

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 749 754**

51 Int. Cl.:

H01F 1/08 (2006.01)
C22C 38/00 (2006.01)
H01F 1/057 (2006.01)
H01F 41/02 (2006.01)
B22F 9/04 (2006.01)
C22C 33/02 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

- 86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **27.03.2014 PCT/JP2014/058741**
 87 Fecha y número de publicación internacional: **02.10.2014 WO14157451**
 96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **27.03.2014 E 14776191 (0)**
 97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **25.09.2019 EP 2985768**

54 Título: **Imán sinterizado a base de R-T-B**

30 Prioridad:

29.03.2013 JP 2013071834

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:
23.03.2020

73 Titular/es:

**HITACHI METALS, LTD. (100.0%)
 2-70, Konan 1-chome, Minato-ku
 Tokyo 108-8224, JP**

72 Inventor/es:

**KUNIYOSHI, FUTOSHI;
 ISHII, RINTARO;
 NISHIUCHI, TAKESHI y
 KAWATA, TSUNEHIRO**

74 Agente/Representante:

LEHMANN NOVO, María Isabel

ES 2 749 754 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 a base de R-T-B

5 Campo técnico

La presente invención se refiere a un imán sinterizado a base de R-T-B.

Técnica anterior

10

Un imán sinterizado a base de R-T-B que incluye un compuesto de tipo $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ como fase principal (R es al menos uno de elementos de tierras raras e incluye inevitablemente Nd, y T es un elemento de metal de transición e incluye inevitablemente Fe) se ha conocido como imán permanente con el mayor rendimiento entre los imanes permanentes y se ha usado en diversos motores para vehículos híbridos, vehículos eléctricos y electrodomésticos.

15

Sin embargo, en el imán sinterizado a base de R-T-B, la coercitividad H_{cJ} (denominada a continuación en el presente documento simplemente " H_{cJ} ") disminuye a una temperatura elevada para provocar una desmagnetización térmica irreversible. Por tanto, cuando se usa particularmente en motores para vehículos híbridos y vehículos eléctricos, existe una necesidad de mantener una H_{cJ} alta incluso a una temperatura elevada.

20

Para aumentar la H_{cJ} , hasta la fecha se han añadido numerosos elementos de tierras raras pesados (principalmente, Dy) al imán sinterizado a base de R-T-B. Sin embargo, surgió un problema de que una densidad de flujo magnético residual B_r (denominada a continuación en el presente documento simplemente " B_r ") disminuye. Por tanto, recientemente se ha empleado un método en el que elementos de tierras raras pesados se difunden desde la superficie al interior del imán sinterizado a base de R-T-B para aumentar de ese modo la concentración de los elementos de tierras raras pesados en la parte de envuelta externa de granos de cristal de fase principal, obteniendo así una alta H_{cJ} al tiempo que se suprime una disminución de B_r .

25

Dy tiene problemas tales como un suministro inestable y fluctuaciones de precio debido a la restricción del distrito de producción. Por tanto, existe una necesidad de desarrollar una tecnología para mejorar la H_{cJ} del imán sinterizado a base de R-T-B sin usar elementos de tierras raras pesados tales como Dy.

30

El documento de patente 1 da a conocer que una concentración de B disminuye en comparación con una aleación a base de R-T-B convencional y uno o más elementos de metal M seleccionados de entre Al, Ga y Cu se incluyen para formar una fase de R_2T_{17} , y una fracción volumétrica de una fase rica en metal de transición ($\text{R}_6\text{T}_{13\text{M}}$) formada a partir de la fase de R_2T_{17} como material de partida se asegura suficientemente para obtener un imán sinterizado de tierras raras a base de R-T-B que tiene una alta coercitividad al tiempo que se suprime el contenido de Dy.

35

Documento de la técnica anterior

40

Documento de patente

Documento de patente 1: WO 2013/008756 A

45

Sumario de la invención

Problemas que deben solucionarse mediante la invención

50

Sin embargo, el documento de patente 1 tenía el problema de que, dado que la concentración de B está reducida significativamente con respecto a la usual, una relación de existencia de una fase principal disminuye, conduciendo a una reducción significativa de B_r . Aunque H_{cJ} aumenta, H_{cJ} es insuficiente para satisfacer los requisitos en la actualidad.

55

La presente invención se ha elaborado para solucionar los problemas anteriores y un objeto de la misma es proporcionar un imán sinterizado a base de R-T-B que tenga una alta B_r y una alta H_{cJ} sin usar Dy.

Medios para solucionar los problemas

60

Un aspecto 1 de la presente invención se refiere a un imán sinterizado a base de R-T-B que incluye un compuesto de tipo $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ como fase principal, y comprende la fase principal, una primera fase de límite de grano ubicada entre dos fases principales, y una segunda fase de límite de grano ubicada entre tres o más fases principales, consistiendo el imán sinterizado a base de R-T-B en:

65

R: el 29,0% en masa o más y el 31,5% en masa o menos (siendo R Nd y/o Pr),

Ga: el 0,4% en masa o más y el 0,6% en masa o menos,

Al: el 0,5% en masa o menos (incluyendo el 0% en masa), y siendo el resto T (T es un elemento de metal de transición e incluye inevitablemente Fe) e impurezas inevitables.

5 El imán sinterizado a base de R-T-B incluye además opcionalmente:

Cu: el 0,05% en masa o más y el 0,20% en masa o menos.

