

[文章编号] 1004-0609(2001)02-0244-04

烧结 NdFeB 磁体热压变形后富 Nd 相的显微组织^①

杨 森, 宋晓平, 王献辉, 孙占波
(西安交通大学 材料科学与工程学院, 西安 710049)

[摘 要] 采用热压变形法对 NdFeB 磁体晶间富 Nd 相的显微组织进行了研究。实验结果表明, NdFeB 磁体经真空热压变形后, 富 Nd 相不再平均地分布在磁体晶间, 而是聚集成团块状或从磁体边缘渗出。显微组织分析表明, 富 Nd 相主要是由 α -Nd 和 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ 两相组成, 与 Nd-Fe 合金的共晶组织成分接近。对于晶间添加 Al 元素的磁体, Al 溶入晶间形成 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{15}\text{Al}_2$ 相弥散地分布在晶界上, 这有益于磁体矫顽力的提高; 对于晶间添加 Cu 元素的磁体, 晶间没有发现有新相产生。

[关键词] NdFeB 磁体; 富 Nd 相; 晶间合金化; 磁性能

[中图分类号] TM 273

[文献标识码] A

烧结 NdFeB 三元磁体主要由主相 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 和晶间富 Nd 相及少量富 B 相组成^[1]。富 Nd 相是烧结时最后凝固的相, 且随热处理温度和冷却条件的改变可过饱和固溶不同量的铁、硼和其它合金元素, 因此该相的成分不是一个定量, 其结构也可变, 至今已有人报道了 3 种结构的富 Nd 相^[2]。在内禀磁特性不变的前提下, 烧结 NdFeB 磁体的矫顽力主要取决于晶间富 Nd 相的显微组织^[3, 4], 因此可通过直接在磁体晶间区域添加合金元素的方法来优化富 Nd 相的显微组织, 从而提高磁体的矫顽力^[5, 6]。作者在研究中发现 NdFeB 磁体晶间富 Nd 相中还存在一个 Nd-Fe-O 平衡相^[7], 该相在室温可显著提高磁体的矫顽力, 并且这种提高作用还随温度的上升而下降。这说明 NdFeB 磁体矫顽力随温度上升而下降的特性不但与主相各向异性场的降低有关, 而且还与 Nd-Fe-O 晶间相的铁磁性质逐渐消失密切相关。因此通过改进晶间相的磁学特性可使磁体的高温矫顽力得到提高。例如 $\text{Nd}_{22}\text{Fe}_{71}\text{B}_7$ 磁体晶间添加 MgO 后, 在晶间形成新的 Nd-Fe-O-Mg 相, 室温矫顽力从 1350 kA/m 提高到 1750 kA/m, 180 °C 的矫顽力从 240 kA/m 提高到 600 kA/m, 相应的室温到 180 °C 的矫顽力温度系数从 $-0.52\%/^{\circ}\text{C}$ 降到 $-0.41\%/^{\circ}\text{C}$ ^[8]。因此, 深入研究并改进 NdFeB 磁体的晶间富 Nd 相的显微组织对提高矫顽力和热稳定性有重要意义。

在实际 NdFeB 磁体中, 富 Nd 相均匀地分布在

磁体晶间, 聚集在一起的富 Nd 相数量少, 不便于研究其显微组织, 但在高温真空中, 低熔点的富 Nd 相在磁体晶间成液态, 对磁体进行适当的热压变形, 可使大量的富 Nd 相聚集或从磁体中分离出来, 则便于研究其显微组织。本文作者采取真空热压变形的的方法, 对晶间添加 Al 和 Cu 磁体的富 Nd 相进行了显微组织分析。

