

[文章编号] 1004-0609(2002)S1-0064-03

回火处理对烧结钕铁硼永磁材料组织和磁性能的影响^①

谭春林^{1, 2}, 白书欣², 张虹², 高艳丽², 张家春², 蔡珣¹

(1. 上海交通大学材料科学与工程学院, 上海 200030; 2. 国防科技大学航天与材料工程学院, 长沙 410073)

[摘 要] 探讨了回火处理对烧结 Nd-Fe-B 系合金显微组织和磁性能的影响。研究表明: 回火处理后, 磁体的显微组织得到明显的改善, 主相体积分数增加, 晶界变得清晰, 晶粒尺寸趋向均匀; 颗粒状富 Nd 相减少, 富 Nd 相沿晶界均匀分布, 成分趋于共晶富 Nd 相的成分; 磁体的剩磁、矫顽力和最大磁能积都得到提高, 最大磁能积普遍提高 20~30 kJ/m³。

[关键词] 回火; 显微组织; 富 Nd 相; Nd-Fe-B

[中图分类号] TM 271

[文献标识码] A

烧结钕铁硼永磁体自 1983 年推出以来^[1], 就以其优异的磁性能得到了广大材料工作者及生产厂家的重视。众所周知, 表征烧结 Nd-Fe-B 合金磁性能的参数, 如剩磁 B_r , 矫顽力 H_c 和最大磁能积 $(BH)_{\max}$ 等对磁体组织非常敏感^[2], 同一成分的烧结钕铁硼合金, 因其显微组织的差异, 可导致磁性能相差几倍, 甚至几十倍^[3], 因此控制烧结 NdFeB 合金的制备工艺以获得理想的显微组织就显得十分重要^[4~7]。调整烧结钕铁硼合金显微组织的重要工艺之一就是进行烧结后回火处理^[8, 9]。本文中作者就钕铁硼磁体烧结后二级回火处理对其磁性能的影响进行探讨。

1 实验

合金成分为 Nd_{33.5}Dy_{1.7}Fe_{66.35}Al_{0.3}Cu_{0.05}B_{1.1}, 采用真空感应熔炼, 水冷铜模浇注。铸锭采用氢破碎(Hydrogen Decrepitation, 即 HD)粗碎, 然后用搅拌球磨在汽油保护下细磨, 将磁粉磨至 2~5 μm。在取向场为 1300 kA/m 的磁场中垂直取向压制, 压坯在 1040~1080 °C 真空烧结 60~80 min, 然后空冷。采用二级回火工艺, 一级回火的温度为 900 °C, 保温 2 h; 回火以后自然冷却到 600 °C, 保温 1 h, 然后再自然冷却到室温。烧结样品和回火样品的磁性能采用 CL6-1 直流磁特性测量仪测量, 用扫描电子显微镜 KYKY-2800 观察显微组织, 并结合电子能谱对合金成分进行分析。

2 结果与讨论

2.1 回火前后烧结磁体磁性能的变化

回火处理前后磁体磁性能的变化如表 1 所示。Nd-Fe-B 永磁合金烧结并快冷后(烧结态)磁性能较低, 回火处理则可提高它的磁性能, 尤其是矫顽力。从表 1 中可以看出磁体的性能得到了不同程度的改善, 矫顽力和剩磁都有提高, 最大磁能积 $(BH)_{\max}$ 提高 20~30 kJ/m³。并且, 在较高温度下烧结的磁体各项性能提高的幅度相对较大。

