo Nos. 87 y 88 en los que las cantidades de Ga, Cu y Al están dentro del intervalo de la presente invención pero v y w se desvían del intervalo de la presente invención (región salvo la región 3 o 4 en la Fig. 2) y la muestra del ejemplo comparativo 89 en la que v y w están dentro del intervalo de la presente invención (región 3 o 4 en la Fig. 2) pero la cantidad de Ga se desvía del intervalo de la presente invención, no se obtienen las propiedades magnéticas superiores de  $B_r \geq 1,377\text{T}$  y  $H_{cJ} \geq 1,403\text{ kA/m}$ .

Tal como se presenta en la Tabla 4, cuando Dy y Tb no se incluyen en la aleación de materia prima, cualquiera de los ejemplos (Ejemplos salvo muestra No. 81), que presenta la relación entre v y w situada en la región de la presente invención (regiones 3 y 4 en la Fig. 2) si  $0,20 \leq x(\text{Ga}) < 0,40$  y satisface también las siguientes expresiones de inequación:  $-(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,5 \leq x \leq -(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,8$ ,  $0,07 \leq y(\text{Cu}) \leq 0,2$ ,  $0,05 \leq z(\text{Al}) \leq 0,5$  y  $0 \leq q(\text{Nb y/o Zr}) \leq 0,1$ , presenta  $B_r \geq 1,377\text{T}$  y  $H_{cJ} \geq 1,403\text{ kA/m}$  y tiene también propiedades magnéticas superiores, que son idénticas o superiores a las del Ejemplo 1, independientemente de la cantidad de Ga menor que la de la muestra ilustrativa del Ejemplo 1 ( $x(\text{Ga})$  de 0,40 % en masa o más). Al mismo tiempo, en lo que respecta a las muestras del ejemplo comparativo Nos. 87 y 88 en los que las cantidades de Ga, Cu y Al están dentro del intervalo de la presente invención pero v y w se desvían del intervalo de la presente invención (región salvo la región 3 o 4 en la Fig. 2) y la muestra del ejemplo comparativo 89 en los que v y w están dentro del intervalo de la presente invención (región 3 o 4 en la Fig. 2) pero la cantidad de Ga se desvía del intervalo de la presente invención, no se obtienen las propiedades magnéticas superiores de  $B_r \geq 1,377\text{T}$  y  $H_{cJ} \geq 1,403\text{ kA/m}$ .

### <Ejemplo 3>

Se muestran los resultados de la observación de la estructura de un imán sinterizado a base de R-T-B. Fig. 5 presenta una imagen BSE obtenida por observación por FE-SEM (microscopio electrónico de tipo emisión de tiempo) de una sección transversal obtenida puliendo (2 mm cada una) una superficie completa de un imán sinterizado a base de R-T-B de la muestra No. 34 del Ejemplo 1 y cortando del centro. En la Fig. 5 (imagen de alto contraste), la región blanca corresponde a una fase de límite de grano, la región gris claro corresponde a una fase de óxido y la región de gris oscuro corresponde a una fase principal. La Fig. 6 (imagen de contraste ponderado de

fase del límite de grano) es una fotografía cuyo contraste fue ajustado para clasificar la fase de límite de grano en detalle. En la Fig. 6, la fase principal y la fase óxido se indican con color negro, la fase R-T-Ga se indica con un color gris oscuro y la fase R-Ga se indica con un color gris claro y la fase rica en R se indica con color blanco. Se cortó cada una de las posiciones correspondientes a cada fase en la Fig. 6 (fase R-Ga: I, II, fase rica en R: III, fase óxido: IV, fase R-T-Ga: V, fase principal: VI) y después se analizaron por TEM-EDX (espectroscopia de rayos X con dispersión de energía), confirmando así que cada fase era como se ha mencionado. En la Tabla 5 se muestran los resultados del análisis.

[Tabla 5]

		(% en masa)								
No.	Fase	Fe	Nd	Pr	R(Nd+Pr)	Co	Al	Cu	Ga	O
I	fase R-Ga	6,9	58,5	23,0	81,5	0,5	1,1	4,1	5,2	0,7
II	fase R-Ga	4,4	56,2	25,8	82,0	1,3	0,7	3,2	7,6	0,8
III	fase rica en R	0,8	60,7	35,7	96,4	0,1	0,9	0,3	0,8	0,7
IV	fase óxido	1,6	70,9	23,0	93,9	0,2	0,9	0,3	0,7	2,4
V	fase R-T-Ga	30,8	42,5	19,4	61,9	0,8	1,2	0,4	3,8	1,1
VI	fase principal	57,7	29,3	9,2	38,5	0,9	0,9	0,4	0,7	0,9

Tal como se presenta en la Tabla 5, se puede educir que los Nos. I y II corresponden a la fase R-Ga ya que R: 70 % en masa o más y 95 % en masa o menos, Ga: 5 % en masa o más y 30 % en masa o menos y Fe: 20 % en masa o menos. Se puede deducir también que el No. V corresponde a una fase R-T-Ga ya que R: 15 % en masa o más 65 % en masa o menos, Fe: 20 % en masa o más y 80 % en masa o menos y Ga: 2 % en masa o más y 20 % en masa o menos. Se puede deducir asimismo que el No. III corresponde a una fase rica en R por la gran cantidad de R y el No. IV corresponde a una fase de óxido por la gran cantidad de oxígeno (O).

Mediante el uso de un software de procesamiento de imágenes, se determinó una relación de área de la fase R-T-Ga en la imagen de la sección transversal. En primer lugar, se calculó la relación del área A de una región gris correspondiente a una fase óxido (proporción del número de píxeles de la parte gris en relación con el número total de píxeles) en la Fig. 5 (imagen de alto contraste). A continuación, se calcularon la relación del área B de una parte negra correspondiente a la fase principal + (más) una fase óxido, una relación del área C de una parte gris oscuro correspondiente a la fase R-T-Ga, una relación del área D de una parte gris claro correspondiente a una fase R-Ga y una relación del área E de una parte blanca correspondiente a una fase rica en R en la Fig. 6 (imagen de contraste ponderada de fase de límite de grano), respectivamente. En este punto, la relación del área de la fase R-T-Ga se define como " $100 \times C / (B + C + D + E - A)$ ". Se determina la relación del área de la fase R-T-Ga en las muestras Nos. 15 y 42 del Ejemplo 1 y muestras Nos. 70 y 75 del Ejemplo 2. En la Tabla 6 se muestran los resultados.

[Tabla 6]

No.	$B_r$ (T)	$H_{cJ}$ (kA/m)	Relación del área de fase R-T-Ga (%)	
15	1,390	1279	0,8	Ejemplo comparativo
70	1,394	1431	1,5	Presente invención
75	1,421	1438	4,1	Presente invención
34	1,371	1580	7,0	Presente invención
42	1,305	1440	8,9	Ejemplo comparativo

Tal como se presenta en la Tabla 6, en lo que respecta a las muestras Nos. 70, 75 y 34 que son ejemplos, la relación del área de la fase R-T-Ga está dentro del intervalo de 1,5 % a 7,0 %. Al mismo tiempo, en lo que respecta a muestras Nos. 15 y 42 que son Ejemplos comparativos, la relación del área se desvía del intervalo indicado. Se considera que no se pudo obtener una alta  $H_{cJ}$  ya que la relación del área de la fase R-T-Ga en la muestra No. 15 es demasiado pequeña y la relación de existencia de la fase principal disminuye, de modo que no se obtiene una alta  $B_r$  ya que la relación del área de la fase R-T-Ga en la muestra No. 42 es demasiado grande.