10 Un aspecto 2 de la presente invención se refiere al imán sinterizado a base de R-T-B en el aspecto 1, en el que el contenido de B es del 0,87% en masa o más y del 0,89% en masa o menos.

15 Un aspecto 3 de la presente invención se refiere al imán sinterizado a base de R-T-B en uno cualquiera del aspecto 1 o 2, en el que una fase de R-Ga que incluye R: el 70% en masa o más y el 95% en masa o menos, Ga: el 5% en masa o más y el 30% en masa o menos, y Fe: el 20% en masa o menos (incluyendo 0) está presente en la primera fase de límite de grano.

20 Un aspecto 4 de la presente invención se refiere al imán sinterizado a base de R-T-B en los aspectos 1 a 3, en el que una fase de R-Ga que incluye R: el 70% en masa o más y el 95% en masa o menos, Ga: el 5% en masa o más y el 30% en masa o menos, y Fe: el 20% en masa o menos (incluyendo 0), y una fase de R-Ga-Cu en la que el Ga de la fase de R-Ga está parcialmente reemplazado por Cu están presentes en la primera fase de límite de grano.

25 Un aspecto 5 de la presente invención se refiere al imán sinterizado a base de R-T-B en uno cualquiera de los aspectos 1 a 4, que incluye una primera fase de límite de grano libre de una fase de R-T-Ga compuesta por $R_6Fe_{13}Ga_1$.

Efectos de la invención

30 Según la presente invención, es posible proporcionar un imán sinterizado a base de R-T-B que tenga una alta B_r y una alta H_{cJ} sin usar Dy.

Breve descripción de los dibujos

35 La Fig. 1 es una fotografía que muestra los resultados de observación de la estructura mediante FE-TEM de la muestra n.º 14 del ejemplo.

La Fig. 2 es una fotografía que muestra una parte ampliada rodeada por una línea discontinua en la Fig. 1.

40 La Fig. 3 es una fotografía que muestra los resultados de observación de la estructura mediante FE-TEM de la muestra n.º 2 de ejemplo.

La Fig. 4 es una fotografía que muestra una parte ampliada rodeada por una línea discontinua en la Fig. 3.

Realización de la invención

45 Los inventores han realizado estudios intensivos para solucionar los problemas anteriores y han encontrado que, tal como se muestra en el aspecto 1 o 2 de la presente invención, se obtiene un imán sinterizado a base de R-T-B que tiene una alta B_r y una alta H_{cJ} sin usar Dy optimizando los contenidos de R, B y Ga. Como resultado de un análisis del imán sinterizado a base de R-T-B así obtenido, los inventores han encontrado que una fase de R-Ga está presente en una primera fase de límite de grano ubicada entre dos fases principales (denominada a continuación en el presente documento en ocasiones "fase de límite de dos granos") cuando no incluye Cu, y una fase de R-Ga y una fase de R-Ga-Cu están presentes en una primera fase de límite de grano ubicada entre dos fases principales cuando incluyen Cu. Como resultado de un análisis más detallado, han encontrado que está incluida una primera fase de límite de grano libre de una fase de R-T-Ga.

55 Hay todavía puntos que no están claros en cuanto al mecanismo con el que se obtienen una alta B_r y una alta H_{cJ} sin usar Dy mediante la existencia de una fase de R-Ga o una fase de R-Ga y una de R-Ga-Cu en una primera fase de límite de grano, y la inclusión de una primera fase de límite de grano libre de una fase de R-T-Ga. Se hará una descripción sobre el mecanismo propuesto por los inventores basándose en los hallazgos que han realizado hasta el momento. Debe indicarse que la descripción con respecto al siguiente mecanismo no pretende limitar el alcance técnico de la presente invención.

65 El imán sinterizado a base de R-T-B posibilita un aumento de B_r aumentando una relación de existencia de un compuesto de tipo $Nd_2Fe_{14}B$ que es una fase principal. Para aumentar la relación de existencia del compuesto de tipo $Nd_2Fe_{14}B$, la cantidad de R, la cantidad de T y la cantidad de B pueden aproximarse más a una relación estequiométrica del compuesto de tipo $Nd_2Fe_{14}B$. Si la cantidad de B para la formación del compuesto de tipo $Nd_2Fe_{14}B$ es menor que la relación estequiométrica, una fase de R_2T_{17} magnética blanda precipita en una fase de

límite de grano, conduciendo a una reducción rápida de H_{cJ} . Sin embargo, si está incluido Ga en la composición del imán, se forma una fase de R-T-Ga en lugar de una fase de R_2T_{17} , posibilitando así la supresión de una reducción de H_{cJ} .

- 5 El motivo por el cual se suprime una reducción de H_{cJ} mediante la formación de una fase de R-T-Ga se suponía inicialmente que era que desaparece una fase de R_2T_{17} que provoca una reducción rápida de H_{cJ} y también que la fase de R-T-Ga así formada no tiene magnetización o tiene una magnetización extremadamente débil. Sin embargo, resulta evidente que la fase de R-T-Ga también tiene una ligera magnetización y, si la fase de R-T-Ga está presente de manera excesiva en la fase de límite de grano, particularmente, fase de límite de dos granos a cargo de la H_{cJ} , la magnetización impide que aumente la H_{cJ} . También resulta evidente que se forma una fase de R-Ga cuando no incluye Cu junto con la formación de la fase de R-T-Ga, mientras que la fase de R-Ga y la fase de R-Ga-Cu se forman cuando incluye Cu junto con la formación de la fase de R-T-Ga.

