

[19] 中华人民共和国国家知识产权局

[51] Int. Cl.

H01F 1/057 (2006.01)

H01F 1/08 (2006.01)

B22F 1/00 (2006.01)

B22F 9/04 (2006.01)



# [12] 发明专利说明书

专利号 ZL 01116103.5

[45] 授权公告日 2006年8月30日

[11] 授权公告号 CN 1272809C

[22] 申请日 2001.5.9 [21] 申请号 01116103.5

[30] 优先权

[32] 2000. 5. 9 [33] JP [31] 2000 - 136277

[32] 2000. 6. 30 [33] JP [31] 2000 - 198508

[71] 专利权人 株式会社新王磁材

地址 日本大阪

[72] 发明人 冈山克己 石垣尚幸 奥村修平

审查员 陈玉华

[74] 专利代理机构 北京纪凯知识产权代理有限公司

司

代理人 龙 淳

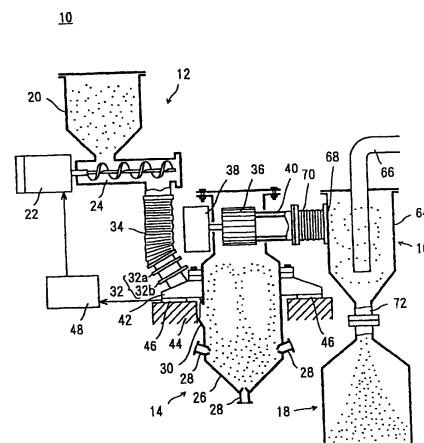
权利要求书 4 页 说明书 15 页 附图 3 页

## [54] 发明名称

R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末及制法、稀土磁铁及制法

## [57] 摘要

本发明提供 R 是稀土元素和/或钷的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的制造方法。该方法包括：对稀土磁铁用原料合金进行粗粉碎的第 1 粉碎工序和对原料合金进行细粉碎的第 2 粉碎工序。在第 1 粉碎工序中，使用氢粉碎法粉碎原料合金。在第 2 粉碎工序中，使用氧含量为 0.02 ~ 5 体积% 的惰性气体的高速气流，对所述合金进行细粉碎，除去易氧化的超细粉（粒径  $1.0 \mu\text{m}$  以下），将超细粉的数量比率调节到占粉末全体的 10% 以下。由此能改进合金粉末的性质，提高磁铁的磁特性。



1. 一种 R 是稀土元素和 / 或钷的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的制造方法, 包括对稀土磁铁用原料合金进行粗粉碎的第 1 粉碎工序, 以及对所述原料合金进行细粉碎的第 2 粉碎工序, 其中,

所述第 1 粉碎工序包括用氢粉碎法粉碎所述原料合金的工序;

所述第 2 粉碎工序包括使用氧含量为 0.02~5 体积%的惰性气体的高速气流, 对所述合金进行细粉碎, 除去至少一部分粒径 1.0 $\mu\text{m}$  以下的细粉, 由此将粒径 1.0 $\mu\text{m}$  以下细粉的数量调整到粉末全体粒子数量的 10%以下的工序。

2. 根据权利要求 1 记载的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的制造方法, 其特征是粒径 1.0 $\mu\text{m}$  以下的所述细粉中所含稀土元素的平均浓度高于所述粉末全体所含稀土元素的平均浓度。

3. 一种 R 是稀土元素和 / 或钷的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的制造方法, 包括对利用急冷法制作的稀土磁铁用原料合金进行粗粉碎的第 1 粉碎工序, 以及对所述原料合金进行细粉碎的第 2 粉碎工序, 其中,

所述第 2 粉碎工序包括使用氧含量为 0.02~5 体积%的惰性气体的高速气流, 对所述合金进行细粉碎, 除去至少一部分稀土元素浓度比粉末全体所含稀土元素平均浓度高的粉末, 由此通过与稀土元素结合的形态来降低粉末中含氧量的平均浓度的工序。

4. 根据权利要求 1 记载的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的制造方法, 其特征是所述氧的浓度调整到 0.05 体积%以上、3 体积%以下。

5. 根据权利要求 1 记载的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的制造方法, 其特征是作为所述稀土磁铁用原料合金, 使用稀土含量不同的多种稀土磁铁用原料合金。

6. 根据权利要求 5 记载的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的制造

方法，其特征是对所述稀土含量不同的多种稀土磁铁用原料合金分别进行所述第 1 粉碎工序，

对所述稀土含量不同的多种稀土磁铁用原料合金同时进行所述第 2 粉碎工序。

7. 根据权利要求 5 记载的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的制造方法，其特征是对所述稀土含量不同的多种稀土磁铁用原料合金分别进行所述第 1 和 2 粉碎工序；

在所述第 2 粉碎工序之后，将所述多种稀土磁铁用原料合金的粉末进行混合。

8. 根据权利要求 7 记载的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的制造方法，其特征在于所述合金的细粉碎是使用喷射式研磨粉碎装置进行的。

9. 根据权利要求 8 记载的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的制造方法，其特征是在所述喷射式研磨粉碎装置的后段连接分级机，对从该喷射式研磨粉碎装置排出的粉末进行分级。

10. 根据权利要求 1 或 3 记载的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的制造方法，其特征在于所述稀土磁铁用原料合金是将原料合金熔融液以  $10^2$ °C/秒以上、 $10^4$ °C/秒以下的冷却速度冷却得到的。

11. 根据权利要求 10 记载的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的制造方法，其特征在于所述原料合金熔融液的冷却是利用带材铸件法进行的。

12. 根据权利要求 1 或 3 记载的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的制造方法，其特征是利用所述第 1 粉碎工序获得的粉末的平均粒径为  $200\mu\text{m}\sim 1000\mu\text{m}$ 。

13. 根据权利要求 1 或 3 记载的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的

制造方法，其特征是利用所述第 2 粉碎工序获得的粉末的平均粒径在  $2\mu\text{m}$  以上、 $10\mu\text{m}$  以下的范围。

14. 根据权利要求 1 或 3 记载的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的制造方法，其特征在于对利用所述第 2 粉碎工序获得的粉末，还包括添加润滑剂的工序。

15. 一种 R-Fe-B 系稀土磁铁的制造方法，包括：

准备利用权利要求 1 或 3 记载的制造方法制作的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的工序；

将所述 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末加工成型，制作永久磁铁的工序。

16. 一种 R-Fe-B 系稀土磁铁的制造方法，包括：

准备利用权利要求 1 或 3 记载的制造方法制作的第 1 种 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的工序；

准备与所述第 1 种 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末不同的第 2 种 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的工序；

