

Study on Preparation and Magnetic Properties of $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x/\text{Fe}_3\text{Pt}/\alpha\text{-Fe}$ Nanocomposite Permanent-Magnetic Material

Wei Yang, Chun-xiang Cui*, Ji-bing Sun, Bing Hu

School of Material Science and Engineering, Hebei University of Technology, Tianjin 300130, China

Email: yangwei@hebut.edu.cn, hutcui@hebut.edu.cn, hbgdsjb@126.com

Abstract: In this paper, $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x/\text{Fe}_3\text{Pt}/\alpha\text{-Fe}$ are prepared by melt-spun method and HD method, SEM, XRD and VSM techniques have been used to characterize the structural and magnetic property. The difference magnetic property between $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x/\text{Fe}_3\text{Pt}/\alpha\text{-Fe}$ and $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x/\alpha\text{-Fe}$ has also been studied. Fe_3Pt alloy is an excellent magnetically soft material, which can generate exchange-coupling interaction with $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$ alloy in nano scale. The coercivity of the multiphase nanocomposite material can reach to 2600Oe, therefore, $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x/\text{Fe}_3\text{Pt}/\alpha\text{-Fe}$ alloy is a new type Development permanent magnetic composite.

Keywords: melt-spun; HD; exchange-coupling; nanocomposite

$\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x/\text{Fe}_3\text{Pt}/\alpha\text{-Fe}$ 纳米复合永磁材料的制备及磁性能的研究

杨薇¹ 崔春翔^{2*} 孙继兵³ 胡冰⁴

河北工业大学材料学院, 天津, 中国, 300130

Email: yangwei@hebut.edu.cn, hutcui@hebut.edu.cn, hbgdsjb@126.com

摘 要: 采用熔体快淬法和HD法相结合的方法, 制备出 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x/\text{Fe}_3\text{Pt}/\alpha\text{-Fe}$ 纳米复合永磁材料, 利用XRD、TEM、VSM等技术对其结构和磁性能进行了研究, 并与 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x/\alpha\text{-Fe}$ 纳米复合永磁材料的磁性能进行了对比。由于 Fe_3Pt 是一种性能极为优异的软磁材料, 可以与 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$ 永磁相在纳米尺度内产生交换耦合作用, 形成的多相纳米复合永磁材料, 其粉体的矫顽力可达到2600Oe, 是一种具有发展前途的新型永磁复合材料。

关键词: 熔体快淬; HD; 交换耦合; 纳米复合

1 引言

信息、交通和能源等高新技术产业的发展期望永磁材料有更高的综合磁性能^[1-3]。 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x/\text{Fe}_3\text{Pt}/\alpha\text{-Fe}$ 复相纳米永磁是由 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$ 纳米晶硬磁相和 Fe_3Pt 、 $\alpha\text{-Fe}$ 纳米晶软磁相组成, 并可在硬磁相和软磁相之间产生交换耦合作用的复合永磁材料^[4-6]。由于成分和微结构的复杂性, 与传统的永磁材料相比, $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x/\text{Fe}_3\text{Pt}/\alpha\text{-Fe}$ 复相纳米永磁具有全新的特征, 本文对其物相组成及磁性能进行了探讨。

2 试 验

合金的名义成分为 $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}$, 用真空电弧炉

熔炼母合金。为了补偿熔炼时Sm的烧损, 熔炼时多加入约40 %的Sm, 估计合金主相是2:17化学计量的成分。然后用熔体快淬法(钨轮线速度 $V_s=12\text{m/s}$)制备微晶薄带。将所得微晶薄带样品封在石英管中, 然后放入氢爆炉内进行HD处理, 以获得理想的纳米晶组织。经HD处理后的合金直接进入氮化炉内进行 500°C 、5h的氮化处理, 最终得到了 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x/\text{Fe}_3\text{Pt}/\alpha\text{-Fe}$ 纳米复合永磁合金。用Rigaku Dmax 2500 Pc型X射线衍射仪($\text{Cu-K}\alpha$ 射线, 步长为0.02)进行结构分析。利用Lake Shore Model 7407振动样品磁强计(VSM)测量室温磁性能。

