Scientific Research

Anisotropic Bulk $Nd_{13.5}Fe_{80.4}Ga_{0.5}B_{5.6}$/α-Fe Magnets Prepared by Spark Plasma Sintering Technique

Yi-long Ma[1], Qian Shen[2], Deng-ming Chen[1], Jian-chun Sun[1]

[1]*College of Metallurgy and Materials Engineering, Chongqing University of science and technology, Chongqing, China, 401331*

[2]*College of Material Science and Engineering, Chongqing University of technology, Chongqing, China, 400054*

Email: yilongma@163.com

Abstract: Isotropic and anisotropic bulk $Nd_{13.5}Fe_{80.4}Ga_{0.5}B_{5.6}$/α-Fe magnets have been obtained by using spark plasma sintering (SPS) technique and the effect of soft magnetic phase content on magnetic properties has been studied. The result shows that the magnetic properties of hot-pressed magnets could be enhanced by proper addition of Fe powder. For hot-deformed magnets, the demagnetization curve has the characteristic of single hard phase magnet and the maximum energy product increases to 358 kJ/m^3 at the addition of 2.5wt.% Fe. When the content of Fe is more than 5wt.%, the magnetic properties decrease due to the formation of bad texture and being oxidized during sintering.

Keywords: Nd-Fe-B/α-Fe; hot-deformation; magnetic properties; SPS

放电等离子烧结制备各向异性 $Nd_{13.5}Fe_{80.4}Ga_{0.5}B_{5.6}$/α-Fe 复合永磁体

马毅龙[1]，沈倩[2]，陈登明[1]，孙建春[1]

[1]重庆科技学院冶金与材料工程学院，重庆，中国，401331

[2]重庆理工大学材料科学与工程学院，重庆，中国，400054

Email: yilongma@163.com

摘　要：使用放电等离子烧结(SPS)制备了各向同性及各向异性 $Nd_{13.5}Fe_{80.4}Ga_{0.5}B_{5.6}$/α-Fe 致密磁体，并研究了软磁相含量对复合磁体性能的影响，结果表明：适量 Fe 的添加可提高热压(HP)磁体的磁能积，当 Fe 含量较多时，磁体矫顽力大幅下降，磁能积降低；热变形(HD)后，磁体退磁曲线呈现单一硬磁相特征，且少量 Fe 的添加可改善磁体的最大磁能积，添加 2.5wt.%Fe 后磁体最大磁能积为 358 kJ/m^3，而过量 Fe 的添加影响 c 轴织构的形成，并加重烧结过程中磁体的氧化，从而导致磁性能下降。

关键词：Nd-Fe-B/α-Fe；热变形；磁性能；SPS

1 引言

Nd-Fe-B 材料磁性能主要来源于具有四方相 $Nd_2Fe_{14}B$，且其 c 轴是易磁化轴[1]。各向同性磁体由于晶粒 c 轴的混乱排列使得磁体剩磁较低；而 c 轴整齐排列后，磁体具有高的剩磁，磁能积大幅提高。目前，获得高性能各向异性 Nd-Fe-B 致密磁体可通过传统烧结法以及热压热变形法[2,3]。

纳米晶双相耦合 $Nd_2Fe_{14}B$/α-Fe 磁体因为具有强的交换耦合作用，从而具有高的剩磁以及高的磁能积。为进一步提高磁性能并降低稀土含量，制备各向异性 $Nd_2Fe_{14}B$/α-Fe 磁体已受到广泛关注[4]。富 Nd 晶界相对获得高性能、高取向的热变形磁体至关重要，它起着促进形变的进行以及原子的扩散通道的作用，从而使磁体形成排列整齐的片状晶粒以及晶粒的 c 轴取向[5]。而对于纳米晶双相 Nd-Fe-B 磁体，其不含有富 Nd 晶界相，使用热变形法制备各向异性贫稀土铁基永磁体难以获得均匀的微观组织以及好的 c 轴取向。为获得高性能各向异性致密 $Nd_2Fe_{14}B$/α-Fe 磁体，本研究采用富 Nd 成分合金与羰基铁混合的方法，并利用放电等离子烧结来制备各向异性复合磁体，进一步研究了软磁相含量对热压及热变形磁体磁性能的影响。

2 实验方法

实验原料采用自制 $Nd_{13.5}Fe_{80.4}Ga_{0.5}B_{5.6}$ 快淬非晶粉以及粒度为 10 μm 左右的羰基 Fe 粉。将快淬磁粉

978-1-935068-41-9 © 2010 SciRes.