将所述第 1 种和第 2 种 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末混合，形成混合粉末的工序；

将所述混合粉末加工成型，制作成型体的工序；以及

将所述成型体进行烧结，制作永久磁铁的工序。

17. 一种的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末，它是利用权利要求 1 或 3 记载的制造方法制作的，其平均粒径为  $2\mu\text{m}$  以上、 $10\mu\text{m}$  以下，并且  $1.0\mu\text{m}$  以下的细粉数量被调节到占粉末全体粒子数量的 10% 以下。

18. 根据权利要求 17 记载的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末，其特征在于，该粉末是将原料合金熔融液以  $10^2\text{°C/秒}$  以上、 $10^4\text{°C/秒}$  以下的冷却速度进行冷却，并将所得合金进行粉碎而得。

---

19.一种 R-Fe-B 系稀土磁铁，其特征是利用权利要求 17 或 18 记载的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末制作的。

## R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末及制法、稀土磁铁及制法

### 技术领域

本发明涉及 R-Fe-B 系稀土磁铁及该磁铁用合金粉末及它们的制造方法。

### 背景技术

稀土烧结磁铁的制作，是将稀土磁铁用合金（原料合金）进行粉碎，再将形成的合金粉末挤压成型后，经过烧结工序和时效热处理工序而制得。目前，作为稀土烧结磁铁，钕·钴系磁铁和钕·铁·硼系磁铁二种，已广泛地应用于各个领域。其中，钕·铁·硼系磁铁（以下称作 R-Fe-B 系磁铁，R 为稀土元素和/或 Y(钇)，Fe 是铁、B 是硼）由于在各种磁铁中显示最高的磁能积，并且价格也比较便宜，所以被各种电子设备积极采用。另外，Fe 的一部分也可以置换成 Co 等过渡金属元素，B 的一部分也可以由 C 置换。

R-Fe-B 系稀土磁铁用原料合金的粉末，按照含有以下工序的方法制作，即，将原料合金进行粗粉碎的第 1 粉碎工序，和将原料合金进行细粉碎的第 2 粉碎工序。通常在第 1 粉碎工序中，利用氢粉碎装置进行粗粉碎，将原料合金粉碎成百数  $\mu\text{m}$  以下的尺寸，在第 2 粉碎工序中，利用喷射式磨要等粉碎装置将粗粉碎的合金（粗粉碎粉）细粉碎到平均粒径为数  $\mu\text{m}$  的尺寸。

对于原料合金自身的制作方法大致有两种。第 1 种方法是将原料合金的熔融液注入铸具中，进行比较缓慢冷却的坯料铸造法。第 2 种方法是以带材铸件法和离心铸造法为代表的急冷法，即将合金的熔融液与单辊、双辊、旋转盘、或旋转圆筒铸具等进行接触、急速冷却，由合金熔融液制造出比坯料合金更薄的凝固合金。

利用这种急冷法时，合金熔融液的冷却速度为  $10^2$  °C/秒以上、 $10^4$  °C/秒以下的范围。利用急冷法制作的急冷合金厚度为 0.03mm 以上、10mm 以下的范围。合金熔融液从与冷却辊的接触面（辊接触面）凝固，

从辊接触面沿厚度方向成长成柱状(针状)结晶。其结果,上述急冷合金形成具有细微的结晶组织,该结晶组织含有短轴方向尺寸为  $0.1\ \mu\text{m}$  以上、 $100\ \mu\text{m}$  以下,长轴尺寸为  $5\ \mu\text{m}$  以上、 $500\ \mu\text{m}$  以下的  $\text{R}_2\text{T}_{14}\text{B}$  结晶相,和分散存在于  $\text{R}_2\text{T}_{14}\text{B}$  结晶相晶界的富 R 相(稀土元素 R 的浓度相对较高的相)。富 R 相是稀土元素 R 的浓度比较高的非磁性相,其厚度(相当于晶界的宽度)在  $10\ \mu\text{m}$  以下。

急冷合金与以前利用坯料铸造法(模具铸造法)制造的合金比较,由于在相对短的时间内被冷却,其组织细微,结晶粒经小。由于结晶粒子分散细微,晶界面积很大,富 R 相在晶界内薄薄地扩散,所以富 R 相的分散性非常好。

由于将氢气吸藏在稀土合金(特别是急冷合金)中,用所谓的氢粉碎处理进行粗粉碎时(本说明书中把这种粉碎方法称为"氢粉碎法"),位于晶界处的富 R 相与氢进行反应,发生膨胀,将导致富 R 相的部分(晶界部分)趋向分割。因此,利用氢粉碎法粉碎稀土合金而获得的粉末粒子表面上很容易呈现出富 R 相。另外,在急冷合金的场合,富 R 相被细微化,其分散性也很高,所以富 R 相特别容易露出在氢粉碎粉的表面上。

根据本发明人的实验,如果利用喷射式研磨机等粉碎装置细粉碎这种状态的粗粉碎粉时,会产生富 R 的超细粉(粒径在  $1\ \mu\text{m}$  以下的微粉)。这种富 R 的超细粉,与稀土元素 R 的含量相对少的其他粉末粒子(具有相对大的粒径)相比极容易氧化,如果不把这种富 R 微粉从粉末中除去,而原封不动地制作烧结磁铁,在到烧结工序为止的制造工序中,稀土元素会进行显著的氧化。其结果是稀土元素 R 消耗在与氧的结合中,导致作为主相的  $\text{R}_2\text{T}_{14}\text{B}$  型结晶相的生成量降低。这种现象还会导致磁铁的矫顽磁力(保磁力)和剩余磁通密度降低,退磁曲线的矩形性恶化的后果。

为了防止富 R 微粉碎粉的氧化,理想的办法是从粉碎工序到烧结工序整个过程在惰性气氛中实施,但是,这种实施办法在工厂设施内以工业规模进行是极其困难的。

另外,有人提出了一种方法,即通过在导入微量氧的惰性气氛中进行微粉碎加工,有意识地在细粉碎粉的表面覆盖一层的薄氧化膜,

由此抑制粉末与大气之间的激烈氧化。

然而，在利用这种技术时，本发明人根据实验发现，在粉末中只要存在一定比例的富 R 超细粉，就不能充分改善和提高最终的磁特性，也不能将磁特性稳定地保持在最高水平。

## 发明内容

本发明是为了解决上述问题而提出的，其主要目的是提供一种磁特性得到充分提高、稳定的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的制造方法。

本发明的另一目的是，提供一种即使使用含富 R 相的原料合金，并利用氢粉碎处理进行粗粉碎时，也能使最终的磁特性得到充分改善和提高，并能使其稳定地保持在最高水平的优异的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的制造方法。