15 Por tanto, se supuso que la H_{cJ} puede aumentarse adicionalmente si la fase de R-Ga o la fase de R-Ga y la de R-Ga-Cu pueden formarse al tiempo que se suprime la formación de la fase de R-T-Ga en la fase de límite de dos granos. También se supuso que también puede suprimirse una reducción de B_r dado que la cantidad de B no provoca una disminución significativa en la relación de existencia de una fase principal como resultado de la supresión de la formación de la fase de R_2T_{17} para suprimir la formación de la fase de R-T-Ga. Sin embargo, si la formación de la fase de R-T-Ga se suprime excesivamente, es imposible formar la fase de R-Ga o la fase de R-Ga y la de R-Ga-Cu. Por tanto, controlando la cantidad de R y la cantidad de B dentro de un intervalo apropiado para ajustar la cantidad de precipitación de una fase de R_2T_{17} , y también controlando la cantidad de Ga dentro de un intervalo óptimo que corresponde a la cantidad de precipitación de la fase de R_2T_{17} , pueden formarse la fase de R-Ga o la fase de R-Ga y la de R-Ga-Cu al tiempo que se suprime la formación de la fase de R-T-Ga en la medida más pequeña posible. De este modo, resulta posible obtener una estructura en la que una fase de R-Ga o una fase de R-Ga y una de R-Ga-Cu está(n) presente(s) en la fase de límite de dos granos en todo el imán sinterizado a base de R-T-B, y también están presentes numerosos límites de grano de dos granos libres de una fase de R-T-Ga. De este modo, se reduce la supresión de un aumento de H_{cJ} debido a la fase de R-T-Ga y también se suprime una disminución en la relación de existencia de una fase principal, haciendo así posible obtener con mayor certeza un imán sinterizado a base de R-T-B que tiene una alta B_r y una alta H_{cJ} .

30 [Composición de imán sinterizado a base de R-T-B]

El imán sinterizado a base de R-T-B según una realización de la presente invención consiste en:

35 R: el 29,0% en masa o más y el 31,5% en masa o menos (siendo R Nd y/o Pr),

B: el 0,86% en masa o más y el 0,90% en masa o menos,

40 Ga: el 0,4% en masa o más y el 0,6% en masa o menos,

Al: el 0,5% en masa o menos (incluyendo el 0% en masa), y siendo el resto T (T es un elemento de metal de transición e incluye inevitablemente Fe) e impurezas inevitables.

Alternativamente, el imán sinterizado a base de R-T-B según una realización de la presente invención consiste en:

45 R: el 29,0% en masa o más y el 31,5% en masa o menos (siendo R Nd y/o Pr),

B: el 0,86% en masa o más y el 0,90% en masa o menos,

50 Ga: el 0,4% en masa o más y el 0,6% en masa o menos,

Cu: el 0,05% en masa o más y el 0,20% en masa o menos,

55 Al: el 0,5% en masa o menos (incluyendo el 0% en masa), y siendo el resto T (T es un elemento de metal de transición e incluye inevitablemente Fe) e impurezas inevitables.

La presente invención puede ejercer el efecto capaz de obtener una alta B_r y una alta H_{cJ} combinando la cantidad de R, la cantidad de B y la cantidad de Ga dentro del intervalo anterior. Si una cualquiera de la cantidad de R, la cantidad de B y la cantidad de Ga se desvía del intervalo anterior, la formación de la fase de R-T-Ga se suprime excesivamente. Por consiguiente, en todo el imán sinterizado a base de R-T-B, la fase de R-Ga, o la fase de R-Ga y la de R-Ga-Cu no se forma(n) en una fase de límite de dos granos, mientras que disminuye una fase de límite de dos granos libre de una fase de R-T-Ga (la fase de límite de dos granos que incluye una fase de R-T-Ga pasa a ser dominante), no obteniendo así una alta B_r ni una alta H_{cJ} .

65 R es Nd y/o Pr. El contenido de R se fija dentro de un intervalo del 29,0% en masa o más y el 31,5% en masa o menos. El contenido de B se fija dentro de un intervalo del 0,86% en masa o más y el 0,90% en masa o menos. El

contenido de B es preferiblemente del 0,87% en masa o más y del 0,89% en masa o menos. El contenido de Ga se fija dentro de un intervalo del 0,4% en masa o más y el 0,6% en masa o menos. El resto T es un elemento de metal de transición e incluye inevitablemente Fe. Los ejemplos del elemento de metal de transición excepto para Fe incluyen Co. No es preferible que la cantidad de sustitución de Co de más del 10% conduzca a una reducción de B.

5 Los ejemplos del elemento de metal de transición pueden incluir además una pequeña cantidad de V, Cr, Mn, Zr, Nb, Mo, Hf, Ta, W y similares.

Además de cada elemento mencionado anteriormente, el 0,05% en masa o más y el 0,20% en masa o menos de Cu puede estar incluido. La inclusión de Cu condujo a la formación de una fase de R-Ga-Cu en la fase de límite de dos granos, junto con una fase de R-Ga. La formación de la fase de R-Ga-Cu conduce a un aumento adicional de H_{cJ} en comparación con el caso de la fase de R-Ga sola. El contenido de Cu es preferiblemente del 0,08% en masa o más y del 0,15% en masa o menos. El imán puede tener el mismo grado de contenido de Al que el usual. El intervalo en el que se ejercen los efectos conocidos se fija al 0,5% en masa o menos (incluyendo el 0% en masa), y preferiblemente el 0,3% en masa o menos.