2.2 回火前后磁体显微组织的变化

回火后磁体磁性能的提高与回火前后组织变化密切相关。图 1 为不同状态磁体的扫描电镜(SEM)背散射照片。由图中可以看出: 回火前后主相晶粒内部没有发生明显的变化, 变化的只是晶界。回火前, 磁体中晶界不明显; 回火以后, 晶界清晰可见。图 1(a)中许多凸起的亮点为颗粒状富 Nd 相, 经微区能谱分析得知它的主要成分为 Nd 和 Fe, 并且 Fe 在其中的分布很不均匀, 有的凸起亮点中 Fe 的质量分数高达 20% 左右, 有的却很低, 约为 8%。回火以后, 这种富 Nd 相亮点数量明显减少, 分布于晶界上或晶界交隅处的薄层状富 Nd 相增多, 其中 Fe 的含量也变得十分均匀, 都在 6% 左右, 接近三元共晶体富 Nd 相中 Fe 的质量分数(6.4%)^[10]。对磁体的显微组织进行图像分析, 发现回火后 Nd₂Fe₁₄B 主相的面积分数增加了 9%, 这表明: 颗粒

① [基金项目] 湖南省自然科学基金资助项目(00JJY2042)

[收稿日期] 2001-09-06; [修订日期] 2001-11-11

[作者简介] 谭春林(1974-), 男, 博士研究生。

表 1 回火前后磁体磁性能的比较

Sintering process		Properties (after sintered)			Properties (after tempered)		
Temperature/℃	Time/min	$(BH)_{\max}/(\text{kJ}\cdot\text{m}^{-3})$	B_r/T	$H_c/(\text{kA}\cdot\text{m}^{-1})$	$(BH)_{\max}/(\text{kJ}\cdot\text{m}^{-3})$	B_r/T	$H_c/(\text{kA}\cdot\text{m}^{-1})$
1 040	60	252. 81	1. 16	875. 6	274. 14	1. 23	907. 44
1 070	80	219. 6	1. 07	819. 6	245. 9	1. 15	851. 5

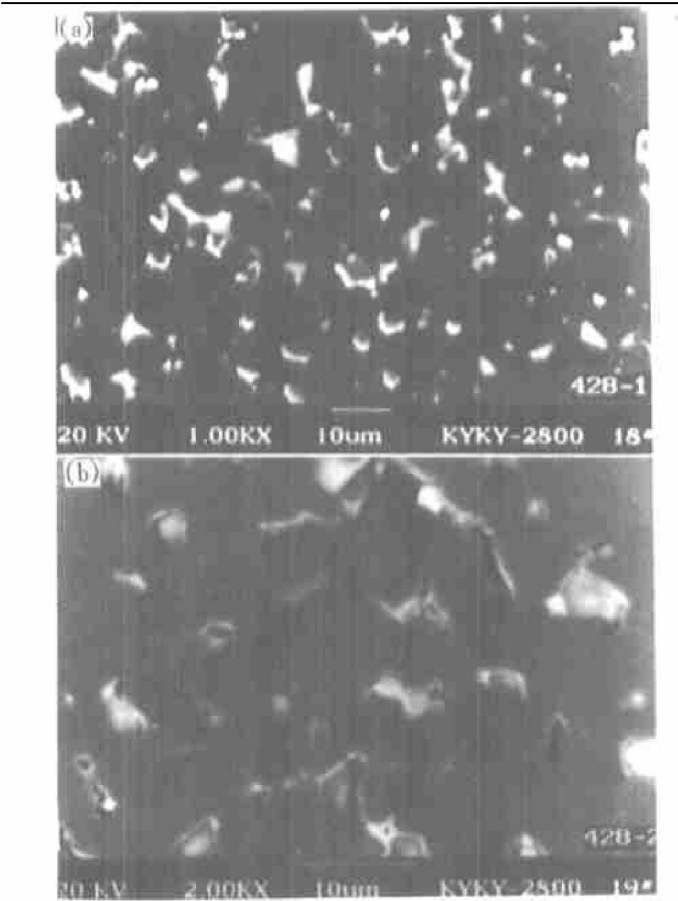


图 1 回火前后烧结 NdFeB 的 SEM 显微组织比较

Fig. 1 Comparison of SEM microstructure of sintered NdFeB before/ after tempering
(a) —Before tempering; (b) —After tempering
(sintered at 1 040 ℃ for 1 h)