根据本发明，R 是稀土元素和 / 或钇的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的制造方法，是包括以下工序的稀土磁铁用合金粉末的制造方法，即，对稀土磁铁用原料合金进行粗粉碎的第 1 粉碎工序，和对上述原料合金进行细粉碎的第 2 粉碎工序。上述第 1 粉碎工序包括使用氢粉碎法粉碎上述原料合金的工序，上述第 2 粉碎工序包括使用氧含量为 0.02~5 体积%的惰性气体的高速气流，对所述合金进行细粉碎，至少除去一部分粒径在  $1.0\ \mu\text{m}$  以下的微粉，由此将粒径在  $1.0\ \mu\text{m}$  以下微粉的数量调节到粉末全部粒子数量的 10% 以下的工序。

在优选实施方案中，在粒径  $1.0\ \mu\text{m}$  以下的上述微粉中所含稀土元素的平均浓度，要高于上述全体粉末中所含稀土元素的平均浓度。

根据本发明的 R 是稀土元素和 / 或钇的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的制造方法，是包括以下工序的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的制造方法，即，将利用急冷法制造的稀土磁铁用原料合金进行粗粉碎的第 1 粉碎工序，和将上述原料合金进行细粉碎的第 2 粉碎工序。上述第 2 粉碎工序，包括使用氧含量为 0.02~5 体积%的惰性气体的高速气流，对所述合金进行细粉碎，至少除去一部分稀土元素的浓度比全体粉末所含稀土元素平均浓度高的粉末，由此降低与稀土元素呈结合形态的、含有在粉末中的氧的平均浓度的工序。



在上述惰性气体中，优选导入规定量的氧。这时，优选将上述氧的浓度调整到 0.05 体积%以上、3 体积%以下。

作为上述稀土磁铁用原料合金，可使用稀土含量不同的多种稀土磁铁用原料合金。

在一种实施方案中，上述第 1 粉碎工序，对上述稀土含量不同的多种稀土磁铁用原料合金分别进行，上述第 2 粉碎工序，对上述稀土含有量不同的多种稀土磁铁用原料合金同时进行。

在一种实施方案中，上述第 1 和第 2 粉碎工序，对上述稀土含量不同的多种稀土磁铁用原料合金分别进行，在上述第 2 粉碎工序之后，将上述多种稀土磁铁用原料合金的粉末进行混合。

上述合金的细粉碎可使用喷射式研磨粉碎装置进行。

在优选实施方案中，上述喷射式研磨粉碎装置的后段与分级机连接，对由喷射式研磨粉碎装置排出的粉末进行分级。

在优选实施方案中，上述稀土磁铁用原料合金，是将原料合金熔融液以  $10^2$  °C/秒以上  $10^4$  °C/秒以下的冷却速度进行冷却的。

上述原料合金熔融液的冷却优选用带材铸件法进行。

在优选实施方案中，利用上述第 1 粉碎工序获得的粉末平均粒径在  $200\ \mu\text{m}\sim 1000\ \mu\text{m}$ 。另外，在带材铸件法等急冷合金的场合，粉末的平均粒径在  $500\ \mu\text{m}$  以下。

利用上述第 2 粉碎工序获得的粉末平均粒径优选在  $2\ \mu\text{m}$  以上、 $10\ \mu\text{m}$  以下的范围。

对于利用上述第 2 粉碎工序获得的粉末，优选的是进一步包括添加润滑剂的工序。

根据本发明的 R-Fe-B 系稀土磁铁的制造方法，包括对利用上述任何一种 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的制造方法制造的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末进行准备的工序，和对上述 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末进行加工成型，制作永久磁铁的工序。

本发明的另一种 R-Fe-B 系稀土磁铁的制造方法，包括：对利用上述任何一种 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的制造方法制造的第 1 种 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末进行准备的工序；对与上述第 1 种 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末稀土含量不同的第 2 种 R-Fe-B 系稀土磁

铁用合金粉末进行准备的工序；将上述第1种和第2种合金粉末进行混合形成混合粉末的工序；将上述混合粉末加工成型，制成成型体的工序；以及将上述成型体进行烧结制作永久磁铁的工序。

本发明的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末是利用上述记载的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末的制造方法制作的，其平均粒径为  $2\mu\text{m}$  以上、 $10\mu\text{m}$  以下，并且  $1.0\mu\text{m}$  以下的微粉的数量被调整在粉末全体粒子数量的 10% 以下。

在优选实施方案中，本发明的磁铁粉末是将原料合金熔融液以  $10^2\text{°C/秒}$  以上、 $10^4\text{°C/秒}$  以下的冷却速度冷却后，对所得合金进行粉碎得到的磁铁粉末。

根据本发明的 R-Fe-B 系稀土磁铁，其特征在于它是用上述 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末制作而成。

本发明人发现，当 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末中存在的粒径  $1\mu\text{m}$  以下的富 R 超细粉超过规定比率时，对这种粉末的成型体进行烧结而制作的永外磁铁会出现磁特性劣化现象，于是想到了本发明。

在本发明中，对稀土磁铁用原料合金进行粗粉碎（第1粉碎工序）后，在进行原料合金细粉碎裂（第2粉碎工序）时，至少除去一部分富 R 的超细粉（粒径  $1\mu\text{m}$  以下的微粉），由此将富 R 的超细粉的数量调节到占粉末全体比率的 10% 以下。富 R 的超细粉中所含的稀土元素 R 的浓度的质量比在 38% 以上，这个比率高于粉末全体所含的稀土元素 R 的平均浓度。因此，若将这种超细粉即便除去一部分，也能降低粉末全体所含的稀土元素 R 的浓度。稀土元素 R 是担负硬磁性主相的  $\text{R}_2\text{T}_{14}\text{B}$  型结晶相中不可缺少的物质，所以认为稀土元素 R 的浓度降低并不可取，但是被除去的超细粉中所含的稀土元素 R，在和氧的结合中被消耗掉，所以对于  $\text{R}_2\text{T}_{14}\text{B}$  型结晶相的生成不会产生很大的影响。因此，通过去除富 R 的超细粉，其结果能够降低粉末中的氧含量，却增加了烧结磁铁中  $\text{R}_2\text{T}_{14}\text{B}$  型结晶相的含量，从而改进了磁铁的磁特性。

根据本发明人的实验，如上所述，在粉碎急冷合金(例如带材铸造合金)时,容易生成富 R 的超细粉,并且在利用氢粉碎法进行粗粉碎时,也容易生成富 R 的超细粉。因此,以下以利用氢粉碎法对急冷合金进行粗粉碎后再进行细粉碎的工序为例，对本发明的实施方案进行说明。另