En la presente invención, la fase de R-T-Ga puede incluir: R: el 15% en masa o más y el 65% en masa o menos (preferiblemente, R: el 40% en masa o más y el 65% en masa o menos), T: el 20% en masa o más y el 80% en masa o menos, Ga: el 2% en masa o más y el 20% en masa o menos (cuando el contenido de R es del 40% en masa o más y del 65% en masa o menos, el contenido de T puede ser del 20% en masa o más y del 55% en masa o menos, y el contenido de Ga puede ser del 2% en masa o más y del 15% en masa o menos), y ejemplos de la misma incluyen un compuesto $R_6Fe_{13}Ga_1$. Más específicamente, la fase de R-T-Ga puede estar compuesta en su totalidad por un compuesto $R_6Fe_{13}Ga_1$ o puede incluir un compuesto $R_6Fe_{13}Ga_1$, siempre que incluya R: el 15% en masa o más y el 65% en masa o menos (preferiblemente, R: el 40% en masa o más y el 65% en masa o menos), T: el 20% en masa o más y el 80% en masa o menos, Ga: el 2% en masa o más y el 20% en masa o menos (cuando el contenido de R es del 40% en masa o más y del 65% en masa o menos, el contenido de T puede ser del 20% en masa o más y del 55% en masa o menos, y el contenido de Ga puede ser del 2% en masa o más y del 15% en masa o menos). La fase de R-T-Ga puede incluir otros elementos a excepción de los R, T y Ga mencionados anteriormente. La fase de R-T-Ga puede contener, como estos otros elementos, uno o más elementos seleccionados de Al y Cu. La fase de R-Ga puede incluir el 70% en masa o más y el 95% en masa o menos de R, el 5% en masa o más y el 30% en masa o menos de Ga, y el 20% en masa o menos (incluyendo 0) de Fe, y los ejemplos de la misma incluyen un compuesto R_3Ga_1 . Más específicamente, la fase de R-Ga puede estar compuesta en su totalidad por un compuesto R_3Ga_1 o puede incluir un compuesto R_3Ga_1 , siempre que incluya R: el 70% en masa o más y el 95% en masa o menos, Ga: el 5% en masa o más y el 30% en masa o menos, y Fe: el 20% en masa o menos (incluyendo 0). La fase de R-Ga-Cu puede ser una fase en la que el Ga de la fase de R-Ga está parcialmente reemplazado por Cu, y ejemplos de la misma incluyen un compuesto $R_3(Ga,Cu)_1$. Más específicamente, la fase de R-Ga-Cu puede estar compuesta en su totalidad por un compuesto $R_3(Ga,Cu)_1$ o puede incluir un compuesto $R_3(Ga,Cu)_1$, siempre que el Ga de la fase de R-Ga esté parcialmente reemplazado por Cu.

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

Se describirá 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 un polvo de aleación, una etapa de moldeo, una etapa de sinterización y una etapa de tratamiento térmico. Cada etapa se describirá a continuación.

(1) Etapa de obtención de polvo de aleación

Se prepararon metales o aleaciones de los respectivos elementos para obtener la composición mencionada anteriormente, y se produce una aleación en copos a partir de los mismos usando un método de colada de bandas. La aleación en copos así obtenida se somete a decrepitación de hidrógeno para obtener un polvo triturado de manera gruesa que tiene un tamaño de 1,0 mm o menos. A continuación, el polvo triturado de manera gruesa se pulveriza finamente mediante un molino de chorro para obtener un polvo pulverizado finamente (polvo de aleación) que tiene un diámetro de partícula D50 (valor obtenido mediante un método de difracción láser usando un método de dispersión de flujo de aire (tamaño medio)) de 3 a 7 μm . Puede usarse un lubricante conocido como agente auxiliar de pulverización en un polvo triturado de manera gruesa antes de la pulverización en molino de chorro, o un polvo de aleación durante y tras la pulverización en molino de chorro.

(2) Etapa de moldeo

Usando el polvo de aleación así obtenido, se realiza el moldeo en un campo magnético para obtener un cuerpo moldeado. El moldeo en un campo magnético puede realizarse usando métodos de moldeo opcionales conocidos en un campo magnético que incluye un método de moldeo en seco en el que un polvo de aleación seco se carga en una cavidad de una coquilla y entonces se moldea al tiempo que se aplica un campo magnético, y un método de moldeo en húmedo en el que una suspensión que contiene el polvo de aleación dispersada en la misma se inyecta en una cavidad de una coquilla y entonces se moldea al tiempo que se descarga un medio de dispersión de la suspensión.

(3) Etapa de sinterización

5 El cuerpo moldeado se sinteriza para obtener un imán sinterizado. Puede usarse un método conocido para sinterizar el cuerpo moldeado. Para evitar la oxidación debido a una atmósfera durante la sinterización, la sinterización se realiza preferiblemente en una atmósfera a vacío o un gas atmosférico. Es preferible usar, como gas atmosférico, un gas inerte tal como helio o argón.

