

## 成形压力对烧结 Nd-Fe-B 磁体微观组织与磁性能的影响

张晓鹏 于旭光

(石家庄铁道大学材料学院, 石家庄 050043)

**摘要** 在干法制备烧结钕铁硼生产线上,研究了 11.54 MPa 和 9.23 MPa 两种成形压力对  $\Phi 9.5$  mm 烧结钕铁硼磁体(质量分数: 31.00Pr + Nd, 1.20B, 0.20Al, 余 Fe)微观组织与磁性能的影响。结果表明,成形压力增大可以改善晶粒分布的不均匀性,提高取向度,从而提高剩磁与磁能积;但成形压力增大易使晶粒尺寸增大,从而使矫顽力降低。

**关键词** 烧结钕铁硼 成形压力 晶粒尺寸 磁性能

### Effect of Forming Pressure on Microstructure and Magnetic Properties of Sintered Nd-Fe-B Magnet

Zhang Xiaopeng and Yu Xuguang

(Material Institute, Shijiazhuang Railway University, Shijiazhuang 050043)

**Abstract** The effect of two kinds of forming pressure- 11.54 MPa and 9.23 MPa on microstructure and magnetic properties of Nd-Fe-B magnet has been studied at production line for  $\Phi 9.5$  mm sintered Nd-Fe-B magnet (mass fraction: 31.00Pr + Nd, 1.20B, 0.20Al, remainder Fe) manufactured by dry process. Results show that with increasing forming pressure the unevenness of grain size distribution is improved and the grain orientation increases in order to increase remained magnetic induction intensity and magnetic energy product of sintered magnet; but with increasing forming pressure the grain size increases in order to decrease the intrinsic coercive force of magnet.

**Material Index** Sintered Nd-Fe-B Magnet, Forming Pressure, Grain Size, Magnetic Properties

高性能烧结钕铁硼磁体在电力、电讯、汽车、计算机、生物医学及家用电器等领域,已成为核心功能器件<sup>[1,2]</sup>。烧结钕铁硼磁体之所以具有很高的磁性能,不仅取决于材料的内禀特性,同时与材料的微观结构有着密切的联系。对此,有学者研究了加温成形、注入成形等成形方法<sup>[3-6]</sup>,通常这些方法适合于粘接磁体的生产,而粘接磁体的磁性能远低于烧结磁体。烧结钕铁硼磁体的生产,磁场压制成形是一个极其重要的环节,它直接影响产品的性能。

#### 1 实验

采用镨钕合金、硼铁、纯铁、铝锭为原料,按比例精确称量,加入真空感应熔炼炉内;炉内抽真空到  $(1 \sim 5) \times 10^{-2}$  Pa 后,通电加热炉料;当真空度下降到  $10^{-1}$  Pa 数量级时,关闭排气阀停止抽真空,向炉内通入氩气至 0.035 MPa,然后大功率通电使炉料熔清,并确保成分均匀;把成分均一的合金液浇注到水冷钢质旋转圆盘上铸成钕铁硼合金锭块(表 1)。

将钕铁硼合金锭置于氢爆装置中,通入氢气,使钕铁硼合金锭破碎至 2 mm 以下的颗粒。再以高纯氮气为介质进行气流磨,制成粒度为 4  $\mu\text{m}$  的微粉。

表 1 烧结钕铁硼磁体的化学成分 /%

Table 1 Chemical composition of sintered Nd-Fe-B magnet /%

Pr + Nd	B	Al	Fe
31.00	1.20	0.20	余

钕铁硼微粉在磁场中取向,垂直磁场方向加压成形。成形压力分别为 11.54 MPa 和 9.23 MPa。之后再经 210 MPa 的等静压,制成钕铁硼生坯,尺寸为  $\Phi 9.5$  mm  $\times$  28.5 mm。

钕铁硼生坯经 1 070  $^{\circ}\text{C}$  烧结- 920  $^{\circ}\text{C}$  一次回火- 630  $^{\circ}\text{C}$  二次回火,制成烧结钕铁硼。

烧结钕铁硼的磁性能用 NIM-15000H 大型稀土永磁无损测量系统测定;显微组织用奥林巴斯显微镜观察,同时测定样品的平均晶粒尺寸。

#### 2 结果与讨论

##### 2.1 成形压力对微观组织的影响

图 1 是成形压力为 11.54 MPa 和 9.23 MPa 的直径  $D = 9.5$  mm 烧结钕铁硼微观组织不同观察位置 ( $D/2$  试样中心、 $D/4$  试样中心与边缘的中点、 $D$