3 结果与讨论

3.1 XRD 结果分析

基金项目: 天津市应用基础与前沿技术研究计划重点项目(09JCZDJC22800), 国家教育部博士点基金(20060080005)。

图1给出了 $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}$ 合金快淬态、HD 处理后及氮化处理后的 XRD 谱。从图1(a)中可以看出,快淬带几乎完全晶化,并有微弱的 Fe_3Pt 软磁相的衍射峰。对比图1(b)与图1(a)可以看出,经过HD处理后 $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}$ 合金中的各衍射峰并未出现大的变化,即未出现其它新的衍射峰,只是各衍射峰的半高宽略有增加,同时 $\alpha\text{-Fe}$ 软磁相衍射峰的强度有所增强。这是由于合金在HD处理过程中,H原子进入到合金原子的间隙位置,而造成沿晶断裂和穿晶断裂,使合金颗粒尺寸变小。并且在HD处理过程中有少量的 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ 硬磁相发生了分解反应,导致 $\alpha\text{-Fe}$ 软磁相的相对含量增多。对比图1(c)与图1(b)可以发现,氮化后 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ 相的各衍射峰向小角度方向偏移,这是因为氮原子溶入 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ 合金的晶格间隙位置,造成晶格体积的膨胀,面间距增大,使 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ 相的衍射峰对应的 2θ 角变小。

3.2 快淬后 $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}$ 合金薄带 TEM 分析

图2为快淬后 $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}$ 合金的透射电镜显微形貌(a)、(c)及电子衍射斑点(b)、(d)。图(a)中微区 P1 为基体相,对 P1 进行电子衍射得到衍射斑点图(b)。分析发现图(b)为 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ 相的单晶斑点,其晶带轴为 $[\text{uvw}]=[\bar{2}2\bar{1}]$ 。对图(c)中的基体 P2 进行电子衍射,衍射斑点如图(d)所示。其中有 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ 相的和 Fe_3Pt 相的单晶斑点。对比斑点与显微形貌及图2的X射线衍射分析可知,在快淬 Sm-Fe-Pt 合金中形成了 $\text{Fe}_3\text{Pt}/\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}/\alpha\text{-Fe}$ 的三相相间结构。

3.3 磁性能分析

为了比较 Fe_3Pt 合金的加入对永磁材料磁性能的影响,又用同样的方法和工艺制备了名义成分为 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ 的永磁合金。图3和图4分别为 $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}\text{N}_x$ 合金粉体与 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$ 合金粉体的磁滞回线。由图3可以看出磁滞回线比较光滑饱满,并未出现“蜂腰”及台阶状,说明 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$ 硬磁相与 Fe_3Pt 、 $\alpha\text{-Fe}$ 软磁相交换耦合作用较好,对比图3和图4可以看出, $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}\text{N}_x$ 合金粉体的磁滞回线较为饱满,但饱和磁化强度略低于 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$ 合金。

表1列出了 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x/\text{Fe}_3\text{Pt}/\alpha\text{-Fe}$ 合金与 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x/\alpha\text{-Fe}$ 合金在 500°C 氮化后粉末的磁性能。由表1可以看出 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x/\text{Fe}_3\text{Pt}/\alpha\text{-Fe}$ 多相纳米复合永磁合金的矫顽力远远高于 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x/\alpha\text{-Fe}$ 双相纳米复合永磁合金的矫顽力,剩磁也有所提高,只是饱和磁化强度略低于 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$ 合金。说明在制备过程中,