#### <Ejemplo 4>

Utilizando metal Nd, metal Pr, aleación de ferro-boro, Co electrolítico, metal Al, metal Cu, metal Ga, aleación de ferro-niobio, aleación de ferro-circonio y hierro electrolítico (cualquiera de los metales tiene una pureza de 99 % en masa o más) se mezclaron cada una de las aleaciones en polvo adicionales y cada una de las aleaciones en polvo principales para obtener la composición presentada en la Tabla 7, y después se fundieron estas materias primas y se sometieron a colada según un método de colada de bandas para obtener una aleación en copos con un espesor de 0,2 a 0,4 mm. Se sometió la aleación en copos obtenida a triturado con hidrógeno en una atmósfera de hidrógeno bajo una mayor presión y a continuación se sometió a un tratamiento de deshidrogenación por calentamiento a 550 °C al vacío y enfriado para obtener un polvo pulverizado gruesamente. Se cargaron el polvo gruesamente pulverizado así obtenido de la aleación adicional y el polvo gruesamente pulverizado así obtenido de la aleación principal en una cantidad de mezclado determinado en una mezcladora de tipo V seguido de mezclado para obtener una aleación en polvo mixta. Se añadió al polvo pulverizado gruesamente así obtenido estearato de zinc como lubricante en la proporción de 0,04 % en masa sobre la base de un 100 % en masa del polvo pulverizado

gruesamente, seguido del mezclado. Utilizando un pulverizador de tipo flujo de aire (máquina de molino a chorro), se sometió la mezcla a pulverización en seco en un flujo de gas nitrógeno para obtener un polvo finalmente pulverizado (aleación en polvo) que tenía un tamaño de grano  $D_{50}$  de 4  $\mu\text{m}$ . Al mezclar el gas nitrógeno con aire atmosférico durante la pulverización, se ajustó la concentración de oxígeno en un gas nitrógeno durante la pulverización. Cuando se mezcla con aire no atmosférico, la concentración de oxígeno en el gas nitrógeno durante la pulverización es 50 ppm o menos y la concentración de oxígeno en el gas nitrógeno aumenta a 1.600 ppm a un máximo por mezclado con aire atmosférico para producir polvos pulverizados finalmente con una cantidad de oxígeno diferente cada uno de ellos. El tamaño de grano  $D_{50}$  es una mediana del tamaño sobre la base del volumen obtenido por método de difracción con láser utilizando un método de dispersión de flujo de aire. Se midieron N (cantidad de nitrógeno) y C (cantidad de carbón) en la Tabla 8, O (cantidad de oxígeno), de la misma manera que en el Ejemplo 1.

Se añadió al polvo finamente pulverizado (aleación en polvo mixto) obtenido por mezclado de una aleación en polvo adicional con una aleación en polvo principal, estearato de zinc como lubricante en una proporción de 0,05 % en masa por cada 100 % en masa del polvo gruesamente pulverizado, seguido de mezclado para obtener un compacto de la misma manera que en el Ejemplo 1. Asimismo, se sinterizó el compacto y se sometió a un tratamiento térmico de la misma manera que en el Ejemplo 1. Se sometió el imán sinterizado a mecanizado tras el tratamiento térmico y después se midieron  $B_r$  y  $H_{cJ}$  de cada muestra de la misma manera que en el Ejemplo 1. Los resultados de la medición se presentan en la Tabla 9.

En la Tabla 7 se presenta cada una de las composiciones de la aleación en polvo adicional y la aleación en polvo principal así obtenidas para su utilización en el método de producción de la presente invención. Asimismo, en la Tabla 8 se presenta cada una de las composiciones del imán sinterizado a base de R-T-B obtenido por mezclado de la aleación en polvo adicional y la aleación en polvo principal en la Tabla 7. La muestra No. 100 en la Tabla 8 es un imán sinterizado a base de R-T-B producido mediante el uso de una aleación en polvo mixta obtenida por mezclado de una aleación en polvo A (aleación en polvo adicional) y una aleación en polvo A-1 (aleación en polvo principal) en la Tabla 7 y la cantidad de mezclado de la aleación en polvo adicional en la aleación en polvo mixta representa el 4 % en masa del 100 % en masa de la aleación en polvo mixta. Asimismo, la muestra No. 101 es un imán sinterizado a base de R-T-B producido utilizando una aleación en polvo mixta obtenida por mezclado de una aleación en polvo A (aleación en polvo adicional) con una aleación en polvo A-2 (aleación en polvo principal) en la Tabla 7 y la cantidad de mezclado de la aleación en polvo adicional en la aleación en polvo mixta representa el 4 % en masa del 100 % en masa de la aleación en polvo mixta. Se produjeron también las muestras Nos. 102 a 140 combinando las aleaciones en polvo mixtas, en la cantidad de mezclado de la aleación en polvo adicional presentada en la Tabla 8 de la misma manera. Cualquiera de las composiciones de la aleación en polvo adicional y la aleación en polvo principal presentadas en la Tabla 7 y la cantidad de mezclado de aleación en polvo adicional que se muestra en la Tabla 8 entra dentro del intervalo de os aspectos preferentes (aspectos 3 y 4) de la presente invención. Asimismo, cualquiera de las composiciones de imán sinterizado a base de R-T-B presentada en la Tabla 8 entra dentro del intervalo de la composición de imán sinterizado a base de R-T-B de la presente invención.

[Tabla 7]

Aleación en polvo	Tipo de aleación	Resultados del análisis de la aleación en polvo (% en masa)										
		Nd	Pr	Dy	B	Co	Al	Cu	Ga	Nb	Zr	Fe
A	Aleación en polvo adicional	42,5	13,9	0	0,500	0,0	0,10	0,15	6,79	0	0	resto
A-1	Aleación en polvo principal	22,6	7,4	0	0,920	0,5	0,10	0,16	0,23	0	0	resto
A-2	Aleación en polvo principal	22,4	7,5	0	0,889	0,5	0,10	0,20	0,29	0	0	resto
A-3	Aleación en polvo principal	22,8	7,5	0	0,905	0,5	0,10	0,16	0,24	0	0	resto
A-4	Aleación en polvo principal	21,9	7,2	0	0,926	0,5	0,10	0,08	0,21	0	0	resto
A-5	Aleación en polvo principal	21,9	7,2	0	0,926	0,5	0,05	0,08	0,21	0	0	resto
A-6	Aleación en polvo principal	21,9	7,2	0	0,926	0,5	0,10	0,08	0,17	0	0	resto
A-7	Aleación en polvo principal	21,9	7,2	0	0,926	2,1	0,10	0,08	0,21	0	0	resto
A-8	Aleación en polvo principal	21,9	7,2	0	0,926	0,5	0,05	0,08	0,15	0,10	0	resto
A-9	Aleación en polvo principal	21,9	7,2	0	0,926	0,5	0,05	0,08	0,14	0	0,10	resto
A-10	Aleación en polvo principal	21,9	7,2	0	0,926	0,5	0,05	0,08	0,13	0,03	0,05	resto
A-11	Aleación en polvo principal	21,9	7,2	0	0,934	0,5	0,10	0,13	0,00	0	0	resto
A-12	Aleación en polvo principal	21,9	7,2	0	0,895	0,9	0,10	0,15	0,13	0	0	resto
A-13	Aleación en polvo principal	21,9	7,2	0	0,907	0,9	0,10	0,15	0,12	0	0	resto
A-14	Aleación en polvo principal	21,9	7,1	0	0,926	0,9	0,10	0,15	0,04	0	0	resto
A-15	Aleación en polvo principal	21,9	7,2	0	0,941	0,9	0,10	0,15	0,01	0	0	resto
A-16	Aleación en polvo principal	21,9	7,2	0	0,905	0,5	0,10	0,15	0,08	0	0	resto
A-17	Aleación en polvo principal	19,8	6,4	3,1	0,921	0,5	0,10	0,08	0,07	0	0	resto
A-18	Aleación en polvo principal	21,3	6,9	0	0,864	0,5	0,10	0,13	0,28	0	0	resto
A-19	Aleación en polvo principal	20,7	6,9	0	0,904	0,5	0,10	0,11	0,20	0	0	resto
A-20	Aleación en polvo principal	20,7	6,8	0	0,926	0,5	0,10	0,11	0,17	0	0	resto
A-21	Aleación en polvo principal	21,5	7,0	0	0,916	0,5	0,10	0,11	0,11	0	0,09	resto
B	Aleación en polvo adicional	49,2	16,1	0	0,350	1,5	3,80	0,40	11,30	0	0	resto