1 实验

本实验采用合金成分为 $\text{Nd}_{22}\text{Fe}_{71}\text{B}_7$, 选择较高的 Nd 含量主要是为了形成较多的晶间富 Nd 相, 以便于分析。原材料为纯度高于 99% 的纯金属, 用中频真空感应炉熔炼。铸锭经机械破碎成尺寸小于 120 μm 的粗粉, 加入 2.0% Al 或 Cu 粉并均匀混合后进行球磨, 使混合粉的最终颗粒尺寸约为 3 μm , 然后将粉末在 $1.6 \text{ MA} \cdot \text{m}^{-1}$ 的外磁场中取向压制, 将压坯在 1000 °C 烧结 1 h 后, 再在 600 °C 时效 1 h 后制成磁体。在真空下于 800~1100 °C 温度范围内对烧结 NdFeB 磁体采取逐渐施压的方式进行热压变形, 压头移动速率为 10 $\mu\text{m/s}$, 达到最大压力 19.6 kN 时保压 5 min。磁体变形量采用公式 $\delta = (l_0 - l)/l_0$ 计算, 其中 l_0 和 l 分别为磁体变形前后的长度。磁体原始尺寸为底面直径 10 mm, 高 25 mm。磁体随炉冷却, 用 Neophot-21 金相显微镜和 S-2700 型扫描电镜观察显微组织, EDX 能谱仪分析成分,

① [基金项目] 国家自然科学基金资助项目(59671018)

[收稿日期] 2000-05-11; [修订日期] 2000-09-22

[作者简介] 杨 森(1974-), 男, 博士研究生。

D/max-3A 型 X 射线衍射仪分析相组成。

2 结果与讨论

图 1 所示为晶间添加 2.0% Al 或 Cu 元素的 $\text{Nd}_{22}\text{Fe}_{71}\text{B}_7$ 磁体在不同温度下热压变形后的金相显微组织, 其中磁体的变形量为 20%。对于晶间添加 Al 元素的磁体, 900 °C 热压变形后, 富 Nd 相不是平均地分布在主相周围, 而是在磁体中聚集成团块状(图 1(a)); 1000 °C 热压变形后, 富 Nd 相聚集更加集中, 与 900 °C 热压变形后相比, 团块状尺度增加(图 1(b)), 且磁体的边缘有富 Nd 相渗出。对于晶间添加 Cu 元素的磁体, 900 °C 热压变形后, 富 Nd 相开始聚集成团块状, 但聚集的程度较晶间添加 Al 元素磁体轻, 富 Nd 相块状尺度较小(图 1(c)); 1000 °C 热压变形后, 富 Nd 相已完全在磁体中聚集成团块状(图 1(d)), 且磁体的边缘也发现有少量富 Nd 相渗出。无论是晶间添加 Al 还是 Cu 元素的磁体, 丛聚在一起的富 Nd 相颜色灰黑相间, 这是由于 Nd 含量不同造成的。

SEM 和 EDX 研究表明: 磁体热压变形后, 聚

集起来的富 Nd 相以团块状存在。对于晶间添加 Al 元素的磁体, 在聚集起来的富 Nd 相中 EDX 探测到 Al 元素的存在, 而对于晶间添加 Cu 元素的磁体, EDX 在聚集起来的富 Nd 相中没有探测到 Cu 元素, 如图 2 所示。

以上显微组织分析表明, 在高温热压 NdFeB 磁体时, 富 Nd 相在外界压力作用下容易聚集成团块状, 甚至从磁体边缘渗出, 这为深入研究富 Nd 相提供了一条新的途径。对从晶间添加 Al 元素磁体边缘渗出的富 Nd 相进行了 X 射线衍射分析, 结果如图 3(a) 所示。从图中可见, αNd 和 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ 的衍射峰强度较高, 这说明富 Nd 相主要是由 αNd 和 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ 两相组成, 与 Nd-Fe 合金的共晶组织成分接近; 除此之外, 衍射图谱上还出现了 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{15}\text{Al}_2$ 相, 因此可推测在实际磁体中, Al 元素溶入晶间富 Nd 相, 经过时效处理后, 在晶界弥散析出 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{15}\text{Al}_2$ 相, 从而提高磁体的矫顽力。这与 Legras^[11] 等人的研究结果基本一致。