(4) Etapa de tratamiento térmico

10 El imán sinterizado así obtenido se somete preferiblemente a un tratamiento térmico con el propósito de mejorar las propiedades magnéticas. Pueden emplearse condiciones conocidas para la temperatura de tratamiento térmico, el tiempo de tratamiento térmico y similares. Para ajustar el tamaño del imán sinterizado, el imán obtenido puede someterse a mecanizado tal como molienda. En ese caso, el tratamiento térmico puede realizarse antes o después del mecanizado. El imán sinterizado también puede someterse a un tratamiento superficial. El tratamiento superficial
15 puede ser un tratamiento superficial conocido, y es posible realizar tratamientos superficiales, por ejemplo, deposición en fase vapor de Al, galvanoplastia de Ni, recubrimiento con resina y similares.

Ejemplos

20 La presente invención se describirá más detalladamente a continuación mediante los ejemplos, pero la presente invención no está limitada a los mismos.

Se prepararon Nd que tenía una pureza del 99,5% en masa o más, hierro electrolítico, Co, Al, Cu, Ga electrolíticos y aleación de ferroboro de modo que la composición de un imán sinterizado pasara a ser cada composición mostrada
25 en la tabla 1, y entonces se fundieron estos materiales de partida y se sometieron a colada mediante un método de colada de bandas para obtener una aleación en copos que tenía un grosor de 0,2 a 0,4 mm. La aleación en copos así obtenida se sometió a fragilización por hidrógeno en una atmósfera de hidrógeno presurizada y entonces se sometió a tratamiento deshidrogenación de calentamiento hasta 550°C a vacío y enfriamiento para obtener un polvo triturado de manera gruesa. Al polvo triturado de manera gruesa así obtenido se le añadió estearato de cinc como
30 lubricante en la proporción del 0,04% en masa basada en el 100% en masa del polvo triturado de manera gruesa, seguido de mezclado. Usando un pulverizador de tipo flujo de aire (máquina de molienda por chorro), la mezcla se sometió a pulverización en seco en un flujo de gas de nitrógeno para obtener un polvo pulverizado finamente (polvo de aleación) que tenía un diámetro de partícula D50 (tamaño medio) de 4 µm. La concentración de oxígeno en un gas de nitrógeno durante la pulverización se controló a 50 ppm o menos. El diámetro de partícula D50 es el valor
35 obtenido mediante un método de difracción láser usando un método de dispersión de flujo de aire.

El polvo de aleación así obtenido se mezcló con un medio de dispersión para preparar una suspensión. Se usó dodecano normal como disolvente y se añadió caprilato de metilo como lubricante. En cuanto a la concentración de la suspensión, la proporción del polvo de aleación se fijó al 70% en masa y la del medio de dispersión se fijó al 30%
40 en masa, mientras que la proporción del lubricante se fijó al 0,16% en masa basada en el 100% en masa del polvo de aleación. La suspensión se moldeó en un campo magnético para obtener un cuerpo moldeado. El campo magnético durante el moldeo era un campo magnético estático fijado a 0,8 MA/m y la presión de moldeo se fijó a 5 MPa. Un dispositivo de moldeo usado fue un denominado dispositivo de moldeo de campo magnético perpendicular (dispositivo de moldeo de campo magnético transversal) en el que una dirección de aplicación de
45 campo magnético y una dirección de presurización son perpendiculares entre sí.

El cuerpo moldeado así obtenido se sinterizó a vacío a 1.020°C durante 4 horas para obtener un imán sinterizado. El imán sinterizado tenía una densidad de 7,5 mg/m³ o más. El cuerpo sinterizado así obtenido se sometió a un
50 tratamiento térmico de conservación a 800°C durante 2 horas y enfriamiento hasta temperatura ambiente, seguido de conservación a 500°C durante 2 horas y enfriamiento hasta temperatura ambiente. El imán sinterizado tras el tratamiento térmico se mecanizó para producir muestras de 7 mm de longitud x 7 mm de anchura x 7 mm de grosor, y se midieron la B_r y H_{cJ} de cada muestra mediante un trazador de B-H. Los resultados de medición se muestran en la tabla 1.

55

[Tabla 1]