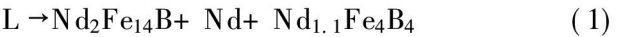
状富 Nd 相在回火后析出部分 Nd₂Fe₁₄B 主相, 使富 Nd 相中的 Fe 含量降低, 接近共晶成分的富 Nd 相沿主相晶界呈薄层状分布, 使晶界变得更加清晰, 而颗粒状富 Nd 相数量减少(如图 1(b) 所示)。

2.3 显微组织与磁性能的关系

磁体在烧结过程中, 晶界处的富 Nd 相以及少量的主相熔化为液相, 富 Nd 液相中溶有大量的 Fe。由于烧结后的冷却过程中冷却速度比较快, 共晶反应被抑制, 主相无法完全析出, 因此富 Nd 相中 Fe 含量较高; 而且, 由于冷却速度快, 富 Nd 相分布不均, 产生大量颗粒团聚。主相数量的减少及

富 Nd 相不能完全沿主相晶界析出导致的磁去耦作用降低, 使得烧结态磁体磁性能不佳。

回火可以有效改善磁体中富 Nd 相的成分、形貌和分布, 使富 Nd 相均匀地沿主相晶界分布, 从而得到磁性能更好的磁体。当 Nd-Fe-B 系合金在比较高的温度下回火, 即 900 ℃回火时, 在晶界交隅处的富 Nd 相变成液相, 主相晶粒边缘也有部分溶于富 Nd 液相, 然后在较低的二级回火温度(600 ℃)回火时, 发生共晶反应:



式中 L 为高 Fe 含量的富 Nd 液相。经共晶反应, 析出 Nd₂Fe₁₄B 主相, Nd 为共晶富 Nd 相, 其中的 Fe 含量为 6%。主相的析出增加了主相体积百分比, 使磁体的剩磁进一步提高。Oliver 等^[11]认为烧结后快冷使磁体中出现 Nd₂Fe₁₇相, 因为该相为软磁相, 它的存在对磁体的磁性能将产生不利的影响, 600 ℃回火使磁体中 Nd₂Fe₁₇相大大减少甚至消失, 磁体获得更高的矫顽力和磁能积。也有人认为^[12], 回火使得原来存在于富 Nd 相中的 Fe 原子向 Nd₂Fe₁₄B 主相扩散, Nd₂Fe₁₄B 晶粒外延层的 Nd 向富 Nd 相扩散, 结果是 Nd₂Fe₁₄B 主相晶粒外延层的成分和结构与 Nd₂Fe₁₄B 相的成分和结构趋向一致, 界面变得更加平直和光滑, 使之具有 Nd₂Fe₁₄B 相的各向异性与形核场, 散磁场也降低。所以, 回火过程是 Nd₂Fe₁₄B 晶粒外延层的磁硬化过程, 从而导致矫顽力提高。

从图 1 中可以看出: 回火以后富 Nd 相的析出方式产生了变化。回火前, 富 Nd 相有严重的团聚现象, 回火以后富 Nd 相在主相的晶界周围弥散分布, 析出薄层状的晶界相, 减少了其在晶界上及晶界交隅处的团聚现象, 可以更好地隔离 Nd₂Fe₁₄B 主相晶粒, 去除晶粒之间的磁交换耦合作用, 有利于矫顽力的提高。另外, 回火处理使主相晶界平直、规整, 从而使反磁化畴难以形核^[8]。

3 结语

综上所述, 对烧结后快冷的 NdFeB 系磁体进

行回火处理,可以改善烧结磁体的显微组织,提高磁体的磁性能。这是因为:1)回火可以增加磁体中主相的体积分数;2)回火可以改善富Nd相的成分和分布,使其接近共晶富Nd相的成分,同时减少颗粒状富Nd相,增加沿晶界分布薄层状富钕相的数量。

[REFERENCES]