外,在利用惰性气体的高速气流,用喷射式研磨粉碎装置对合金进行细粉碎时,在喷射式研磨粉碎装置的后段上连接气流(离心力)分级机,可以有效地将被气流输送来的微粉碎粉中去除富 R 超细粉(粒径  $1\mu\text{m}$  以下)。因此,在以下的实施方案中,以实例对使用喷射式研磨粉碎装置进行细粉碎的工序进行说明。

## 附图说明

图 1 是表示本发明的粗粉碎工序中进行氢粉碎处理的温度曲线的示例图。

图 2 是表示适用于本发明的细粉碎工序的喷射式研磨粉碎装置的结构断面图。

图 3 是本发明的稀土磁铁用合金粉末的粒度分布曲线图。

符号说明：10-喷射式研磨粉碎装置；12-原料装入机；14-粉碎机；16-旋风式分级机；18-回收罐；20-原料罐；22-电机；24-供给机（螺旋供给器）；26-粉碎机本体；28-喷嘴口；30-原料装入管；32-阀门；32a-上阀门；32b-下阀门；34-软管；36-分级转子；38-电机；40-连接管；42-脚座；44-基台；46-重量检测器；48-控制部；64-分级机本体；66-排气管；68-导入口；70-软管。

## 具体实施方式

以下一边参照附图,一边说明本发明的实施方案。

(原料合金)

首先,用公知的带材铸件法准备具有规定组成的 R-Fe-B 系磁铁用合金的原料合金,并保存在规定的容器中。具体讲,首先将由 Nd: 30.8wt% (原子%)、Pr: 3.8wt%、Dy: 0.8wt%、B: 0.1wt%、Co: 0.9wt%、Al: 0.23wt%、Cu: 0.10wt%、其余为 Fe 和不可避免的杂质组成的合金,用高频溶解熔融,形成合金熔融液。将这种合金熔融液保持在  $1350^{\circ}\text{C}$ , 利用单辊法,使合金熔融液急冷,得到厚度约 0.3mm 的片状合金铸块。此时的急冷条件为,辊周速度约 1m/秒、冷却速度  $500^{\circ}\text{C}/\text{秒}$ 、过冷却  $200^{\circ}\text{C}$ 。将如此制作的急冷合金铸片在以下的氢粉碎前,粉碎成 1~10mm 大小的薄片状。利用带材铸件法制造原料合金的方法,例如,在美国专利

第 5,383,978 号说明书已有公开。

(第 1 粉碎工序)

将粗粉碎成薄片状的原料合金铸片填充到多个原料容器(不锈钢)内,搭载在机架上。随后,将搭载有原料容器的机架插入氢炉内。接着关闭氢炉盖,开始氢粉碎工序(第 1 粉碎工序)。氢粉碎处理,例如按照图 1 所示温度曲线进行。在图 1 的实例中,首先,进行 0.5 小时的抽真空过程 I,随后进行 2.5 小时的氢吸附过程 II。在氢吸附过程 II 中,将氢气供入炉内,使炉内形成氢气氛。此时的氢气压优选为 200~400kPa。

接着,在 0~3Pa 的减压下,进行 5.0 小时的脱氢过程 III 后,向炉内供入氩气,同时进行 5.0 小时的原料合金冷却过程 IV。

在冷却过程 IV 中,在炉内环境温度比较高的阶段(例如,超过 100℃时,将常温的惰性气体供入氢炉内,进行冷却。随后,在原料合金温度降低到比较低水平的阶段(例如 100℃以下时),从冷却效率的观点出发,优选向氢炉 10 内供入冷却到比常温更低温度(例如低于室温 10℃)的惰性气体。氩气的供入量以 10~100m<sup>3</sup>/min 左右为好。

原料合金的温度降低到 20~25℃左右后,优选向氢炉内送入大致为常温(比室温低,与室温之差在 5℃以下范围的温度)的惰性气体,等待原料温度达到常温水平。通过这种作业,当打开氢炉的炉盖时,可避免炉内产生结露的现象。如果因结露而导致炉内存在水分,在抽真空过程中,该水分会冻结、气化,使真空度难以上升,抽真空过程 I 需要很长的时间,所以很不理想。

从氢炉内取出氢粉碎的粗粉碎合金粉末时,最好取出操作在惰性气体气氛中进行,使粗粉碎粉不与大气接触。这样做是为了防止粗粉碎粉的氧化、发热,并提高磁铁的磁特性。接着将粗粉碎的原料合金填充在数个原料容器中,搭载在机架上。

利用氢粉碎,将稀土磁铁用原料合金粉碎成 0.1mm~数 mm 的大小,其平均粒径达到 200~1000μm。将氢粉碎后脆化的原料合金,最好利用旋转式冷却器等冷却装置,进一步细解碎,并冷却。将比较高的温度状态下的取出原料时,利用旋转式冷却器等进行冷却处理的

时间可相对延长。

### （第2粉碎工序）

接着，对第1粉碎工序中制作的粗粉碎粉，使用喷射式研磨粉碎装置进行细粉碎。在本实施方案中使用的喷射式研磨粉碎装置与适用于去除微粉的旋风式分级机连接。

以下，一边参照图2，一边对使用喷射式研磨粉碎装置进行细粉碎的工序（第2粉碎工序）进行详细说明。

图示的喷射式研磨粉碎装置10包括以下部分：在第1粉碎工序中供给粗粉碎稀土合金（被粉碎物）的原料装料机12，对从原料装料机12装入的被粉碎物进行粉碎的粉碎机14，将在粉碎机14内对被粉碎物进行粉碎得到的粉体进行分级的旋风式分级机16，以及对用旋风式分级机16分级的具有规定粒度分布的粉末进行收集的回收罐18。

原料装料机12具有，收纳被粉碎物的原料罐20，对从原料罐20供给被粉碎物的量进行控制的电机22，以及与电机22连接的螺旋状供给机（螺旋供料器）24。

粉碎机14，具有纵长的略呈圆筒状的粉碎机本体26，在粉碎机本体26的下部设有多个喷嘴口28，用于设置高速喷出惰性气体（例如氮气）的喷嘴。在粉碎机本体26的侧部连接有原料装料管30，用于将被粉碎物装入粉碎机本体26内。

在原料装料管30内，设有阀门32，用于将供给的被粉碎物一旦关闭，由此保持粉碎机14内部的压力。阀门32具有一对上阀门32a和下阀门32b。供给机24和原料装料管30，通过软管34连接。