同样, 对晶间添加 Cu 元素磁体的富 Nd 相进行的 X 射线衍射分析表明(见图 3(b)), 富 Nd 相主要是由 αNd 和 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ 两相组成, 没有发现和 Cu

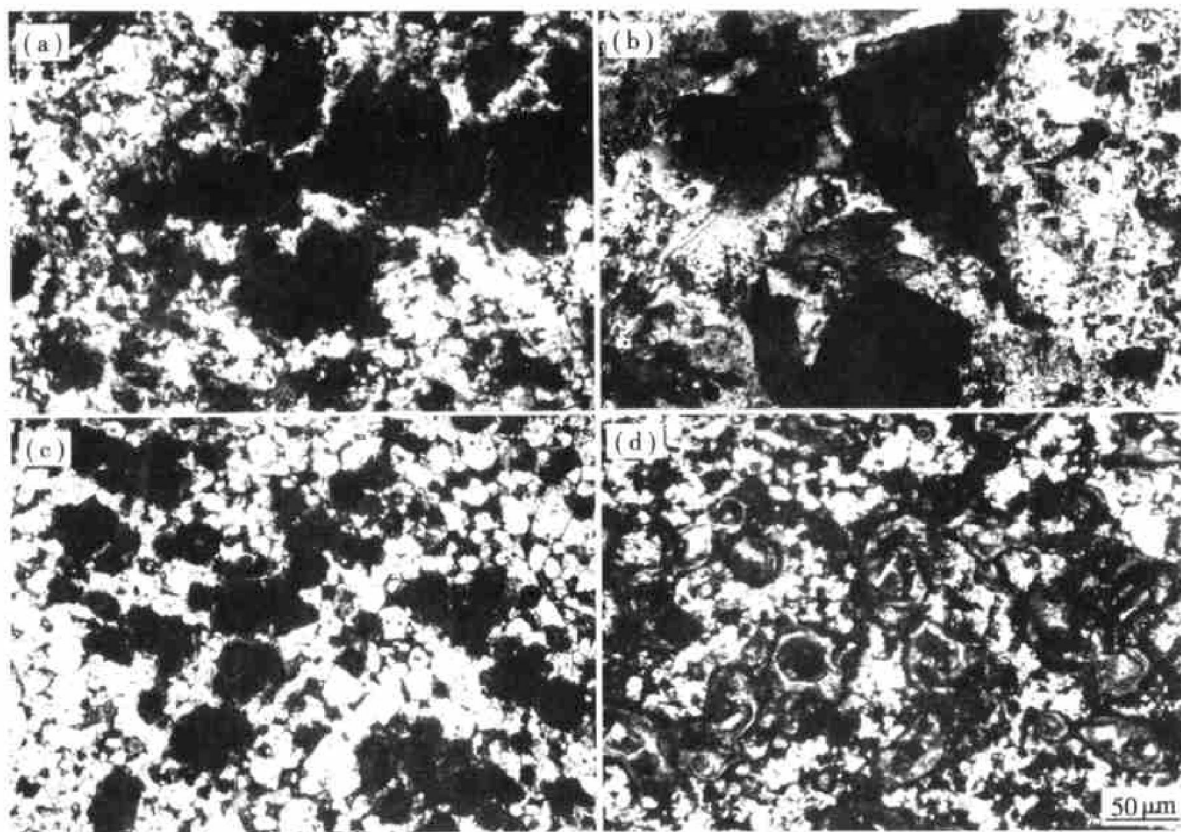


图 1 $\text{Nd}_{22}\text{Fe}_{71}\text{B}_7$ 磁体热压变形后的金相显微组织

Fig. 1 Optical micrographs for $\text{Nd}_{22}\text{Fe}_{71}\text{B}_7$ magnets after thermal extruded