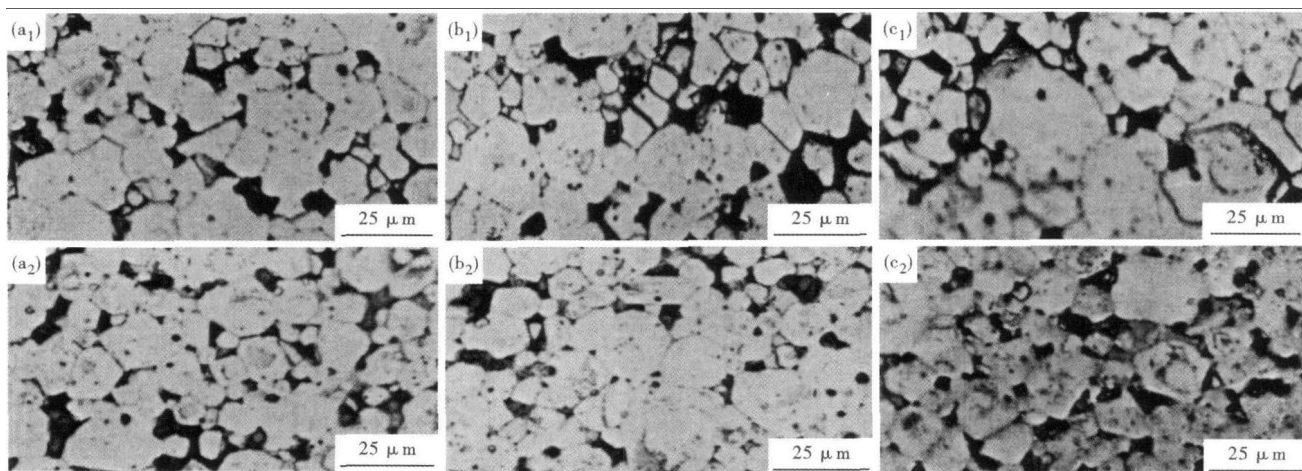


图1 成形压力对烧结钕铁硼微观组织的影响:成形压力- $(a_1, b_1, c_1)$  11.54 MPa;  $(a_2, b_2, c_2)$  9.23 MPa; 试样直径  $D=9.5$  mm- $(a_1, a_2)$   $D/2$  中心,  $(b_1, b_2)$   $D/4$ ;  $(c_1, c_2)$   $D$  边缘

Fig. 1 Effect of forming pressure on microstructure of sintered Nd-Fe-B magnet: forming pressure- $(a_1, b_1, c_1)$  11.54 MPa;  $(a_2, b_2, c_2)$  9.23 MPa; diameter of sample  $D=9.5$  mm- $(a_1, a_2)$   $D/2$ , at center;  $(b_1, b_2)$   $D/4$ , at  $1/2$  radius;  $(c_1, c_2)$   $D$ , at edge

试样边缘区域)的金相照片。可见,图1 $(a_1, b_1, c_1)$ 中晶粒形状不规则,有的地方甚至出现尖锐的突出部分;图1 $(a_2, b_2, c_2)$ 中晶粒形状就比较规则。说明,成形压力越大,晶粒形状越趋于不规则。

烧结过程主要包括颗粒溶解与重新析出、颗粒合并与长大两种机制。参照Nd-Fe-B三元系亚稳相图,可以看到,在Nd-Fe-B磁体的烧结过程中始终存在富Nd液相,并且存在的富Nd液相量与具体的烧结温度和合金成分相关,为15%~20%(体积分数)<sup>[7]</sup>。随着烧结过程的开始,细小Nd-Fe-B颗粒或粗大Nd-Fe-B颗粒的尖锐突出部分溶解于富Nd液相,然后于粗大颗粒表面析出,使细小颗粒逐渐缩小或消失,粗大颗粒进一步长大<sup>[8]</sup>,这就是颗粒溶解与重新析出机制。

在压制成形过程中,富Nd相以固态的形式进行分布,分布不均匀,在烧结时,富Nd相变成熔融的液态,在颗粒之间流动,从而分布均匀。当成形压力较大时,颗粒与颗粒之间接触较紧密,这样就会造成液态的富Nd相扩散困难,因此在颗粒长大的过程中,那些溶解于富Nd液相的细小 $Nd_2Fe_{14}B$ 颗粒或粗大 $Nd_2Fe_{14}B$ 颗粒的尖锐突出部分只能在特定的部位析出,从而造成晶粒形状不规则。