粉碎机14，具有设在粉碎机本体26内部上方的分级转子36，设置在粉碎机本体26外部上方的电机38，以及设置在粉碎机本体26上方的连管40。电机38驱动分级转子36，连接管40将经分级转子36分级的粉体排出到粉碎机14的外部。

粉碎机14具有构成支撑部分的多个脚座42。在粉碎机14的外周附近设有基台44，粉碎机14通过脚座42载置在基台44上。在本实施方案中，粉碎机14的脚座42和基台44之间设有荷重计等重量检测器46。根据该重量检测器46的输出，控制部48对电机22的转数进行控制，由此可以控制被粉碎物的装入量。

旋风式分级机 16 具有分级机本体 64，在分级机本体 64 的内部，从上方插有排气管 66。在分级机本体 64 的侧部设有导入口 68，用于导入经分级转子 36 分级的粉体，导入口 68 通过软管 70 与连接管 40 连接。在分级机本体 64 的下部设有取出口 72，该取出口 72 连接有回收希望得到的细粉碎粉末的回收罐 18。

软管 34 和 70，是由树脂或橡胶等制成软管，或者用高刚性材料形成蛇管状或线圈状的、具有柔软性的软管。使用具有这种柔软性的软管 34 和 70，原料罐 20、供给机 24、分级机本体 64 以及回收罐 18 的重量变化将不会传递到粉碎机 14 的脚座 42 上。因此，通过设在脚座 42 上的重量检测器 46 对重量进行检测，就能准确地检测出滞留在粉碎机 14 内的被粉碎物的重量及其变化量，也能准确地控制供入粉碎机 14 内被粉碎物的量。

以下对利用上述喷射式研磨粉碎装置 10 进行粉碎的方法进行说明。

首先，将被粉碎物装入原料罐 20 内。由供给机 24 将原料罐 20 内的被粉碎物供入粉碎机 14 内。这时，可通过控制电机 22 的转数，调节被粉碎物的供给量。由供给机 24 供给的被粉碎物一旦被阀门 32 阻止。这时，上阀门 32a、下阀门 32b 交替进行开关动作。即，上阀门 32a 打开时，下阀门 32b 关闭，上阀门 32a 关闭时，下阀门 32b 打开。这样通过上阀门 32a 和下阀门 32b 的交替开闭，使粉碎机 14 内的压力不会漏到原料装入机 12 一侧。其结果，当上阀门 32a 打开时，被粉碎物供入到上阀门 32a 和下阀门 32b 之间。接着，下阀门 32b 打开时，被粉碎物进入原料装入管 30 内，然后进入到粉碎机 14 内。阀门 32 由与控制电路 48 不同的其它顺序电路（未图示）高速驱动，将被粉碎物连续不断地供入粉碎机 14 内。

进入粉碎机 14 内的被粉碎物，被从喷嘴口 28 高速喷射的惰性气体在粉碎机 14 内向上扬起，在装置内随着高速成气流进行旋转。于是，被粉碎物由于彼此间相互冲撞而被细粉碎。

这样被细粉碎的粉末粒子，乘着上升气流而进入分级转子 36 内，由分级转子 36 进行分级，粗粉体再次被粉碎。而被粉碎到规定粒径的粉体经连接管 40、软管 70，从导入口 68 进入旋风式分级机 16 的分级

机本体 64 内。在分级机本体 64 内，规定粒径以上的相对较大的粉末粒子堆积在设置于下部的回收罐 18 内，超细粉随着惰性气流从排气管 66 排出到外部。在本实施方案中，通过排气管 66 排除超细粉，由此将超细粉（粒径  $1.0\mu\text{m}$  以下）的数量的比率调整到占回收罐 18 收集粉末的 10% 以下。这样，当除掉富 R 的超细粉后，烧结磁铁中的稀土元素 R 与氧结合而消耗掉的量也将减少，从而可提高磁铁的磁特性。

在如上述的本实施方案中，作为与喷射式研磨粉碎装置（粉碎机 14）后段连接的分级机，使用带有吹起（blow-up）装置的旋风式分级机 16。使用这样的旋风式分级机 16，会使规定粒径以下超细粉不被回收罐 18 捕集而反转上升，从排气管 66 排出到装置外。

从排气管 66 排出到装置外的细粉的粒径，可通过例如，工业调查会的（粉体技术手册）第 92 页～第 96 页中所记载的那样，适当地确定旋风分离器各部分参数，并调整惰性气流的压力而进行控制。

图 3 是表示经上述第 2 粉碎工序获得粉末的粒度分布的一例。根据本实施方案，可以得到平均粒径例如约  $4.0\mu\text{m}$ ，而且粒径  $1.0\mu\text{m}$  以下的超细粉的数量占粉末全体数量 10% 以下的合金粉末。并且，用于制造烧结磁铁的细粉碎粉优选平均粒径范围为  $2\mu\text{m}$  以上、 $10\mu\text{m}$  以下。另外，在图 3 的例子中，由于所用原料合金（带材铸件合金）的金属组织细微，与以前的坯料合金粉末比较，可以获得非常锋锐清晰的粒度分布。在本实施方案中，通过调节粉碎条件，使粒径  $5\mu\text{m}$  以上的粉末数量占粉末全体数量的 13% 以下。通过降低粒径  $5\mu\text{m}$  以上的大粉末粒子的数量，能够提高最终得到得到烧结磁铁的磁特性。并且，本说明书中的“粒径”定义为用 Fisher Sub-Siever Sizer(F.S.S.S)法所测定的尺寸。

为了尽可能抑制粉碎工序中的氧化，在进行细粉碎时所用高速气体（惰性气体）中的氧含量，优选控制在 0.02～5 体积%的低程度。控制高速气流气体中氧浓度的细粉碎方法，在特公平 6-6728 号公报中有记载。惰性气体中的氧含量更好是控制在 0.05～3 体积%的范围内。

如上所述，通过对细粉碎时的气氛中所含氧浓度进行控制，最好将细粉碎后的合金粉末中氧含量（重量）调整到 6,000ppm 以下。其原因是，当稀土合金粉末中的氧含量超过 6,000ppm 而变得太多时，烧结

磁铁中非磁性氧化物所占的比率就会增加，将导致最终得到的烧结磁铁的磁特性恶化。在本实施方案中，通过在细粉碎粉的表面覆盖氧化层，使得在大气环境中的挤压成型成为可能。

另外，在本实施方案中，由于适当地除去了富 R 的超细粉，通过在细粉碎时调节惰性气氛中的氧浓度，能够将粉末中的氧浓度控制在 6,000ppm 以下。如果不除去富 R 的超细粉，当超细粉的数量比率超过全体的 10% 时，不管怎样降低惰性气氛中的氧浓度，最终获得粉末中的氧浓度也会超过 6,000ppm。