(a) -2.0% Al, 900 °C; (b) -2.0% Al, 1000 °C; (c) -2.0% Cu, 900 °C; (d) -2.0% Cu, 1000 °C

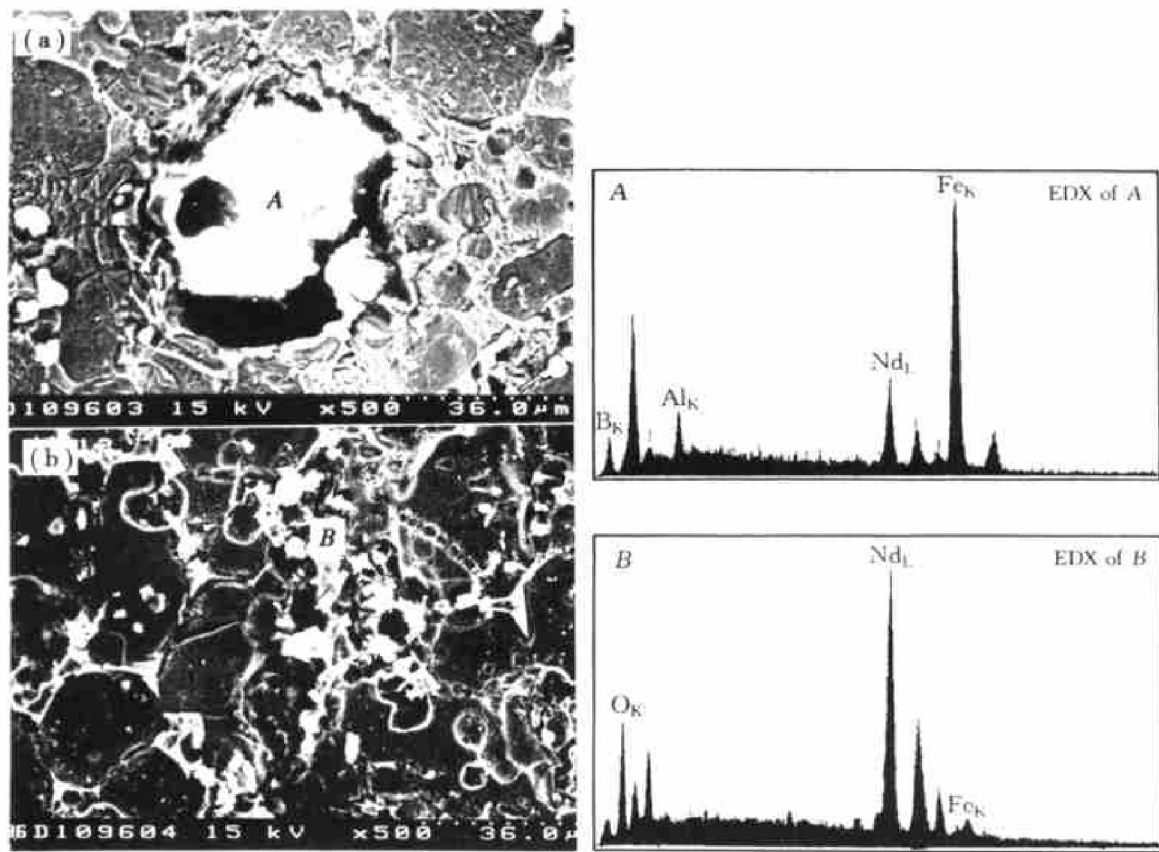


图 2 $\text{Nd}_{22}\text{Fe}_{71}\text{B}_7$ 磁体热压变形后 SEM 显微组织及 EDX 分析

Fig. 2 SEM micrographs and EDX results for $\text{Nd}_{22}\text{Fe}_{71}\text{B}_7$ magnets after thermal extruded
(a) -2.0% Al; (b) -2.0% Cu