40

ES 2 717 445 T3

Aleación en polvo	Tipo de aleación	Resultados del análisis de la aleación en polvo (% en masa)										
		Nd	Pr	Dy	B	Co	Al	Cu	Ga	Nb	Zr	Fe
B-1	Aleación en polvo principal	23,3	7,7	0	0,894	0,5	0,06	0,15	0,39	0	0	resto
B-2	Aleación en polvo principal	22,5	7,3	0	0,915	0,5	0,01	0,07	0,29	0,03	0,05	resto
B-3	Aleación en polvo principal	22,5	7,3	0	0,923	0,5	0,06	0,12	0,16	0	0	resto
B-4	Aleación en polvo principal	22,5	7,3	0	0,884	0,9	0,06	0,14	0,28	0	0	resto
B-5	Aleación en polvo principal	22,4	7,3	0	0,915	0,9	0,06	0,14	0,20	0	0	resto
B-6	Aleación en polvo principal	22,5	7,3	0	0,894	0,5	0,06	0,14	0,24	0	0	resto
B-7	Aleación en polvo principal	20,4	6,6	3,0	0,910	0,5	0,06	0,07	0,23	0	0	resto
C	Aleación en polvo adicional	24,0	8,0	0	0,900	2,0	0,10	0,10	2,00	0	0	resto
C-1	Aleación en polvo principal	23,6	7,7	0	0,888	0,3	0,10	0,17	0,33	0	0	resto
C-2	Aleación en polvo principal	22,6	7,4	0	0,910	0,3	0,04	0,08	0,22	0,03	0,06	resto
C-3	Aleación en polvo principal	22,6	7,4	0	0,919	0,3	0,10	0,13	0,08	0	0	resto
C-4	Aleación en polvo principal	22,6	7,4	0	0,877	0,8	0,10	0,16	0,22	0	0	resto
C-5	Aleación en polvo principal	22,6	7,3	0	0,910	0,8	0,10	0,16	0,12	0	0	resto
C-6	Aleación en polvo principal	22,6	7,4	0	0,887	0,3	0,10	0,16	0,17	0	0	resto
C-7	Aleación en polvo principal	20,3	6,6	3,3	0,904	0,3	0,10	0,08	0,16	0	0	resto
D	Aleación en polvo adicional	33,0	11,0	0	1,455	4,5	0,10	0,10	2,00	0,30	0,50	resto
D-1	Aleación en polvo principal	21,6	7,0	0	0,848	0,04	0,04	0,08	0,22	0	0	resto
E	Aleación en polvo adicional	24,0	8,0	0	0,915	0,9	0,10	0,15	0,70	0	0	resto
E-1	Aleación en polvo principal	22,2	7,2	0	0,906	0,3	0,03	0,05	0,27	0,04	0,07	resto
E-2	Aleación en polvo principal	22,2	7,2	0	0,918	0,3	0,10	0,12	0,09	0	0	resto
E-3	Aleación en polvo principal	22,2	7,2	0	0,864	0,9	0,10	0,15	0,26	0	0	resto
E-4	Aleación en polvo principal	22,1	7,1	0	0,906	0,9	0,10	0,15	0,14	0	0	resto
E-5	Aleación en polvo principal	22,2	7,2	0	0,877	0,3	0,10	0,15	0,20	0	0	resto



[Tabla 8]

No.	Resultados del análisis de Imán sinterizado a base de R-T-B (% en masa)														v	Aleación en polvo mixta	Cantidad de mezclado de aleación en polvo adicional
	Nd	Pr	Dy	B	Co	Al	Cu	Ga	Nb	Zr	Fe	O	N	C			
100	23,4	7,7	0	0,903	0,5	0,10	0,16	0,49	0	0	resto	0,08	0,05	0,10	29,29	A+A-1	4 %
101	23,2	7,7	0	0,874	0,5	0,10	0,20	0,55	0	0	resto	0,09	0,05	0,09	29,21	A+A-2	4 %
102	23,6	7,8	0	0,889	0,5	0,10	0,16	0,50	0	0	resto	0,08	0,04	0,07	30,05	A+A-3	4 %
103	22,7	7,4	0	0,909	0,5	0,10	0,08	0,47	0	0	resto	0,11	0,06	0,10	28,23	A+A-4	4 %
104	22,7	7,4	0	0,909	0,5	0,05	0,08	0,47	0	0	resto	0,11	0,06	0,10	28,23	A+A-5	4 %
105	22,7	7,4	0	0,909	0,5	0,10	0,08	0,43	0	0	resto	0,11	0,06	0,10	28,23	A+A-6	4 %
106	22,7	7,4	0	0,909	2,0	0,10	0,08	0,47	0	0	resto	0,11	0,06	0,10	28,23	A+A-7	4 %
107	22,7	7,4	0	0,909	0,5	0,05	0,08	0,42	0,1	0	resto	0,11	0,06	0,10	28,23	A+A-8	4 %
108	22,7	7,4	0	0,909	0,5	0,05	0,08	0,41	0,0	1	resto	0,11	0,06	0,10	28,23	A+A-9	4 %
109	22,7	7,4	0	0,909	0,5	0,05	0,08	0,40	0,03	0,05	resto	0,11	0,06	0,10	28,23	A+A-10	4 %
110	22,7	7,4	0	0,917	0,5	0,10	0,13	0,27	0	0	resto	0,14	0,04	0,08	28,45	A+A-11	4 %
111	22,7	7,4	0	0,879	0,9	0,10	0,15	0,39	0	0	resto	0,12	0,06	0,09	28,25	A+A-12	4 %
112	22,7	7,4	0	0,891	0,9	0,10	0,15	0,39	0	0	resto	0,13	0,06	0,09	28,19	A+A-13	4 %
113	22,7	7,4	0	0,909	0,9	0,10	0,15	0,31	0	0	resto	0,16	0,06	0,11	27,78	A+A-14	4 %
114	22,7	7,4	0	0,923	0,9	0,10	0,15	0,28	0	0	resto	0,16	0,06	0,11	27,85	A+A-15	4 %
115	22,7	7,4	0	0,889	0,5	0,10	0,15	0,35	0	0	resto	0,11	0,04	0,07	28,53	A+A-16	4 %
116	20,7	6,7	3,0	0,904	0,5	0,10	0,08	0,34	0	0	resto	0,11	0,06	0,10	28,46	A+A-17	4 %
117	22,1	7,2	0	0,849	0,5	0,10	0,13	0,54	0	0	resto	0,08	0,02	0,06	28,26	A+A-18	4 %
118	21,6	7,2	0	0,890	0,5	0,10	0,11	0,46	0	0	resto	0,09	0,02	0,06	27,69	A+A-19	4 %
119	21,6	7,1	0	0,909	0,5	0,10	0,11	0,43	0	0	resto	0,09	0,01	0,07	27,53	A+A-20	4 %
120	22,4	7,3	0	0,899	0,5	0,10	0,11	0,38	0	0,09	resto	0,10	0,06	0,07	27,93	A+A-21	4 %
121	23,6	7,8	0	0,891	0,5	0,10	0,16	0,50	0	0	resto	0,08	0,03	0,07	30,15	B+B-1	1 %
122	22,7	7,4	0	0,910	0,5	0,05	0,08	0,40	0,03	0,05	resto	0,11	0,05	0,10	26,33	B+B-2	1 %
123	22,7	7,4	0	0,916	0,5	0,10	0,13	0,27	0	0	resto	0,14	0,03	0,08	28,55	B+B-3	1 %
124	22,7	7,4	0	0,880	0,9	0,10	0,15	0,39	0	0	resto	0,12	0,05	0,09	28,35	B+B-4	1 %
125	22,7	7,4	0	0,910	0,9	0,10	0,15	0,31	0	0	resto	0,16	0,05	0,11	27,88	B+B-5	1 %
126	22,7	7,4	0	0,890	0,5	0,10	0,15	0,35	0	0	resto	0,11	0,03	0,07	28,63	B+B-6	1 %
127	20,7	6,7	3,0	0,905	0,5	0,10	0,08	0,34	0	0	resto	0,11	0,05	0,10	28,56	B+B-7	1 %
128	23,6	7,8	0	0,888	0,5	0,10	0,16	0,50	0	0	resto	0,08	0,03	0,08	30,07	C+C-1	10 %
129	22,7	7,4	0	0,911	0,5	0,05	0,08	0,40	0,03	0,05	resto	0,11	0,05	0,11	28,25	C+C-2	10 %
130	22,7	7,4	0	0,918	0,5	0,10	0,1	0,27	0	0	resto	0,14	0,03	0,09	28,47	C+C-3	10 %