Muestra n.º	Composición de imán sinterizado (% en masa)							Br (T)	H _{cj} (kA/m)	Comentarios
	Nd	B	Ga	Cu	Co	Al	Fe			
1	28,50	0,88	0,50	-	0,50	0,28	69,34	1,41	700	Ejemplo comparativo
2	29,00	0,85	0,50	-	0,50	0,28	68,87	1,36	890	Ejemplo comparativo
3	29,00	0,86	0,50	-	0,50	0,28	68,86	1,39	1230	Ejemplo de la presente invención
4	29,00	0,89	0,50	-	0,50	0,28	68,83	1,40	1290	Ejemplo de la presente invención
5	29,00	0,90	0,50	-	0,50	0,28	68,82	1,40	1240	Ejemplo de la presente invención
6	29,00	0,91	0,50	-	0,50	0,28	68,81	1,41	1050	Ejemplo comparativo
7	30,00	0,85	0,50	-	0,50	0,28	67,87	1,34	1100	Ejemplo comparativo
8	30,00	0,86	0,50	-	0,50	0,28	67,86	1,37	1365	Ejemplo de la presente invención
9	30,00	0,88	0,50	-	0,50	0,28	67,84	1,38	1400	Ejemplo de la presente invención
10	30,00	0,90	0,50	-	0,50	0,28	67,82	1,39	1365	Ejemplo de la presente invención
11	30,00	0,91	0,50	-	0,50	0,28	67,81	1,39	1150	Ejemplo comparativo
12	31,50	0,85	0,50	-	0,50	0,28	66,37	1,31	1420	Ejemplo comparativo
13	31,50	0,86	0,50	-	0,50	0,28	66,36	1,33	1580	Ejemplo de la presente invención
14	31,50	0,88	0,50	-	0,50	0,28	66,34	1,35	1650	Ejemplo de la presente invención
15	31,50	0,90	0,50	-	0,50	0,28	66,32	1,36	1550	Ejemplo de la presente invención
16	31,50	0,91	0,50	-	0,50	0,28	66,31	1,36	1240	Ejemplo comparativo
17	32,00	0,89	0,50	-	0,50	0,28	65,83	1,34	1300	Ejemplo comparativo
18	32,24	0,88	0,50	-	0,50	0,28	65,60	1,33	1300	Ejemplo comparativo
19	31,00	0,89	0,50	-	0,50	0,28	66,83	1,36	1530	Ejemplo de la presente invención
20	31,00	0,89	0,50	0,05	0,50	0,28	66,78	1,36	1590	Ejemplo de la presente invención
21	31,00	0,89	0,50	0,10	0,50	0,28	66,73	1,36	1610	Ejemplo de la presente invención
22	31,00	0,89	0,50	0,20	0,50	0,28	66,63	1,36	1600	Ejemplo de la presente invención
23	31,00	0,89	0,30	-	0,50	0,28	67,03	1,36	1320	Ejemplo comparativo
24	31,00	0,89	0,40	-	0,50	0,28	66,93	1,36	1510	Ejemplo de la presente invención
25	31,00	0,89	0,60	-	0,50	0,28	66,73	1,35	1540	Ejemplo de la presente invención
26	31,00	0,89	0,70	-	0,50	0,28	66,63	1,34	1400	Ejemplo comparativo

- 5 Como resulta evidente a partir de la tabla 1, se obtiene un imán sinterizado a base de R-T-B que tiene una alta B_r y una alta H_{cj} ajustando la composición dentro del siguiente intervalo en el que Nd: el 29,0% en masa o más y el 31,5% en masa o menos, B: el 0,86% en masa o más y el 0,90% en masa o menos, y Ga: el 0,4% en masa o más y el 0,6% en masa o menos. Resulta evidente que H_{cj} está más aumentado que en el caso en el que no incluye Cu (muestra n.º 19) incluyendo el 0,05% en masa o más y el 0,20% en masa o menos de Cu (muestras n.ºs 20 a 22).
- 10 Dado que se obtienen las B_r y H_{cj} más excelentes cuando la cantidad de B es de aproximadamente el 0,88% en masa, se considera que la cantidad de B es preferiblemente del 0,87% en masa o más y del 0,89% en masa o menos.

- 15 Para la muestra n.º 14 (ejemplo de la presente invención) y la muestra n.º 2 (ejemplo comparativo) en la tabla 1 se realizó la observación de la estructura mediante FE-TEM (microscopio electrónico de transmisión con emisión de campo). Los resultados se muestran en la Fig. 1 a la Fig. 4. La Fig. 1 y la Fig. 2 son fotografías que muestran los resultados de observación de la estructura de la muestra n.º 14 (ejemplo de la presente invención), mientras que la Fig. 3 y la Fig. 4 son fotografías que muestran los resultados de observación la estructura de la muestra n.º 2 (ejemplo comparativo). La Fig. 2 es una fotografía que muestra una parte ampliada rodeada por una línea discontinua en la Fig. 1, mientras que la Fig. 4 es una fotografía que muestra una parte ampliada rodeada por una
- 20

línea discontinua en la Fig. 3. Para los puntos A a F en la Fig. 1 a la Fig. 4, se realizó un análisis de composición mediante EDS (espectrometría de rayos X con dispersión de energía). Los resultados se muestran en la tabla 2.

[Tabla 2]

Punto	Resultados de análisis de composición mediante EDS (% en masa)					Comentarios
	Nd	Ga	Co	Al	Fe	
A	59,3	4,7	0,9	1,2	31,6	Ejemplo de la presente invención
B	78,3	7,0	1,4	0,8	4,1	Ejemplo de la presente invención
C	37,3	0,0	0,8	0,8	59,1	Ejemplo de la presente invención
D	80,8	9,4	2,0	0,8	1,8	Ejemplo comparativo
E	60,6	3,8	0,6	0,9	31,6	Ejemplo comparativo
F	38,2	0,0	0,6	0,8	58,2	Ejemplo comparativo

5 En la Fig. 1, un parte del punto A es una segunda fase de límite de grano ubicada entre tres o más fases principales (multipunto de límite de grano) y una parte rodeada por una línea discontinua indica dos fases principales y una primera fase de límite de grano ubicada entre dos fases principales (fase de límite de dos granos) y, tal como se muestra en la Fig. 2, el punto B es una fase de límite de dos granos y el punto C es una fase principal (compuesto de tipo $Nd_2Fe_{14}B$). En la Fig. 3, un parte del punto D es un multipunto de límite de grano, una parte rodeada por una línea discontinua indica dos fases principales y una fase de límite de dos granos y, tal como se muestra en la Fig. 4, el punto E es una fase de límite de dos granos y el punto F es una fase principal.