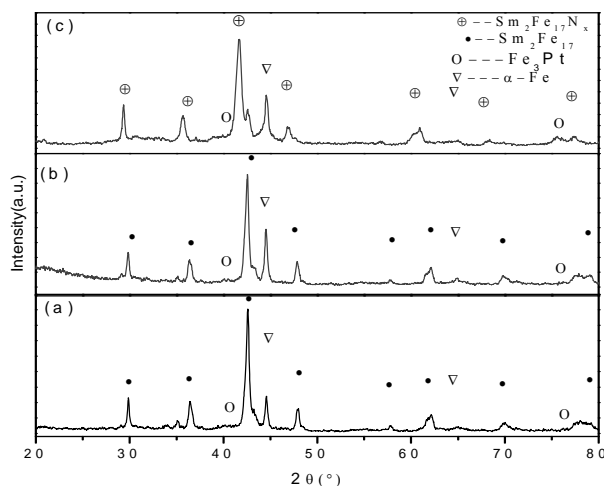


Figure 1. X-ray diffraction pattern of $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}$ alloy (a) X-ray diffraction pattern of melt-spun $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}$ alloy; (b) X-ray diffraction pattern of $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}$ alloy after HD treatments; (c)

X-ray diffraction pattern of $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}$ nitrides

图1. $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}$ 合金 X 射线衍射图 (a) 快淬后的 $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}$ 合金 X 射线衍射图; (b) 经 HD 处理后的 $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}$ 合金 X 射线衍射图; (c) 氮化后的 $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}$ 合金 X 射线衍射图

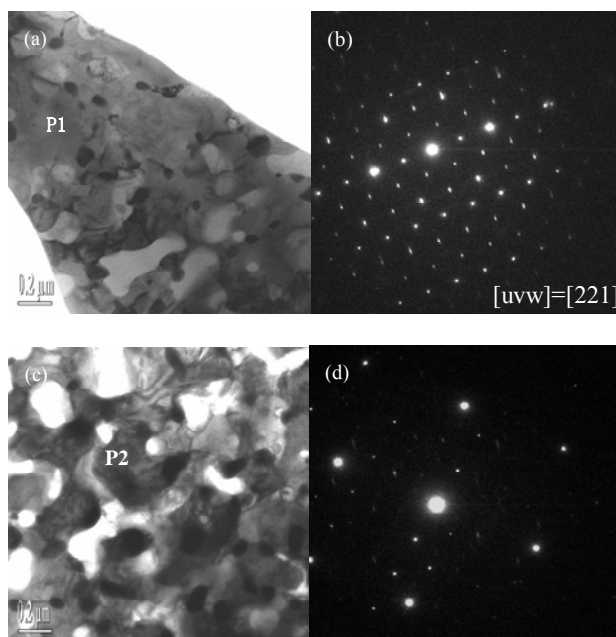


Figure 2. TEM images ((a),(c)) and SAD patterns ((b),(d)) of melt-spun $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}$ ribbon

图2. 快淬后 $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}$ 合金的透射电镜观察结果。(a)、(c) 快淬后 $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}$ 合金的形貌图; (b) 为图(a)中 P1 区域的电子衍射斑点; (d) 为图(c)中 P2 区域的电子衍射斑点

$\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}$ 合金中可能生成了较多的 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$ 硬磁相,因而大大提高了 $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}$ 合金的矫顽力。虽然 Fe_3Pt 是一种性能优异的软磁相,但由于在

$\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}$ 合金中的含量较少, 对提高永磁合金中的剩磁及饱和磁化强度的作用不明显。若要进一步提高 $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}$ 合金的综合磁性能, 增强软、硬磁性相间的交换耦合作用, 需要改进Fe-Pt合金的有序化处理工艺, 增加 Fe_3Pt 软磁相含量, 使软硬磁性相间达到理想配比, 从而达到提高 $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}$ 合金的综合磁性能的目的。

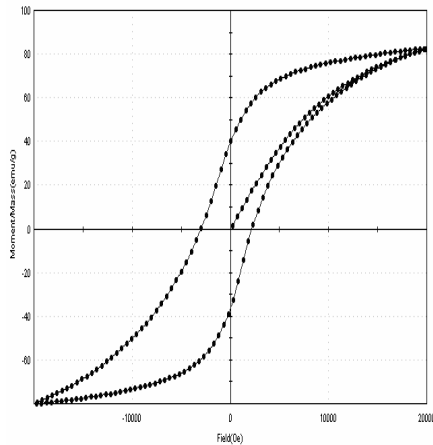


Figure 3. hysteresis loop of $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}\text{N}_x$ alloy after nitrided at 500°C for 5h