No.	Resultados del análisis de Imán sinterizado a base de R-T-B (% en masa)														v	Aleación en polvo mixta	Cantidad de mezclado de aleación en polvo adicional
	Nd	Pr	Dy	B	Co	Al	Cu	Ga	Nb	Zr	Fe	O	N	C			
131	22,7	7,4	0	0,881	0,9	0,10	0,15	0,39	0	0	resto	0,12	0,05	0,10	28,27	C+C-4	10 %
132	22,7	7,4	0	0,909	0,9	0,10	0,15	0,31	0	0	resto	0,16	0,05	0,12	27,80	C+C-5	10 %
133	22,7	7,4	0	0,891	0,5	0,10	0,15	0,35	0	0	resto	0,11	0,03	0,08	28,55	C+C-6	10 %
134	20,7	6,7	3,0	0,903	0,5	0,10	0,08	0,34	0	0	resto	0,11	0,05	0,11	28,48	C+C-7	10 %
135	22,7	7,4	0	0,911	0,5	0,05	0,08	0,40	0,03	0,05	resto	0,11	0,04	0,11	28,30	D+D-1	10 %
136	22,7	7,4	0	0,908	0,5	0,05	0,08	0,40	0,03	0,05	resto	0,10	0,05	0,11	28,31	E+E-1	30 %
137	22,7	7,4	0	0,917	0,5	0,10	0,13	0,27	0	0	resto	0,13	0,03	0,09	28,53	E+E-2	30 %
138	22,7	7,4	0	0,879	0,9	0,10	0,15	0,39	0	0	resto	0,11	0,05	0,10	28,33	E+E-3	30 %
139	22,7	7,4	0	0,911	0,9	0,10	0,15	0,31	0	0	resto	0,15	0,05	0,12	27,86	E+E-4	30 %
140	22,7	7,4	0	0,889	0,5	0,10	0,15	0,35	0	0	resto	0,10	0,03	0,08	28,61	E+E-5	30 %

[Tabla 9]

No.	B <sub>r</sub> (T)	H <sub>cJ</sub> (kA/m)
100	1,407	1508
101	1,368	1628
102	1,388	1653
103	1,414	1582
104	1,429	1534
105	1,418	1578
106	1,419	1580
107	1,425	1564
108	1,426	1553
109	1,427	1560
110	1,408	1573
111	1,391	1662
112	1,395	1607
113	1,439	1518
114	1,448	1502
115	1,396	1553
116	1,351	2061
117	1,405	1490
118	1,433	1480
119	1,419	1605
120	1,429	1520
121	1,384	1633
122	1,423	1540
123	1,404	1553
124	1,387	1642
125	1,435	1498
126	1,392	1533
127	1,347	2041
128	1,380	1613
129	1,419	1520
130	1,400	1533
131	1,383	1622
132	1,431	1478
133	1,388	1513
134	1,343	2021
135	1,419	1520
136	1,415	1500
137	1,396	1513
138	1,379	1602
139	1,427	1458
140	1,384	1493

5 Tal como se presenta en la Tabla 9, cualquiera de las muestras Nos. 100 a 140 de un imán sinterizado a base de R-T-B producido mezclando la aleación en polvo adicional con la aleación en polvo principal tiene propiedades magnéticas superiores de  $B_r \geq 1,343T$  y  $H_{cJ} \geq 1,458$  kA/m.

#### <Ejemplo 5>

10 Utilizando metal Nd, metal Pr, metal Dy, aleación de ferro-boro, Co electrolítico, metal Al, metal Cu, metal Ga, y hierro electrolítico (cualquiera de los metales tiene una pureza de 99 % en masa o más) se mezclaron cada una de las aleaciones en polvo adicionales y cada una de las aleaciones en polvo principales para obtener la composición presentada en la Tabla 10, y después se fundieron estas materias primas y se sometieron a colada según un método de colada de bandas para obtener una aleación en copos con un espesor de 0,2 a 0,4 mm. Se sometió la aleación en copos obtenida a triturado con hidrógeno en una atmósfera de hidrógeno bajo una mayor presión y a  
15 continuación se sometió a un tratamiento de deshidrogenación por calentamiento a 550 °C al vacío y enfriado para obtener un polvo pulverizado gruesamente. Se cargaron el polvo gruesamente pulverizado así obtenido de la aleación adicional y el polvo gruesamente pulverizado así obtenido de la aleación principal en una cantidad de mezclado determinado en una mezcladora de tipo V seguido de mezclado para obtener una aleación en polvo mixta. Se añadió al polvo pulverizado gruesamente así obtenido estearato de zinc como lubricante en la proporción de  
20 0,04 % en masa sobre la base de un 100 % en masa del polvo pulverizado gruesamente, seguido del mezclado. Utilizando un pulverizador de tipo flujo de aire (máquina de molino a chorro), se sometió la mezcla a pulverización en seco en un flujo de gas nitrógeno para obtener un polvo finalmente pulverizado (aleación en polvo) que tenía un

tamaño de grano  $D_{50}$  de 4  $\mu\text{m}$ . Al mezclar el gas nitrógeno con aire atmosférico durante la pulverización, se ajustó la concentración de oxígeno en un gas nitrógeno durante la pulverización. Cuando se mezcló con aire no atmosférico, la concentración de oxígeno en el gas nitrógeno durante la pulverización es 50 ppm o menos y la concentración de oxígeno en el gas nitrógeno aumentó a 1.600 ppm a un máximo por mezclado con aire atmosférico para producir polvos pulverizados finalmente con una cantidad de oxígeno diferente cada uno de ellos. El tamaño de grano  $D_{50}$  es una mediana del tamaño sobre la base del volumen obtenido por método de difracción con láser utilizando un método de dispersión de flujo de aire. Se midieron O (cantidad de oxígeno), N (cantidad de nitrógeno) y C (cantidad de carbón) en la Tabla 11, (cantidad de oxígeno), de misma manera que en el Ejemplo 1.