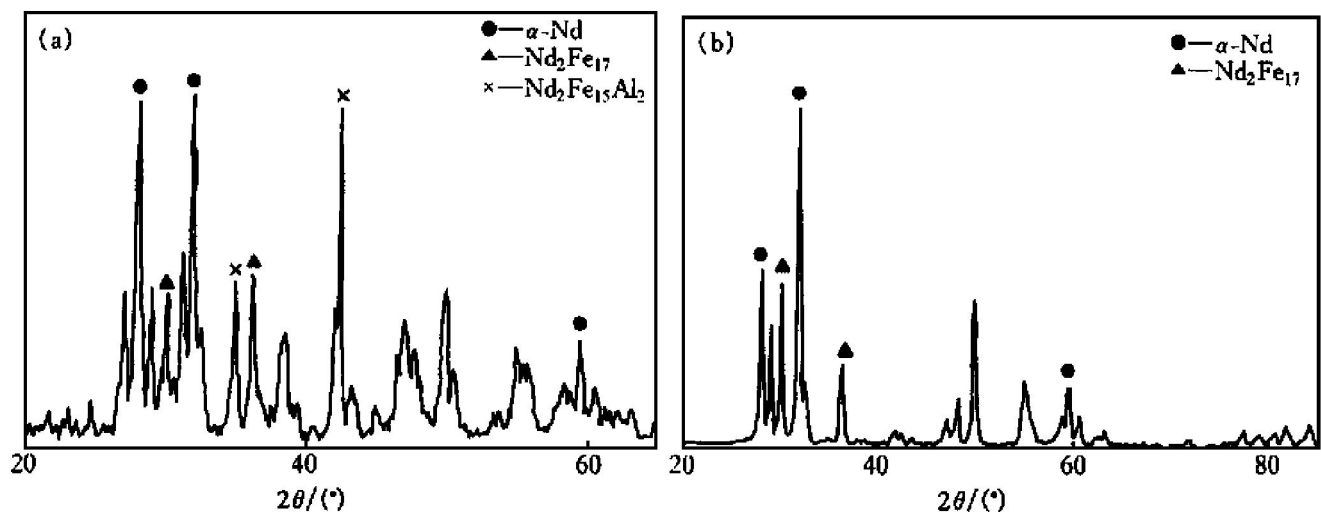


图 3 $\text{Nd}_{22}\text{Fe}_{71}\text{B}_7$ 磁体的富 Nd 相 X 射线衍射分析

Fig. 3 X-ray diffraction pattern of Nd-rich phase in $\text{Nd}_{22}\text{Fe}_{71}\text{B}_7$ magnets

元素相关的新相产生。但在相同温度热压变形后，晶间添加 Cu 元素的磁体的富 Nd 相聚集程度较晶间添加 Al 元素的磁体的要低，这说明 Al 元素进入磁体晶间后不仅改善了富 Nd 相的润湿性而且还改善了富 Nd 相的流动性，在烧结时可使富 Nd 相分布更加均匀，使反磁化畴在界面处形核困难，同时也阻碍了反磁化畴从一个晶粒传向另一个晶粒，有

利于磁体矫顽力的提高，这与 Knoch 的研究结果一致^[9, 10]。作者最近的研究证明^[12]：Cu 进入磁体后择优富集在主相晶粒表面，有降低主相晶粒表面能的作用。因此在热压变形过程中，由于富 Nd 相的流动性没有得到改善，富 Nd 相聚集的程度较晶间添加 Al 元素的磁体要低，矫顽力提高幅度不大^[12]与晶间无新相产生也有关系。

3 结语

作者仅用热压变形法对富 Nd 相的显微组织进行了尝试性的研究, 定性地说明了晶间富 Nd 相和磁体矫顽力的关系, 要从机理上完全阐明其关系, 还需对富 Nd 相的磁学性质进行测定和进一步地研究。

[REFERENCES]