10 Los resultados mostrados en la tabla 2 revelan que, en la muestra n.º 14 que es un ejemplo de la presente invención, una fase de R-T-Ga (compuesto $Nd_6Fe_{13}Ga_1$) está presente en el punto A (multipunto de límite de grano), una fase de R-Ga (compuesto Nd_3Ga_1) está presente en el punto B (fase de límite de dos granos) y el punto C indica una fase principal. Por tanto, resulta evidente que una fase de R-Ga está presente en una primera fase de límite de grano en un imán sinterizado a base de R-T-B según la presente invención. Considerando el hecho que el contenido de Fe en el punto B es del 20% o menos, resulta evidente que una fase de R-T-Ga no está presente en el punto B, concretamente está incluida una primera fase de límite de grano libre de una fase de R-T-Ga.

15 Los resultados mostrados en la tabla 2 revelan que, en la muestra n.º 2 que es un ejemplo comparativo, una fase de R-Ga (compuesto Nd_3Ga_1) está presente en el punto D (multipunto de límite de grano), una fase de R-T-Ga (compuesto $Nd_6Fe_{13}Ga_1$) está presente en el punto E (fase de límite de dos granos) y el punto C indica una fase principal. Por tanto, resulta evidente que no está presente una fase de R-Ga en una primera fase de límite de grano y está presente una fase de R-T-Ga, en un imán sinterizado a base de R-T-B según el ejemplo comparativo. La muestra n.º 14 presenta una B_r de 1,35 T y una H_{cJ} de 1.650 kA/m, y la muestra n.º 2 presenta una B_r de 1,36 T y una H_{cJ} de 890 kA/m. Por tanto, según la presente invención, se obtiene una alta B_r dado que la cantidad de B se fija para ser de tal grado que no provoca una disminución significativa en la relación de existencia de una fase principal, y también se obtiene una alta H_{cJ} porque incluye una primera fase de límite de grano libre de fase de R-T-Ga que impide un aumento de la H_{cJ} existente en la misma.

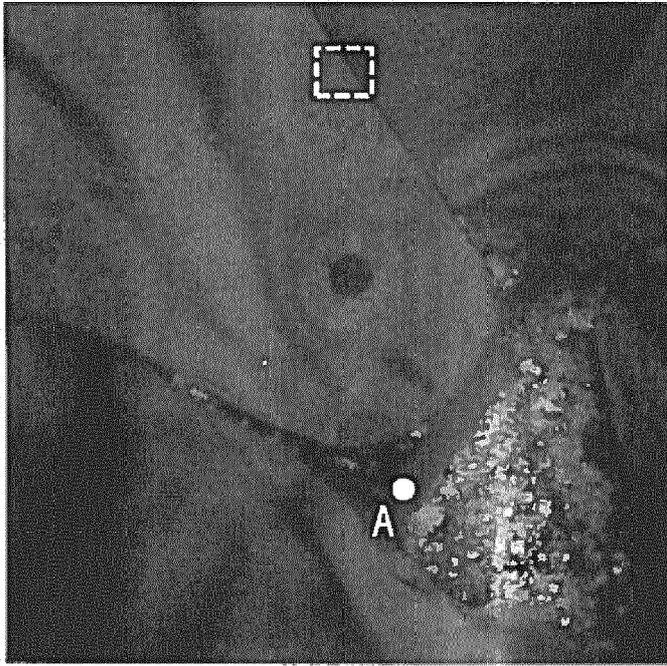
Aplicabilidad industrial

35 El imán sinterizado a base de R-T-B según la presente invención puede emplearse de manera adecuada en motores para vehículos híbridos y vehículos eléctricos.

REIVINDICACIONES

- 1.- Un imán sinterizado a base de R-T-B que incluye un compuesto de tipo $Nd_2Fe_{14}B$ como fase principal que comprende:
- 5 la fase principal,
- una primera fase de límite de grano ubicada entre dos fases principales, y
- 10 una segunda fase de límite de grano ubicada entre tres o más fases principales,
- consistiendo la composición del imán sinterizado a base de R-T-B en:
- R: el 29,0% en masa o más y el 31,5% en masa o menos, siendo R Nd y/o Pr,
- 15 B: el 0,86% en masa o más y el 0,90% en masa o menos,
- Ga: el 0,4% en masa o más y el 0,6% en masa o menos,
- 20 Al: el 0,5% en masa o menos, incluyendo el 0% en masa, y siendo el resto T, siendo T un elemento de metal de transición e incluye inevitablemente Fe; e impurezas inevitables,
- incluyendo el imán sinterizado a base de R-T-B además opcionalmente:
- 25 Cu: el 0,05% en masa o más y el 0,20% en masa o menos.
- 2.- El imán sinterizado a base de R-T-B según la reivindicación 1, en el que el contenido de Cu es del 0,08% en masa o más y del 0,15% en masa o menos.
- 30 3.- El imán sinterizado a base de R-T-B según la reivindicación 1 o 2, en el que el contenido de B es del 0,87% en masa o más y del 0,89% en masa o menos.
- 4.- El imán sinterizado a base de R-T-B según una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3, en el que el contenido de Al es del 0,3% en masa o menos, incluyendo el 0% en masa.
- 35 5.- El imán sinterizado a base de R-T-B según una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 4, en el que una fase de R-Ga que incluye R: el 70% en masa o más y el 95% en masa o menos, Ga: el 5% en masa o más y el 30% en masa o menos, y Fe: el 20% en masa o menos, incluyendo 0, está presente en la primera fase de límite de grano.
- 40 6.- El imán sinterizado a base de R-T-B según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 5, en el que una fase de R-Ga que incluye R: el 70% en masa o más y el 95% en masa o menos, Ga: el 5% en masa o más y el 30% en masa o menos, y Fe: el 20% en masa o menos, incluyendo 0, y una fase de R-Ga-Cu en la que el Ga de la fase de R-Ga está parcialmente reemplazado por Cu están presentes en la primera fase de límite de grano.
- 45 7.- El imán sinterizado a base de R-T-B según una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 6, que incluye una primera fase de límite de grano libre de una fase de R-T-Ga compuesta por $R_6Fe_{13}Ga_1$.