Se añadió al polvo finamente pulverizado (aleación en polvo mixto) obtenido por mezclado de una aleación en polvo adicional con una aleación en polvo principal, estearato de zinc como lubricante en una proporción de 0,05 % en masa por cada 100 % en masa del polvo gruesamente pulverizado, seguido de mezclado para obtener un compacto de la misma manera que en el Ejemplo 1. Asimismo, se sinterizó el compacto y se sometió a un tratamiento térmico de la misma manera que en el Ejemplo 1. Se sometió el imán sinterizado a mecanizado tras el tratamiento térmico y después se midieron  $B_r$  y  $H_{cJ}$  de cada muestra de la misma manera que en el Ejemplo 1. Los resultados de la medición se presentan en la Tabla 12.

En la Tabla 10 se presenta cada una de las composiciones de la aleación en polvo adicional y la aleación en polvo principal así obtenidas para su utilización en el método de producción de la presente invención. Asimismo, en la Tabla 11 se presenta cada una de las composiciones del imán sinterizado a base de R-T-B obtenida por mezclado de la aleación en polvo adicional y la aleación en polvo principal en la Tabla 10. La muestra No. 150 en la Tabla 11 es un imán sinterizado a base de R-T-B producido mediante el uso de una aleación en polvo mixta obtenida por mezclado de una aleación en polvo F (aleación en polvo adicional) y una aleación en polvo F-1 (aleación en polvo principal) y una aleación en polvo principal F-2 (aleación en polvo principal) en la Tabla 10 y la cantidad de mezclado de la aleación en polvo adicional (F) representa el 4 %, la cantidad de mezclado de la aleación en polvo principal (F-1) representa el 48 % y la cantidad de mezclado de la aleación en polvo principal (F-2) representa el 48 % del 100 % en masa de la aleación en polvo mixta. Asimismo, la muestra No. 151 es un imán sinterizado a base de R-T-B producido utilizando una aleación en polvo mixta obtenida por mezclado de una aleación en polvo F (aleación en polvo adicional), una aleación en polvo F-3 (aleación en polvo principal) y una aleación en polvo F-4 (aleación en polvo principal) en la Tabla 10 y la cantidad de mezclado de la aleación en polvo adicional (F) representa 4 %, la cantidad de mezclado de la aleación en polvo principal (F-3) representa 48 % y la cantidad de mezclado de la aleación en polvo principal (F-4) representa 48 %, del 100 % en masa de la aleación en polvo mixta. Las muestras Nos. 152 a 158 se produjeron combinando la aleación en polvo mixta y la aleación en polvo adicional que se muestra en la Tabla 11 de la misma manera. Cualquiera de las composiciones de la aleación en polvo adicional y la aleación en polvo principal presentadas en la Tabla 10 y la cantidad de mezclado de la aleación en polvo adicional presentada en la Tabla 11 entra dentro del intervalo de los aspectos principales (aspectos 3 y 4) de la presente invención. Asimismo, cualquier de las composiciones del imán sinterizado a base de R-T-B presentado en la Tabla 11 entra dentro del intervalo de la composición de imán sinterizado a base de R-T-B de la presente invención.

[Tabla 10]

Aleación en polvo	Tipo de aleación	Resultados del análisis de la aleación en polvo (% en masa)										
		Nd	Pr	Dy	B	Co	Al	Cu	Ga	Nb	Zr	Fe
F	Aleación en polvo adicional	42,5	13,9	0	0,500	0,0	0,10	0,15	6,79	0	0	resto
F-1	Aleación en polvo principal	21,9	7,2	0	,960	0,9	0,10	0,15	0,01	0	0	resto
F-2	Aleación en polvo principal	21,9	7,2	0	0,922	0,9	0,10	0,15	0,01	0	0	resto
F-3	Aleación en polvo principal	21,9	7,2	0	0,981	0,9	0,10	0,15	0,01	0	0	resto
F-4	Aleación en polvo principal	21,9	7,2	0	0,900	0,9	0,10	0,15	0,01	0	0	resto
F-5	Aleación en polvo principal	21,9	7,2	0	1,002	0,9	0,10	0,15	0,01	0	0	resto
F-6	Aleación en polvo principal	21,9	7,2	0	0,881	0,9	0,10	0,15	0,01	0	0	resto
F-7	Aleación en polvo principal	21,9	7,2	0	0,960	0,9	0,10	0,15	0,01	0	0	resto
F-8	Aleación en polvo principal	21,9	7,2	0	0,900	0,9	0,10	0,15	0,01	0	0	resto
F-9	Aleación en polvo principal	21,9	7,1	0	0,951	0,9	0,10	0,15	0,04	0	0	resto
F-10	Aleación en polvo principal	21,9	7,1	0	0,901	0,9	0,10	0,15	0,04	0	0	resto
F-11	Aleación en polvo principal	21,9	7,1	0	0,958	0,9	0,10	0,15	0,04	0	0	resto
F-12	Aleación en polvo principal	21,9	7,1	0	0,891	0,9	0,10	0,15	0,04	0	0	resto
F-13	Aleación en polvo principal	21,9	7,1	0	0,968	0,9	0,10	0,15	0,04	0	0	resto
F-14	Aleación en polvo principal	21,9	7,1	0	0,882	0,9	0,10	0,15	0,04	0	0	resto
F-15	Aleación en polvo principal	21,9	7,2	0	0,951	0,5	0,05	0,08	0,21	0	0	resto
F-16	Aleación en polvo principal	21,9	7,2	0	0,901	0,5	0,05	0,08	0,21	0	0	resto
F-17	Aleación en polvo principal	21,9	7,2	0	0,959	0,5	0,05	0,08	0,21	0	0	resto
F-18	Aleación en polvo principal	21,9	7,2	0	0,892	0,5	0,05	0,08	0,21	0	0	resto

[Tabla 11]