$Nd_{13.5}Fe_{80.4}Ga_{0.5}B_{5.6}$ 与 0~10wt.%Fe 粉均匀混合后，放入Φ15 mm 硬质合金模具中进行放电等离子烧结。烧结温度为 680 ℃，保温时间 2 min，压强为 200 MPa。热变形条件为：温度 750 ℃左右，压力 30～50 MPa，变形量为 62%。使用线切割将磁体加工以适合磁性能测试。使用振动样品磁强计(Lakeshore7410)测磁体性能，用 DX2000 型 X 射线衍射仪（CuKα）对磁体进行定性相分析，用 JSM-5600LV 型 SEM 分析其显微结构。

3 结果与讨论

表 1 为富 Nd 合金混合不同含量铁粉热压热变形后的磁性能。随着铁含量的增加，热压后磁体的剩磁逐渐增大，当 Fe 含量达 5wt.%时，剩磁达最大，为 0.91 T；而当 Fe 含量继续增加时，剩磁下降。矫顽力则随 Fe 含量的增多而逐渐下降，当 Fe 含量达 10wt.%时，其由不添加时的 1650 kA/m 降至 1068 kA/m。最大磁能积则与剩磁的变化趋势一致，在 Fe 含量为 5wt.%时达最大。

铁粉具有高的饱和磁化强度，加入适量的 Fe 有利于提高复合磁体的剩磁。另外，Fe 的理论密度较大，热压 $Nd_{13.5}Fe_{80.4}Ga_{0.5}B_{5.6}$ 磁体密度为 7.58 g/cm^3，添加 10wt.%Fe 热压后密度达 7.61 g/cm^3。密度的增加有利于磁体剩磁的提高。但另一方面，软磁相的添加也有稀释硬磁相的作用，使硬磁相的体积比下降。而磁体的矫顽力主要由硬磁相决定，因而磁体的矫顽力随铁的加入逐渐下降。

由表 1 可知，热变形后，随着 Fe 含量的增多，磁体的剩磁逐渐增加，在 5wt.%时达最大。矫顽力则随 Fe 含量的增多逐渐下降。最大磁能积在 Fe 含量为 2.5wt.%时达最大，为 358 kJ/m^3。图 1 为热压、热变

Table 1. Magnetic properties of hot-pressed and hot-deformed $Nd_{13.5}Fe_{80.4}Ga_{0.5}B_{5.6}$ with different content Fe

表 1. 合金 $Nd_{13.5}Fe_{80.4}Ga_{0.5}B_{5.6}$ 混合不同含量的铁粉热压、热变形后的磁性能

Fe content(wt.%)	B_r(T)		H_{cj}(kA/m)		$(BH)_m$(kJ/m^3)	
	HP	*HD*	*HP*	*HD*	*HP*	*HD*
0.0	0.79	1.41	1650	1287	103	352
2.5	0.85	1.43	1460	1080	105	358
5.0	0.91	1.45	1278	796	109	328
7.5	0.89	1.41	1238	538	101	262
10.0	0.87	1.33	1068	480	88	208

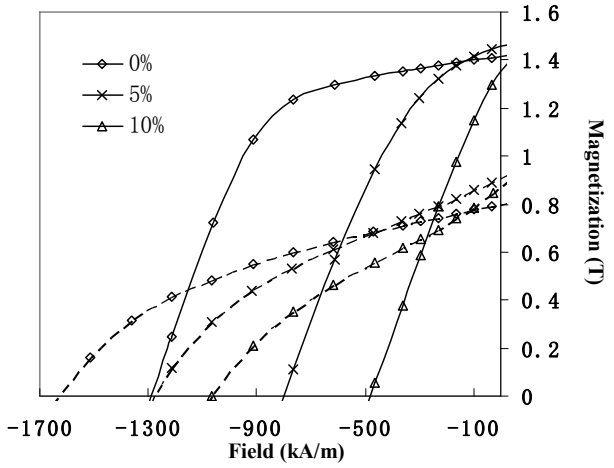

Figure 1. Demagnetization curves of hot-pressed(dashed line) and hot-deformed(solid line) $Nd_{13.5}Fe_{80.4}Ga_{0.5}B_{5.6}$ with different content Fe