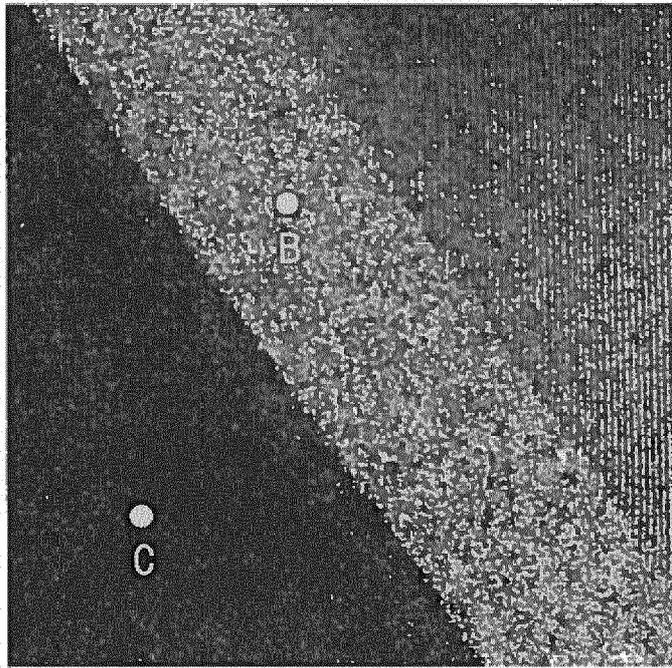
Fig. 1



100x Magnification

100x Magnification

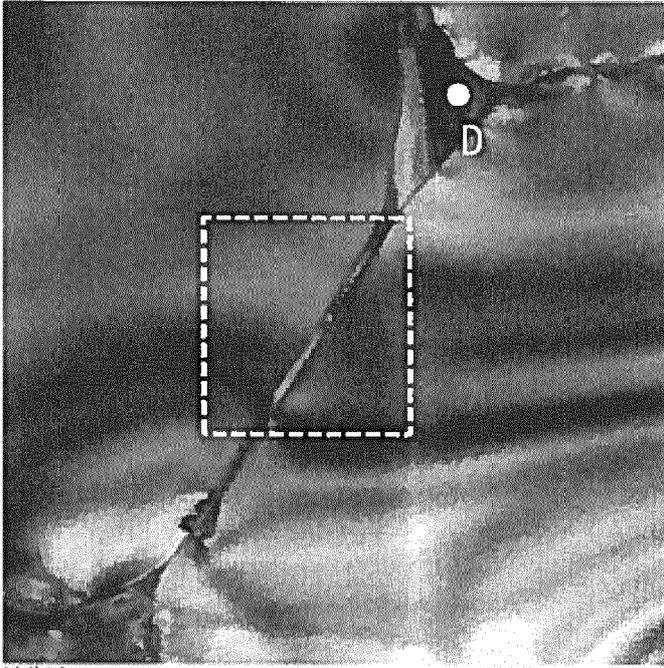
Fig. 2



1-4100-2-034
2000-0001-000000

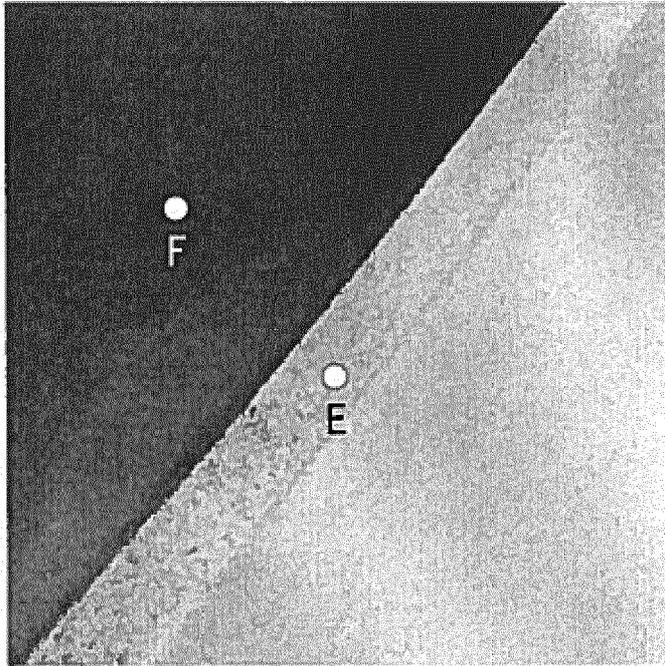
1-4100-2-034
2000-0001-000000

Fig. 3



100 mm
100 mm
Printed Mag: 40000

Fig. 4



700000
700000
700000
700000