No.	Resultados del análisis de imán sinterizado a base de R-T-B (% en masa)														v	Combinación de aleación en polvo mixta	Cantidad de mezclado de aleación en polvo adicional
	Nd	Pr	Dy	B	Co	Al	Cu	Ga	Nb	Zr	Fe	O	N	C			
150	22,7	7,4	0	0,924	0,9	0,10	0,15	0,28	0	0	resto	0,16	0,06	0,10	27,89	F+F-1+F-2	F: 4% F-1:48 % F-2: 48 %
151	22,7	7,4	0	0,922	0,9	0,10	0,15	0,28	0	0	resto	0,15	0,05	0,11	27,91	F+F-3+F-4	F: 4% F-3:48 % F-4: 48 %
152	22,7	7,4	0	0,920	0,9	0,10	0,15	0,28	0	0	resto	0,15	0,04	0,10	28,09	F+F-5+F-6	F: 4% F-5:48 % F-6: 48 %
153	22,7	7,4	0	0,921	0,9	0,10	0,15	0,28	0	0	resto	0,15	0,05	0,10	27,92	F+F-7+F-8	F: 4% F-7:48 % F-8: 48 %
154	22,7	7,4	0	0,910	0,9	0,10	0,15	0,31	0	0	resto	0,15	0,05	0,11	27,80	F+F-9+F-10	F: 4% F-9:48 % F-10: 48 %
155	22,7	7,4	0	0,909	0,9	0,10	0,15	0,31	0	0	resto	0,16	0,06	0,10	27,78	F+F-11+F-12	F: 4% F-11:48 % F-12: 48 %
156	22,7	7,4	0	0,909	0,9	0,10	0,15	0,31	0	0	resto	0,16	0,06	0,11	27,74	F+F-13+F-14	F: 4% F-13:48 % F-14: 48 %
157	22,7	7,4	0	0,910	0,5	0,05	0,08	0,47	0	0	resto	0,10	0,05	0,09	28,27	F+F-15+F-16	F: 4% F-15:48 % F-16: 48 %
158	22,7	7,4	0	0,909	0,5	0,05	0,08	0,47	0	0	resto	0,11	0,05	0,10	28,19	F+F-17+F-18	F: 4% F-17:48 % F-18: 48 %

[Tabla 12]

No.	$B_r$ (T)	$H_{cJ}$ [kA/m]
150	1,445	1501
151	1,444	1498
152	1,441	1495
153	1,447	1504
154	1,440	1517
155	1,439	1519
156	1,438	1523
157	1,430	1530
158	1,429	1529

5 Tal como se presenta en la Tabla 12, cualquiera de las muestras Nos. 150 a 158 de un imán sinterizado a base de R-T-B producido por mezclado de un tipo de una aleación en polvo adicional con dos tipos de aleaciones en polvo principales tiene propiedades magnéticas superiores de  $B_r \geq 1,429T$  y  $H_{cJ} \geq 1,495$  kA/m.

#### **Aplicabilidad industrial**

10 El Imán sinterizado a base de R-T-B de acuerdo con la presente invención puede emplearse adecuadamente en motores de coches híbridos y coches eléctricos.

**REIVINDICACIONES**

1. Un imán sinterizado a base de R-T-B representado por la siguiente fórmula (1):

$$uRwBxCuZAlqM(100-u-w-x-y-z-q)T \quad (1)$$

donde

R se compone de elemento(s) de tierras raras ligero(s) RL y elemento(s) de tierras raras pesado(s) RH; RL es Nd y/o Pr, RH es al menos uno entre Dy, Tb, Gd y Ho, T es Fe y 10 % en masa o menos de Fe puede estar reemplazado por Co, M es Nb y/o Zr y u, w, x, y, z, q y 100-u-w-x-y-z-q se expresan por lo que respecta al % en masa;

dicho RH representa 5 % en masa o menos del imán sinterizado a base de R-T-B, satisfaciéndose las siguientes expresiones de inequación (2) a (5):

$$0,20 \leq x \leq 0,70 \quad (2)$$

$$0,07 \leq y \leq 0,2 \quad (3)$$

$$0,05 \leq z \leq 0,5 \quad (4)$$

$$0 \leq q \leq 0,1 \quad (5)$$

$v = u - (6\alpha + 10\beta + 8\gamma)$ , donde la cantidad de oxígeno (% en masa) del imán sinterizado a base de R-T-B es  $\alpha$ , la cantidad de nitrógeno (% en masa) es  $\beta$  y la cantidad de carbono (% en masa) es  $\gamma$ ; **caracterizado por que** cuando  $0,40 \leq x \leq 0,70$ , v y w satisfacen las siguientes expresiones de inequación (6) y (7):

$$50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 14 \quad (6)$$

$$-12,5w + 38,75 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (7)$$

y, cuando  $0,20 \leq x < 0,40$ , v y w satisfacen las siguientes expresiones de inequación (8) y (9) y x satisface la siguiente expresión de inequación (10):

$$50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 15,5 \quad (8)$$

$$-12,5w + 39,125 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (9)$$

$$-(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,5 \leq x \leq -(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,8 \quad (10)$$

siempre y cuando que se excluya lo siguiente:

(i)

Composición de imán sinterizado (% en masa)									
Nd	Fe	B	Co	Ga	Cu	Al	O	N	C
29,50	resto	0,91	0,50	0,50	0,10	0,28	0,10	0,05	0,10
31,00	resto	0,90	0,50	0,50	0,10	0,28	0,10	0,05	0,10
32,40	resto	0,89	0,50	0,50	0,10	0,28	0,10	0,05	0,10

45

(ii)

Composición de imán sinterizado (% en masa)						
Nd	B	Ga	Cu	Co	Al	Fe
31,00	0,89	0,50	0,10	0,50	0,28	66,73
31,00	0,89	0,50	0,20	0,50	0,28	66,63

2. El imán sinterizado a base de R-T-B de acuerdo con la reivindicación 1, donde, cuando  $0,40 \leq x \leq 0,70$ , v y w satisfacen las siguientes expresiones de inequación (11) y (7):

$$50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 16,25 \quad (11)$$

$$-12,5w + 38,75 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (7)$$

55

y, cuando  $0,20 \leq x < 0,40$ , v y w satisfacen las siguientes expresiones de inequación (12) y (9) y x satisface la

siguiente expresión de inequación (10):

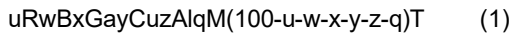
$$50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 17,0 \quad (12)$$

$$-12,5w + 39,125 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (9)$$

$$-(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,5 \leq x \leq -(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,8 \quad (10).$$

3. El imán sinterizado a base de R-T-B de acuerdo con la reivindicación 1 o 2, donde la cantidad de oxígeno es 0,15 % en masa o menos.

4. Un método para producir un imán sinterizado a base de R-T-B representado por la siguiente fórmula (1):



donde

R se compone de elemento(s) de tierras raras ligero(s) RL y elemento(s) de tierras raras pesado(s) RH; RL es Nd y/o Pr, RH es al menos uno entre Dy, Tb, Gd y Ho, T es Fe y 10 % en masa o menos de Fe puede estar reemplazado por Co, M es Nb y/o Zr y u, w, x, y, z, q y 100-u-w-x-y-z-q se expresan por lo que respecta al % en masa;

dicho RH representa 5 % en masa o menos del imán sinterizado a base de R-T-B, satisfaciéndose las siguientes expresiones de inequación (2) a (5):

$$0,20 \leq x \leq 0,70 \quad (2)$$

$$0,07 \leq y \leq 0,2 \quad (3)$$

$$0,05 \leq z \leq 0,5 \quad (4)$$

$$0 \leq q \leq 0,1 \quad (5)$$

$v = u - (6\alpha + 10\beta + 8\gamma)$ , donde la cantidad de oxígeno (% en masa) del imán sinterizado a base de R-T-B es  $\alpha$ , la cantidad de nitrógeno (% en masa) es  $\beta$  y la cantidad de carbono (% en masa) es  $\gamma$ ; cuando  $0,40 \leq x \leq 0,70$ , v y w satisfacen las siguientes expresiones de inequación (6) y (7):

$$50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 14 \quad (6)$$

$$-12,5w + 38,75 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (7)$$

y, cuando  $0,20 \leq x < 0,40$ , v y w satisfacen las siguientes expresiones de inequación (8) y (9) y x satisface la siguiente expresión de inequación (10):

$$50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 15,5 \quad (8)$$

$$-12,5w + 39,125 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (9)$$

$$-(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,5 \leq x \leq -(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,8 \quad (10)$$

comprendiendo el método:

una etapa de preparación de uno o más tipos de aleaciones en polvo adicionales y uno o más tipos de aleaciones en polvo principales;