通过去除这种粒径 1 $\mu$ m 以下的富 R 超细粉，经过第 2 粉碎工序最终得到的粉末可以获得提高其流动性的效果，而且由于烧结后的结晶颗粒的大小均一，还可以获得 B-H 退磁曲线的矩形性优异，实现高矫顽磁力的效果。

在本实施方案中，虽然使用了图 2 所示结构的喷射式研磨粉碎装置 10 进行第 2 粉碎工序，但本发明并不限于此，也可以使用具有其它结构的喷射式研磨粉碎装置，或者其它类型的细粉碎装置（超微粉碎机或球磨机）。作为去除超细粉的分级机，除了旋风式分级机以外，还可使用 Fatongeren 分级机或微型分离器等离心分级机。

（添加润滑剂）

在本实施方案中，对于上述方法制作的细粉碎粉，在摇摆混合器内，添加、混合例如 0.3wt% 的润滑剂，用润滑剂覆盖合金粉末粒子的表面。作为润滑剂，优选使用以石油系溶剂稀释的脂肪酸酯。在本实施方案中，作为脂肪酸酯，使用己酸甲酯。而石油系溶剂可以使用异链烷烃。己酸甲酯和异链烷烃的重量比例如可以设定在 1:9。这种液体润滑剂覆盖在粉末粒子表面上，可发挥防粒子氧化的效果，同时可发挥提高挤压时的定向性和粉末成型性的功能（使成型体的密度均匀、无裂痕、裂纹等缺陷）。

润滑剂的种类不限于上述的润滑剂。作为脂肪酸酯，除了己酸甲酯外，例如还可使用辛酸甲酯、月桂基酸甲酯、月桂酸甲酯等。作为溶剂，可以使用以异链烷烃为代表的石油系溶剂和环烷系溶剂等。润滑剂添加的时机是任意的，例如，利用喷射式研磨粉碎装置时，在细粉碎前、细粉碎中、细粉碎后任何时刻均可以。代替液体润滑剂，或



者在使用液体润滑剂的同时，也可以使用硬脂酸锌等固体（干式）润滑剂。

通过用润滑剂覆盖细粉碎粉的表面，可抑制粉末的氧化。

（压制成型）

使用公知的压制装置，在定向磁场中将上述方法制作的磁性粉末加工成型。加工成型结束后，利用下冲头向上挤压粉末成型体，可从压制装置将其取出。

接着，将成型体搭载在如钼材料形成的烧结用搁板上，连同搁板一起搭载在烧结箱内。将搭载烧结体的烧结箱送入烧结炉内，在该炉内接受公知的烧结处理。成型体经过烧结过程后变化成烧结体。随后，根据需要，进行时效热处理、对烧结体表面的研磨加工、或保护膜堆积处理。

本实施方案中，由于减少了成型粉末中易氧化的富 R 超细粉，所以在成型之后不易发生因氧化而产生的发热、发火。通过去除富 R 超细粉，不仅提高了磁特性，而且也能提高安全性。

实施例和比较例

在本实施例中，使用与上述旋风式分级机连接的喷射式研磨粉碎装置进行细粉碎工序（第 2 粉碎工序）时，通过调节旋风式分级机内的粉碎气体压力，改变了回收粉末中所含超细粉的量。作为喷射式研磨机的粉碎气氛气体，使用了含有 1 体积%的氧和 99 体积%的氮的气体。

对于试料 1~8，对粒径 1 $\mu$ m 以下超细粉占粉末全体的比率（数量比率）、磁特性以及含氧量进行了评价。结果见表 1。

表 1

试料	细粉数量比(%)	iHc(kA/m)	Br(T)	烧结密度(g/cm <sup>3</sup> )	含氧量(ppm)
1	0.5	1,009	1.42	7.65	2,900
2	1.0	1,003	1.42	7.60	3,050
3	3.0	1,003	1.41	7.65	3,200
4	5.0	995	1.40	7.60	3,500
5	7.0	987	1.38	7.52	4,000
6	10.0	963	1.36	7.45	5,300
7	13.0	812	1.32	7.30	7,400
8	15.0	692	1.29	7.00	8,500

其中，试料 1~6 为本发明的实施例，试料 7~8 为比较例。各试料的制作条如下所述。

首先，用在上述实施方案说明的方法制作的粉末进行压制成型，制作成尺寸为 15mm×20 mm×10 mm 的成型体。压制压力为 98Mpa。压制时，向成型体厚度 15 mm 的方向施加定向磁场 (1.0MA/m)。压制后，在氩气气氛中烧结成型体。烧结温度为 1,100℃，烧结时间为 2 小时。时效处理后，测定烧结密度、烧结磁铁的矫顽磁力 iHc 以及剩余磁通密度 Br。此外，表 1 中的含氧量是通过测定细粉碎后合金粉末中的含氧量而求得的。

正如从表 1 所知，随着粒径 1μm 以下超细粉的数量比率的增加，能够观察到含氧量增加、烧结密度降低的趋势。粒径 1μm 以下超细粉的数量比率超过 10.0 % 并进一步增加时，含氧量的重量比超过 6,000ppm，烧结密度低于 7.4g/cm<sup>3</sup>。这时，烧结磁铁的矫顽磁力 iHc 和剩余磁通密度 Br 也恶化。

另一方面，如将粒径 1μm 以下的超细粉的数量比率在 10.0% 以下，可以获得矫顽磁力 iHc 在 900kA/m 以上、剩余磁通密度 Br 在 1.35T 以上的优异磁特性。特别是粒径 1μm 以下的超细粉的数量比率在 5.0 % 以下时，可以实现矫顽磁力 iHc 在 990kA/m 以上、剩余磁通密度 Br 在 1.4T 以上的更优异的磁特性。进一步，粒径 1μm 以下的超细粉数量比率在 3.0% 以下时，可获得最优异的磁特性。

通过降低稀土合金粉末中富 R 超细粉的存在比率，可降低细粉碎

粉末中的含氧量，充分提高烧结体的密度，结果可大大提高磁铁特性。

由于本发明中使用的稀土合金粉末粒是强磁性体，所以通过磁力的凝集，存在形成 2 次粒子的趋势。因此，使用以前的粒度分布测定方法，有可能得不到正确的测定结果。在本实施例中，按以下的方式进行了粒度分布测定。