表2是晶粒平均尺寸通过在每个观察位置各选取7组长长度为250  $\mu\text{m}$ 的线段所穿过的晶粒个数,以此为依据计算所得的晶粒平均尺寸。由表2可知,成形压力为11.54 MPa的试样在任何位置的晶粒平均尺寸都大于成形压力为9.23 MPa的试样。说明成形

压力越大,平均晶粒尺寸越大。

主相晶粒的长大除了受到原始合金粉末颗粒尺寸及分布、烧结温度与时间的影响之外,还与生坯内部颗粒之间的接触状态、相接触的颗粒之间相对取向、富钕液相的量及分布密切相关<sup>[9]</sup>。而成形压力对晶粒尺寸的影响主要是通过生坯密度的作用,进而对晶粒尺寸产生影响。生坯密度的大小,一定程度上反映了生坯中粉末颗粒之间的接触状态。随着成形压力的增大,生坯密度随之提高,生坯中颗粒与颗粒之间的接触面积增大,由点接触变为面接触,那么在固相烧结时,由于接触面的增大,使物质更利于迁移<sup>[10]</sup>,从而造成晶粒的长大。

表2大小晶粒比例是通过在各个观察位置选取5组长长度为250  $\mu\text{m}$ 的线段所穿过的晶粒个数,以此为依据计算各尺寸的晶粒占总晶粒数的百分比。其中,小晶粒的尺寸小于10  $\mu\text{m}$ ;大晶粒尺寸大于15  $\mu\text{m}$ 。由表2可知,成形压力为9.23 MPa的试样各位置的大晶粒与小晶粒个数在总个数中所占的比例都要大于成形压力为11.54 MPa的试样。可以认为,成形压力为9.23 MPa的试样晶粒尺寸的不均匀性要大于成形压力为11.54 MPa的试样。

表2 成形压力对烧结钕铁硼磁体晶粒尺寸的影响

成形压力/ MPa	大晶粒比例/%			小晶粒比例/%			平均晶粒比例/%		
	$D/2$	$D/4$	$D$	$D/2$	$D/4$	$D$	$D/2$	$D/4$	$D$
11.54	10	11.5	10.5	43	53	50	14	11.5	12.5
9.23	10.5	7	15.5	60	57	50	12	11	12

在 Nd-Fe-B 磁体烧结过程中,由于富 Nd 液相量的不足,富 Nd 液相不能完全润湿 Nd-Fe-B 颗粒,因此 Nd-Fe-B 颗粒之间不可避免地产生直接接触。在烧结钕铁硼磁体的显微组织中,也观察到大量的 Nd-Fe-B 晶粒直接接触,晶粒边界并不存在。因此,在 Nd-Fe-B 磁体烧结过程中,由于大量的 Nd-Fe-B 晶粒直接接触,就会产生 Nd-Fe-B 颗粒的合并与长大,而 Nd-Fe-B 颗粒的合并与长大与生坯内部颗粒之间的接触状态有关,颗粒接触越紧密,接触面积就越大,烧结时越有利于物质的迁移,晶粒尺寸就越大,但在一定程度上也会使晶粒尺寸分布范围增宽<sup>[11]</sup>。成形压力为 9.23 MPa 的试样在生产过程中,成形压力较小,生坯的密度分布就不均匀,那么颗粒之间的接触面积差异性就大,在固相烧结时,接触面积大的颗粒能够与其他颗粒合并长大,接触面积小的颗粒则不行,从而造成晶粒尺寸不均匀。

## 2.2 成形压力对磁性能的影响

由表 3 可见,成形压力为 11.54 MPa 的试样的  $B_r$  (剩磁,单位 T- 特斯拉)与  $(BH)_{\max}$  (最大磁能积)比较高。在烧结时,晶粒尺寸越大,在烧结时富钕液相的流动与偏聚导致颗粒转动或滑移的幅度就越小,这就对生坯成形时的取向状态破坏减小,从而使烧结磁体的取向度提高。因此,晶粒尺寸越大,在液相烧结时晶粒越不容易转动,则取向度越高,由(1)式