- [1] Sagawa M, Fujimura S, Yamamoto H, et al. Permanent magnet materials based on the rare earth-iron-boron tetragonal compounds [J]. IEEE Trans Magn, 1984, MAG-20: 1584– 1589.
- [2] TANG Weirzhong, ZHOU Shour-zeng and WANG Run. An investigation of the Nd-rich phases in the Nd-Fe-B system [J]. J Appl Phys, 1988, 64(10): 5516– 5518.
- [3] Hirosawa S and Tsubokawa Y. The Nd-Fe-B materials for permanent magnets [J]. J Magn Magn Mater, 1990, 84: 309– 316.
- [4] ZHOU Shour-zeng(周寿增), TANG Weirzhong(唐伟中) and WANG Run(王润). 烧结 NdFeB 永磁合金的边界显微组织与磁硬化 [J]. Acta Metallurgical Sinica(金属学报), 1990, 26(4): B290– B294.
- [5] YAN Aru, SONG Xiaoping and WANG Xiaotian. Effect of minor intergranular additives on microstructure and magnetic properties of Nd-Fe-B based magnets [J]. J Magn Magn Mater, 1997, 169: 193– 198.
- [6] YAN Aru, SONG Xiaoping, SONG Mingda, et al. Magnetic properties and microstructure of sintered Nd-Fe-B-based magnets with W, Mo and Nb addition [J]. J. Alloys & Compounds, 1997, 257: 273– 277.
- [7] CHEN Zhongmin, WANG Naixin, SONG Xiaoping, et al. A Nd-Fe-O intergranular phase in Nd-Fe-B magnets and its effect on coercivity [J]. IEEE Trans Magn, 1995, 31(3): 2215– 2219.
- [8] CHEN Zhongmin, YAN Aru and WANG Xiaotian. Improvement of magnetic properties and intergranular microstructure of Nd-Fe-B magnets by intergranular addition of MgO oxide [J]. J Appl Phys, 1997, 81(8): 4456– 4458.
- [9] Knoch K G, Schneider G, Fidler J, et al. Al-doped NdFeB permanent magnets: wettability and microstructure [J]. IEEE Trans Magn, 1990, 25: 3426– 3428.
- [10] Knoch K G, Grieb B, Henig E-Th, et al. Upgraded Nd-Fe-B-AD(AD= Al, Ga) magnets: wettability and microstructure [J]. IEEE Trans Magn, 1990, 26: 1951– 1953.
- [11] Legras L, Delamare J, Lemarchand D, et al. Characterization of the Nd-Fe-Al phase in the microstructure of an aluminium and vanadium-substituted Nd-Fe-B magnet [J]. J Alloys & Compounds, 1995, 218: 17– 21.
- [12] SONG Xiaoping, YANG Sen, WANG Xianhui, et al. Effects of Ti and(or) Cu on microstructures and magnetic properties of sintered Nd-Fe-B magnets [J]. Trans Nonferrous Met Soc China, 2000, 10(4): 485– 488.

Intergranular microstructure of Nd-rich phase of sintered NdFeB magnets after thermal extruding

YANG Sen, SONG Xiaoping, WANG Xianhui, SUN Zhanbo

(School of Materials Science and Engineering, Xi'an Jiaotong University,
Xi'an 710049, P. R. China)

[Abstract] The microstructure of intergranular Nd-rich phase of sintered NdFeB magnets has been studied by means of thermal extruding. After thermal extruding Nd₂Fe₁₇B₇ magnets, Nd-rich phases are not distributed in the intergranular region on the average and a lot of Nd-rich phases aggregate or separate from the magnet. The results show that the microstructure of Nd-rich is consisted of α -Nd phase and Nd₂Fe₁₇ phase, which approaches to eutectic structure of binary Nd-Fe alloy. After adding element Al, Nd₂Fe₁₅Al₂ phases segregate near to the grain boundary of the magnetic Nd₂Fe₁₄B phase, which leads to the improvement of coercivity of magnets.

[Key words] NdFeB magnets; Nd-rich phase; magnetic properties

(编辑 何学锋)