将粉末试料与乙醇一起装入烧杯内，进行超声波分散处理。除去烧杯中的上清液后，将粉式试料在乳钵内与粘合剂进行混练，制作成糊状试料。接着，将糊状试料涂布在无伤痕和污染的光滑玻璃片上，制成厚度均匀的混练膜的试料单元。随后，在混练膜中粉末粒子进行凝集之前，快速地将试料单元放入粒度分布测定装置中。所用的粒度分布测定装置，是利用激光光源发射出的激光束照射试料单元，以高速进行扫描。检测透过试料单元的激光束强度变化，根据这种强度变化测定试料单元内分散粒子的粒度分布。这种粒度分布测定，例如可使用 GALAI 公司制的粒度分布测定装置（品号 GALAI CIS-1）进行。这种粒度分布测定装置，是利用高速扫描激光束受到粒子遮挡时透光量会减少的原理，根据激光束通过粒子时所需时间，直接求出粒径。

以上使用带材铸件法制作的急冷合金，对本申请的发明进行了说明，但本发明的适用范围不限于此。使用坯料法制作的合金时也会形成富 R 的超细粉，也能得到本发明的效果。

在上述说明中，使用具有 1 种组成的原料合金，对这种原料合金实施了第 1 和第 2 粉碎工序，但本发明不限于此。作为粉碎对象，也可使用制造方法不同或稀土含量不同的多种稀土磁铁用原料合金。即，本发明也适用于将组成不同的 2 种稀土磁铁用原料合金粉末进行混合、成型、烧结的（2 合金法）。利用 2 合金法时，具体讲是，也可以对稀土含量不同的 2 种稀土磁铁用原料合金，分别进行第 1 粉碎工序后，将这样获得的粗粉碎粉进行混合，对混合粉末进行第 2 粉碎工序。或者，对稀土含量不同的多种稀土磁铁用原料合金，分别进行第 1 和第 2 粉碎工序，得到最后的细粉碎粉后，再将这些细粉碎粉混合使用。进而，也可以对 2 种合金的一种，使用本发明的方法，对另一种，使用以前方法，将获得的 2 种细粉碎粉混合使用。

另外，在粉碎工序中，粉末的组成会发生微妙变化。为此，在通过适当配合组成不同的多种粉末，将混凝土合粉末的组成高精度地调整到目标值时，最好是在粉碎工序全部结束后，测定粉末的组成，根据该测定值确定配合比率。这时，例如，在对粉末添加润滑剂的工序中，可进行多种粉末的配合。

根据本发明的 R-Fe-B 系稀土磁铁用合金粉末，由于降低了粒径  $1\mu\text{m}$  以下的富氧化反应性粉末成分的存在比率，所以能充分防止因稀土元素 R 氧化所致磁特性的恶化，由此可大大改进高性能稀土磁铁的特性，同时也能提高磁铁制造工序中的安全性。