和(2)式可知,取向度高, $B_r$  与  $(BH)_{\max}$  就越高。成形压力为 11.54 MPa 的试样成形压力大,晶粒尺寸就大,则取向度越高,从而造成  $B_r$  与  $(BH)_{\max}$  的提高。由文献[10]得到  $B_r$  和  $(BH)_{\max}$  的公式为:

$$B_r = J_s A (1 - \beta) (d/d_0) \cos \theta \quad (1)$$

$$(BH)_{\max} = 1/4 J_s^2 A^2 (1 - \beta)^2 (d/d_0)^2 \cos^2 \theta \quad (2)$$

式中: $J_s$ - 饱和磁极化强度; $A$ - 正向畴体积分数; $\beta$ - 非铁磁性的第二相的体积分数; $d$ - 实际密度; $d_0$ - 理论密度; $\theta$ - 晶粒在靠近外磁场方向的易磁化方向与外磁场的夹角。

另外,成形压力为 11.54 MPa 的试样的  $H_{cj}$  (内禀矫顽力)比较小。在烧结钕铁硼的生产过程中,对  $H_{cj}$  的影响因素很多,而成形压力对  $H_{cj}$  的影响主要是通过对晶粒尺寸与形状的影响,进而对  $H_{cj}$  产生影响。一方面,在烧结钕铁硼微观组织中,当所有晶粒被富钕相薄层包围时,每一个晶粒的反磁化过程是独立的,晶粒越小,决定矫顽力大小的形核场越大,形核场越大,矫顽力就越大;另一方面,晶粒形状不规则,存在尖锐的突出部分,这样就容易形成退磁场,它会诱发反磁化畴形成,导致矫顽力降低。

成形压力为 11.54 MPa 的试样晶粒尺寸大,形核场就越小,矫顽力就小;另外,试样成形压力大,晶粒形状就不规则,容易形成退磁场,诱发反磁化畴形成,导致矫顽力降低。

## 3 结论

成形压力越大,则①晶粒尺寸越大,从而在一定程度上提高材料的取向度,最终提高了  $B_r$  与  $(BH)_{\max}$ ;②晶粒形状越不规则,从而使  $H_{cj}$  降低;③晶粒不均匀性越小。

表 3 成形压力对烧结钕铁硼磁性能的影响

Table 3 Effect of forming pressure on magnetic properties of sintered Nd-Fe-B magnet

成形压力/ MPa	$B_r/T$	$H_{cj}/$ ( $kA \cdot m^{-1}$ )	$(BH)_{\max}/$ ( $kJ \cdot m^{-3}$ )
11.54	1.256	1 343	297.2
9.23	1.104	1 409	231.0

## 参考文献

- 1 Wang H J, Li A H, Zhu M G, et al. Sintered Nd-Fe-B Magnets with Improved Impact Stability. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 2006, 307: 268
- 2 Yue M, Zhang J X, Liu W Q, et al. Chemical Stability and Microstructure of Nd-Fe-B Magnet Prepared by Spark Plasma Sintering. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 2004, 271: 364
- 3 易鹏鹏, 林 曼, 王会杰, 等. 热压过程对热变形钕铁硼磁体磁性影响的研究. *稀有金属材料与工程*, 2009, 38(4): 576
- 4 段柏华, 曲选辉, 邹黎明, 等. 注射成形法制取各向异性粘结 Nd-Fe-B 磁体的研究. *稀有金属材料与工程*, 2005, 34(8): 1251
- 5 陈 刚, 杨小玲, 徐 晖, 等. 温压钕铁硼粘结磁体制备技术的研究. *稀有金属材料与工程*, 2008, 37(2): 308
- 6 赵明静, 刘围征, 赵瑞金, 等. 温热处理对钕铁硼速凝薄带微观组织及性能的影响. *金属功能材料*, 2008, 15(4): 11
- 7 Fidler J, Schrefl T. Overview of Nd-Fe-B Magnets and Coercivity. *Journal of Applied Physics*, 1996, 79(8): 5029
- 8 刘湘涟, 周寿增. Nd-Fe-B 磁体烧结过程晶粒长大行为的研究. *中国稀土学报*, 2006, 24(5): 580
- 9 刘湘涟. 高性能 Nd-Fe-B 永磁材料工业生产烧结过程与关键技术基础研究[博士学位论文]. 北京: 北京科技大学, 2001
- 10 周寿增, 董清飞. 超强永磁体. 北京: 冶金工业出版社, 1999
- 11 Takajo S, Kaysser W A, Petzow G. Analysis of Particle Growth by Coalescence during Liquid Phase Sintering. *Acta Metallurgica*, 1984, 32(1): 107

张晓鹏(1985-), 男, 硕士研究生(石家庄铁道大学材料学院), 2009 年河北工业大学毕业, 烧结钕铁硼磁体研究。

收稿日期: 2011-09-19