图 3. $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}\text{N}_x$ 合金粉体经 500°C 、5h 氮化处理的磁滞回线

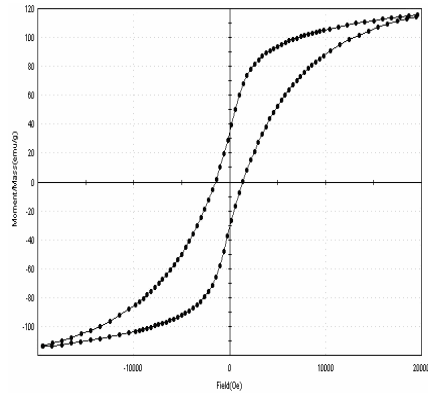


Figure 4. hysteresis loop of $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}\text{N}_x$ alloy after nitrided at 500°C for 5h

图 4. $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$ 合金粉体经 500°C 、5h 氮化处理的磁滞回线

Table 1. The magnetic properties of $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}\text{N}_x$ and $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$ alloys produced by the same process

表1. 由相同制备工艺得到的 $\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}\text{N}_x$ 、 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$ 合金粉体的磁性能

氮化温度	名义成分	Hci(Oe)	Ms(emu/g)	Mr(emu/g)
500℃	$\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$	1425.2	114.6	32.9
	$\text{Sm}_{10.2}\text{Fe}_{88.9}\text{Pt}_{0.9}$	2616.4	91.3	41.9

4 结论

$\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x/\text{Fe}_3\text{Pt}/\alpha\text{-Fe}$ 复相纳米永磁材料比 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x/\alpha\text{-Fe}$ 双相纳米永磁材料具有更高的综合磁性能, 测得的磁滞回线中第二象限没有出现明显的台阶, 表现为单一永磁体的特点, 可以认为硬磁相与软磁相之间的交换耦合作用已形成。其磁性能为: $H_{ci}=2616.4\text{Oe}$, $M_s=91.3\text{emu/g}$, $M_r=41.9\text{emu/g}$ 。

References (参考文献)

[1] Skomski R, Coey J M. Nucleation Field and Energy Product of Aligned Two-phase Magnets-Progress Towards The '1MJ/m3' Magnet. [J] *IEEE. Trans. Magn.*, 1993, 29:2860-2862.

[2] Zhou Jifeng. Advance in Application of RE in New Materials Research [J]. *rare earth*, 1996, 17(5):46—52(Ch). 周吉峰. 稀土在新材料应用研究中的新进展[J]. 稀土, 1996, 17(5): 46—52.

[3] Minbo Tian, Magnetic Material, BeiJing: *tisinghua Publishing Company*, 2001(Ch). 田民波. 磁性材料 [M] 北京: 清华大学出版社, 2001.

[4] Sen Yang, Shangdong Li, *et al.* Exchange Coupled $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ Nanocomposite Magnets with Fine $\alpha\text{-Fe}$ Grains Obtained by Low Wheel Speed Spinning [J]. *Journal of Alloys and Compounds*. 2002, 343: 217-222.

[5] Ruwei Gao, Youyong Dai, Wei Chen, *et al.* Intergranular Exchange-coupling Interaction and Magnetic Properties in The Nanocomposite Permanent Materials [J]. *progress in physics*, 2001, 21(2):131-156 (Ch). 高汝伟, 代由勇, 陈伟, 等. 纳米晶复合永磁材料的交换耦合作用和磁性能[J]. 物理学进展, 2001, 21(2):131—156.

[6] Kneller, E.F., Hawig, R. The Exchange-spring Magnet: a New Material Principle for permanent magnets [J]. *IEEE Trans. on Mag.* 1991, 27:3558-3560.