- [1] Sagawa M, Fujimura S, Togawa N, et al. New material for magnets on a base of Nd and Fe [J]. J Appl Phys, 1984, 55(6): 2083– 2087.
- [2] YANG Sen, SONG Xiao-ping, WANG Xiao-hui, et al. Effect of Al and Al/Mo addition on microstructure and magnetic properties of sintered Nd₂₂Fe₇₁B₇ magnets [J]. Trans Nonferrous Met Soc China, 2000, 10(5): 606– 609.
- [3] 周寿增,董清飞. 超强永磁体 [M]. 北京:冶金工业出版社, 1999. 202.
ZHOU Shou-zeng, DONG Qing-fei. Ultrastrength Permanent Magnet [M]. Beijing: Metallurgical Industry Press, 1999. 202.
- [4] Scott D W, Ma B M, Liang Y L, et al. The effects of average grain size on the magnetic properties and corrosion resistance of NdFeB sintered magnets [J]. J Appl Phys, 1996, 79(8): 5501– 5503.
- [5] Gutfleisch O. Controlling the properties of high energy density permanent magnetic materials by different processing routes [J]. J Phys D: Appl Phys, 2000, 33: R157– R172.
- [6] TANG Wei-zong, ZHOU Shou-zeng, WANG Run. An investigation of the Nd-rich phase in the Nd-Fe-B system [J]. J Appl Phys, 1988, 64(10): 5516– 5518.
- [7] Ramesh R, Chen J K, Thomas G. On the grain boundary phase in iron rare-earth boron magnets [J]. J Appl Phys, 1987, 61(8): 2993– 2998.
- [8] 赵国仙,宋晓平,阎阿儒,等. 时效对NdFeB烧结磁体的矫顽力和显微组织的影响 [J]. 稀土, 1997, 18(6): 30– 33.
ZHAO Guo-xian, SONG Xiao-ping, YAN A-ru, et al. Effects of annealing or coercivity and microstructure of NdFeB sintered magnets [J]. Chinese Rare Earths, 1997, 18(6): 30– 33.
- [9] 赵子珍,唐茂乔,莫坪. NdFeB两段式热处理工艺的研究 [J]. 广西物理, 2000, 21(1): 15– 19.
ZHAO Zi-zhen, TANG Mao-qiao, MO Ping. A study of two stages heat treatment of NdFeB [J]. Guangxi Wuli, 2000, 21(1): 15– 19.
- [10] Elmary N A, Stadelmaier H N. Particles in the intergranular microstructure of Fe-Nd-B permanent magnets [J]. Mater Letters, 1985, 3(9, 10): 405– 409.
- [11] Oliver M R, Harris I R. A study of the effects of Cu addition on the annealing behaviour and microstructures of Nd-Fe-B type sintered magnets [J]. IEEE Trans Magn, 1993, 29(6): 2758– 2760.
- [12] 周寿增,唐伟宗,王润. 烧结Nd-Fe-B永磁合金的边界显微组织与磁硬化 [J]. 金属学报, 1990, 26(4): B290.
ZOU Shou-zeng, TANG Wei-zong, WANG Run. Boundary microstructure and magnetic hardening of sintered NdFeB magnet [J]. Acta metallurgica sinica, 1990, 26(4): B290.

Effect of tempering on microstructure and magnetic properties of sintered Nd-Fe-B magnets

TAN Chun-lin^{1, 2}, BAI Shu-xin², ZHANG Hong², GAO Yan-li², ZHANG Jia-chun², CAI Xun¹

(1. School of Materials Science and Engineering, Shanghai Jiaotong University, Shanghai 200030, China;

2. School of Spaceflight and Materials, National University of Defense and Technology, Changsha 410073, China)

[Abstract] The effect of tempering process on the microstructure and magnetic properties of sintered Nd-Fe-B magnets were studied. It is showed that, after tempering, the microstructure of magnets is improved. An increase in the volume fraction of matrix phase was observed. The grain boundary gets clearer and the grain size becomes more consistent. The content of gathered clot of Nd-rich phase reduces, whose composition changes to eutectic one. Magnetic properties are improved, and the value of $(BH)_{\max}$ is enhanced by 20~ 30 kJ/m³.

[Key words] tempering; microstructure; Nd-rich phase; Nd-Fe-B

(编辑 杨兵)