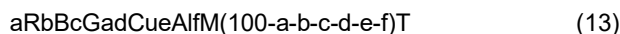
una etapa de mezclado de uno o más tipos de aleaciones en polvo adicionales con 0,15 en masa o más y 40 % en masa o menos entre el 100 % en masa de la aleación en polvo mixta tras el mezclado para obtener una aleación en polvo mixta de uno o más tipos de aleaciones en polvo adicionales y uno o más tipos de las aleaciones en polvo principales;

una etapa de compactación de la aleación en polvo mixta para obtener un compacto;

una etapa de sinterización de sinterización del compacto para obtener un cuerpo sinterizado; y

una etapa de tratamiento térmico para someter el cuerpo sinterizado a un tratamiento térmico;

donde el uno o más tipos de aleaciones en polvo adicionales se representan respectivamente mediante la siguiente expresión de inequación (13), teniendo cada una la composición que satisface las siguientes expresiones de inequación (14) a (20):



donde



R se compone de elemento(s) de tierras raras ligero(s) RL y elemento(s) de tierras raras pesado(s) RH, RL es Nd y/o Pr, RH es al menos uno entre Dy, Tb, Gd y Ho, T como resto es Fe y 10 % en masa o menos de Fe puede estar reemplazado por Co, M es Nb y/o Zr y a, b, c, d, e, f y 100-a-b-c-d-e-f se expresan por lo que respecta al % en masa:

5 
$$32 \% \leq a \leq 66 \% \quad (14)$$

$$0,2 \% \leq b \quad (15)$$

10 
$$0,7 \% \leq c \leq 12 \% \quad (16)$$

$$0 \% \leq d \leq 4 \% \quad (17)$$

15 
$$0 \% \leq e \leq 10 \% \quad (18)$$

$$0 \% \leq f \leq 2 \% \quad (19)$$

$$100-a-b-c-d-e-d-f \leq 72,4 \quad (20)$$

20 y el contenido en Ga de uno o más de los tipos de aleaciones en polvo principales es 0,4 % en masa o menos.

5. El método para producir un imán sinterizado a base de R-T-B de acuerdo con la reivindicación 4, donde, cuando  $0,40 \leq x \leq 0,70$ , v y w satisfacen las siguientes expresiones de inequación (11) y (7):

25 
$$50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 16,25 \quad (11)$$

$$-12,5w + 38,75 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (7)$$

30 y, cuando  $0,20 \leq x < 0,40$ , v y w satisfacen las siguientes expresiones de inequación (12) y (9) y x satisface la siguiente expresión de inequación (10):

$$50w - 18,5 \leq v \leq 50w - 17,0 \quad (12)$$

$$-12,5w + 39,125 \leq v \leq -62,5w + 86,125 \quad (9)$$

35 
$$-(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,5 \leq x \leq -(62,5w + v - 81,625)/15 + 0,8 \quad (10).$$

40 6. El método para producir un imán sinterizado a base de R-T-B de acuerdo con la reivindicación 4 o 5, donde la cantidad de oxígeno de imán sinterizado a base de R-T-B es 0,15 % en masa o menos.