本发明，在使用易生成富 R 超细粉的急冷合金（例如，带材铸件合金）时以及采用氢粉碎工序时，可起到特别显著的效果。

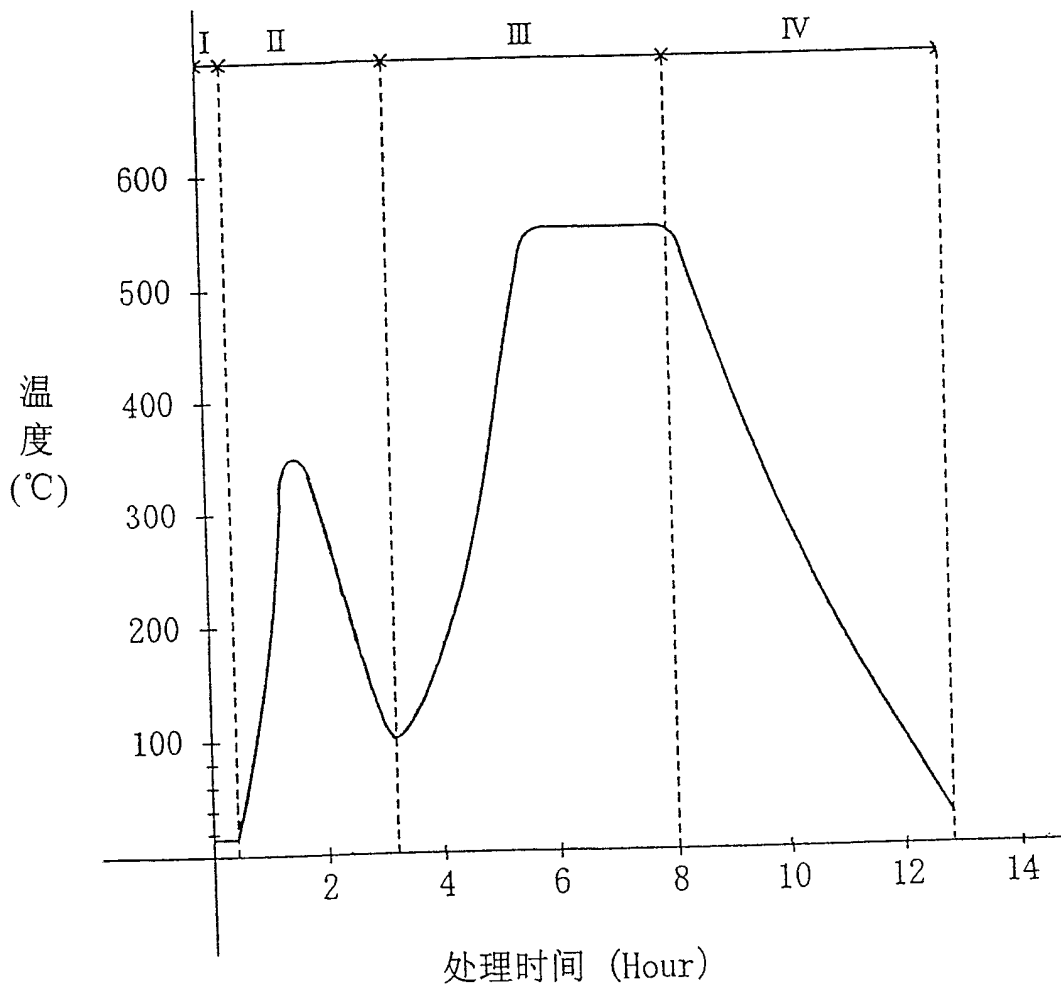


图 1

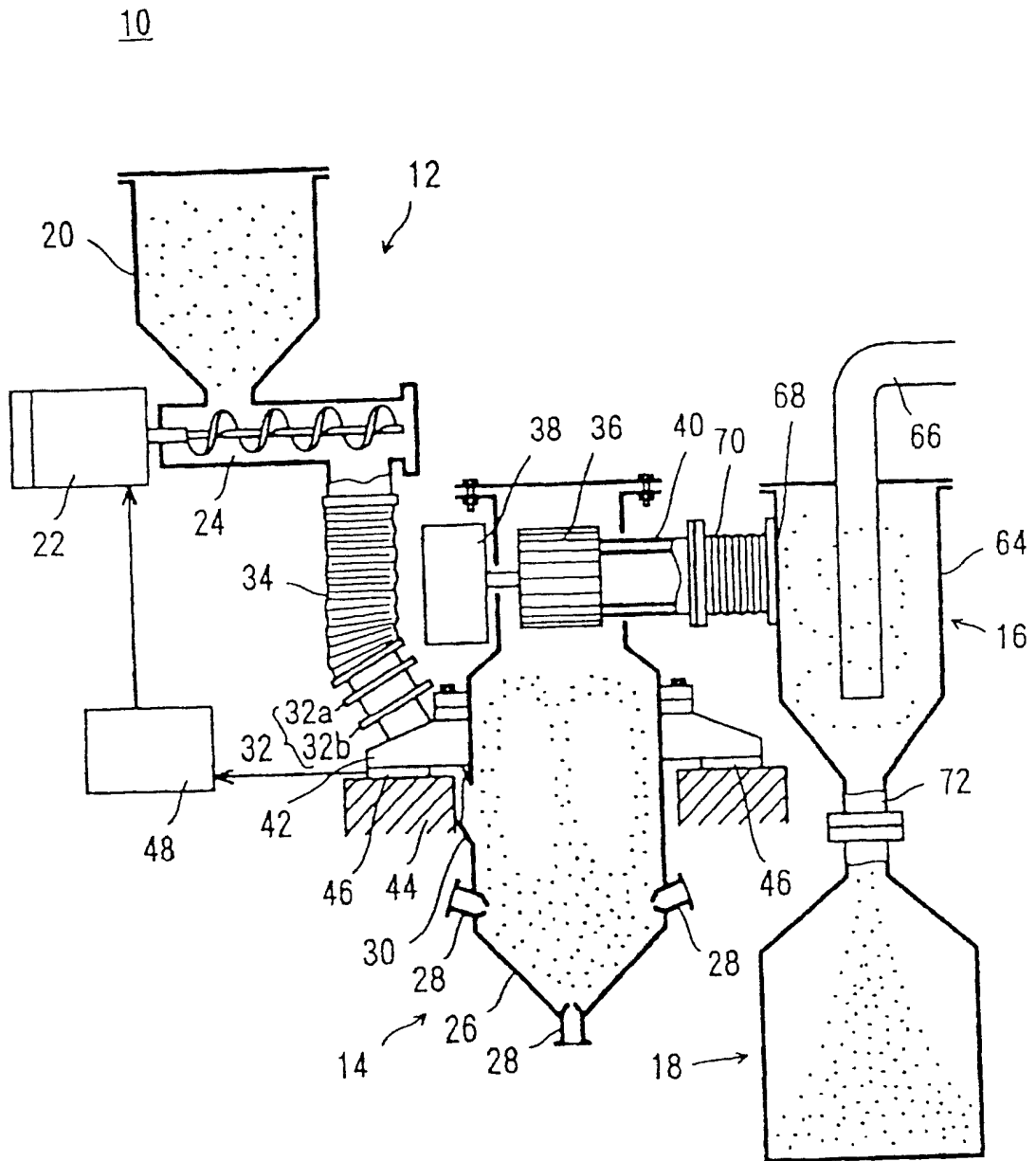


图 2

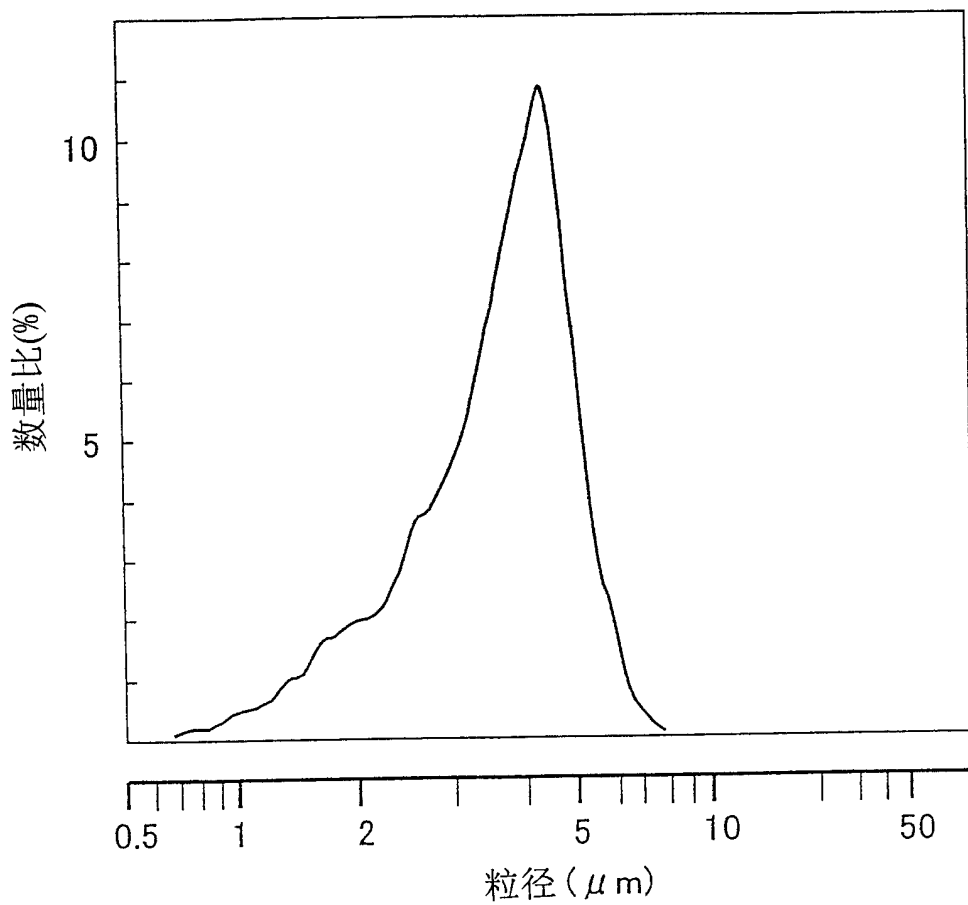


图 3