Fig. 1

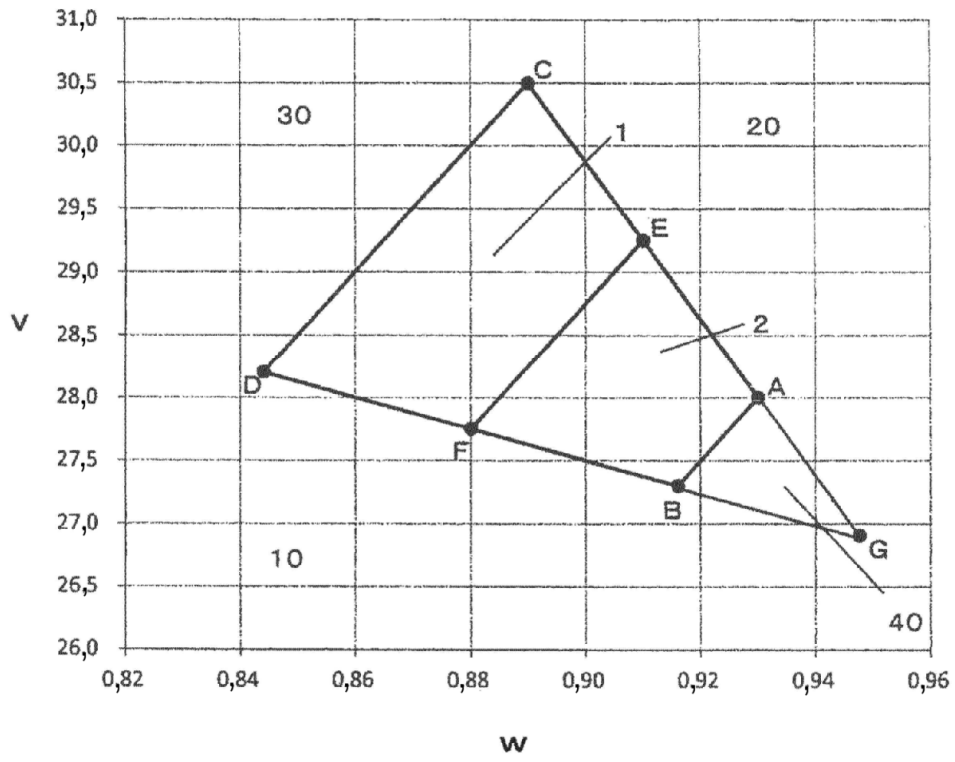


Fig. 2

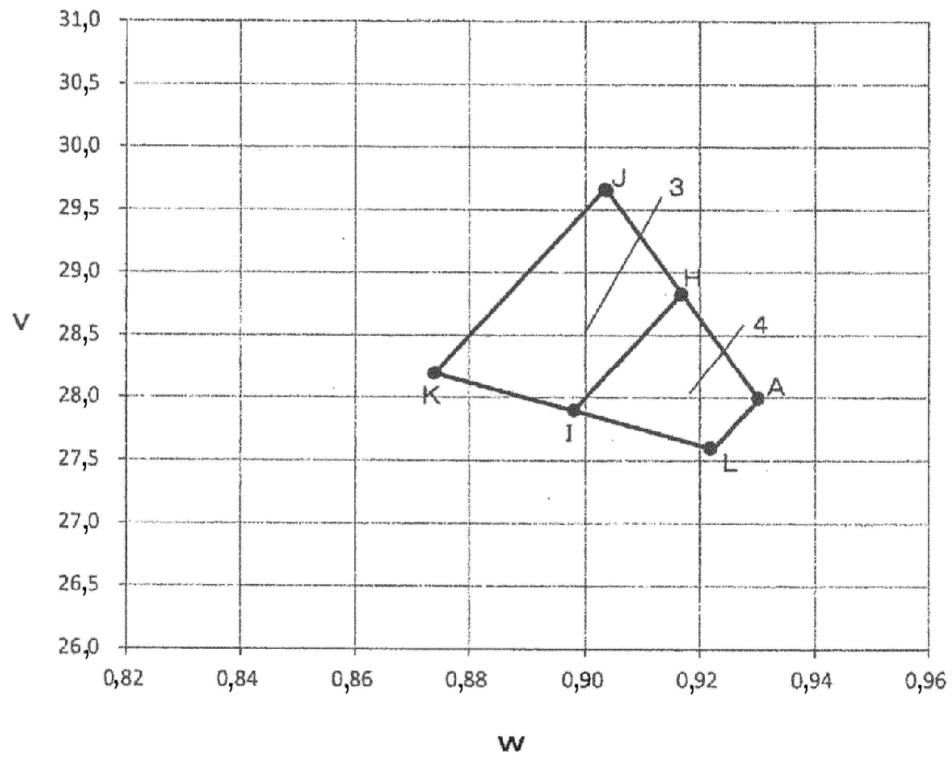


Fig. 3

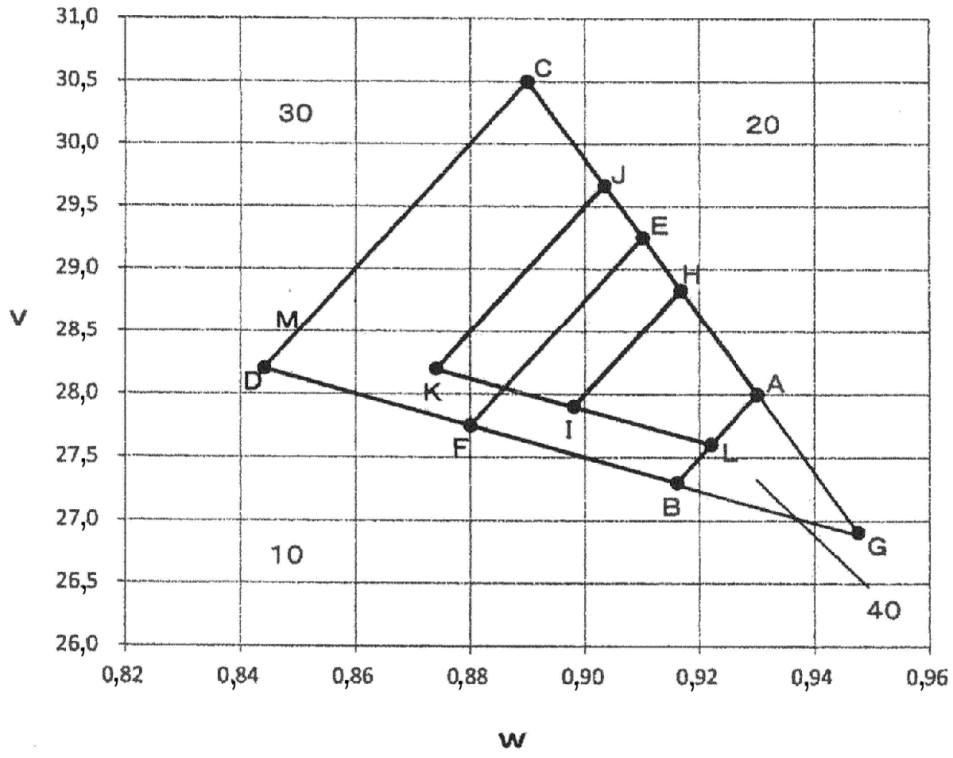


Fig. 4

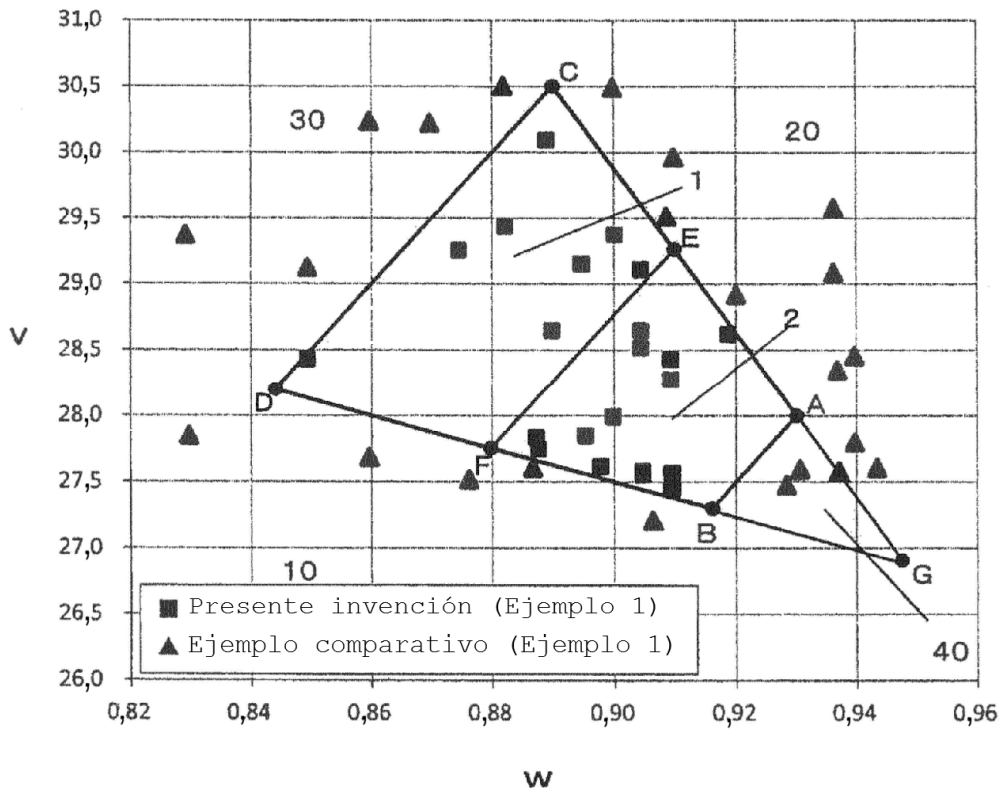


Fig. 5

Fase de límite de grano

Fase óxido

Fase principal

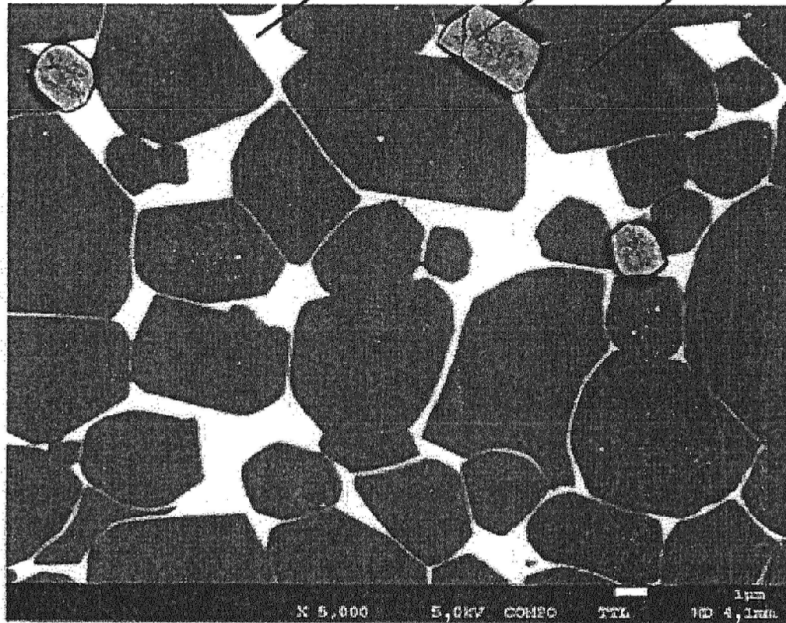


Fig. 6