图 1. 合金 $Nd_{13.5}Fe_{80.4}Ga_{0.5}B_{5.6}$ 混合不同含量铁粉热压（实线）、热变形（虚线）后的退磁曲线曲线

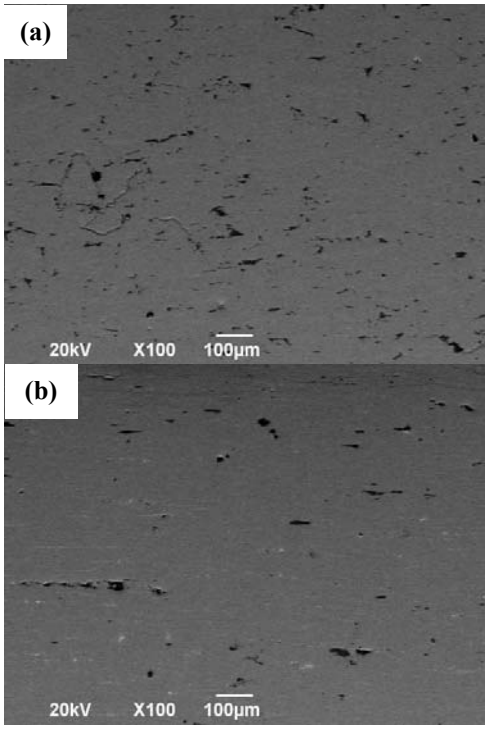

Figure 2. SEM micrographs of hot-pressed and hot-deformed magnets with addition of 5wt.% Fe

图 2. 合金混合 5wt.%铁粉热压(a)及热变形(b)后的背散射扫描电镜图

形复合磁体的退磁曲线。由图可知，随着 Fe 含量的增多，热压磁体的退磁曲线逐渐由单一硬磁相的退磁特征转变为逐渐呈现两相特征。当 Fe 含量较少时，由于 Fe 粉颗粒直径远大于软硬磁相间交换耦合的的尺寸要求(约 10nm)，因此复合磁体呈现出的单一退磁行为应归功于 Fe 粉颗粒与基体相间的静磁交互作用。而当 Fe 粉含量过多时，复合磁体退磁曲线呈现两相特征是由于 Fe 粉颗粒的团聚加重，使得软硬磁相间的静磁交互作用减弱。当 Fe 含量为 5wt.%时，热变形磁体退磁曲线仍呈现出单一硬磁相特征，但方形度降低。由图 2 可知添加 5wt.%铁粉热压后，Fe 粉聚集在磁粉颗粒之间，但分布并不均匀。热变形后，Fe 粉随着磁体的形变，沿磁粉颗粒拉长的方向呈条状分布，聚集在长条状颗粒之间。即原本团聚为一点的 Fe 粉热变形后呈线状分布。因此热变形后 Fe 粉颗粒与磁粉颗粒之间接触面积更大，且经过高温形变过程大量的原子扩散，软硬磁相间具有更强的静磁交互作用。所以热变形后，即便 Fe 含量较高，磁体退磁曲线仍呈现出单相特征。

图 3 为不同 Fe 含量的热变形磁体的 XRD。由图可知，加入 5wt.%铁粉时，磁体仍有较强的 c 轴织构，且[(006)/(105)]峰强比相对于不添加 Fe 时有所增大，这表明适量添加 Fe 粉磁体整体取向增强。当铁粉含量增至 10wt.%时，[(006)/(105)]峰强比减弱，且有明显的 α-Fe 特征峰。这表明当 Fe 粉含量过高时，磁体取向减弱。在热压热变形过程中，Fe 粉颗粒与基体之间势必会发生扩散，当 Fe 粉含量适当时，Fe 粉的团聚较少，两者可以很好的结合，基体间的静磁交换作用较强，复合磁体整体表现出一致的退磁行为，也对磁体性能的改善有益。而当 Fe 粉含量过多时，两者之间的扩散作用也加强，这在一定程度上也减少了磁粉颗粒表面的富 Nd 相，阻碍了磁体形变的进行；同时 Fe 粉严重的团聚也不利于热变形的完成。因此当 Fe 含量过多时，热变形所需应力增大，形变更为困难，也影响了磁体的取向。另外，由于 Fe 粉粒度为 1~10μm，细粉末的引入也加剧了烧结过程中磁体的氧化，因此当 Fe 含量过多时，热变形磁体的退磁曲线方形度急剧降低，磁性能下降。

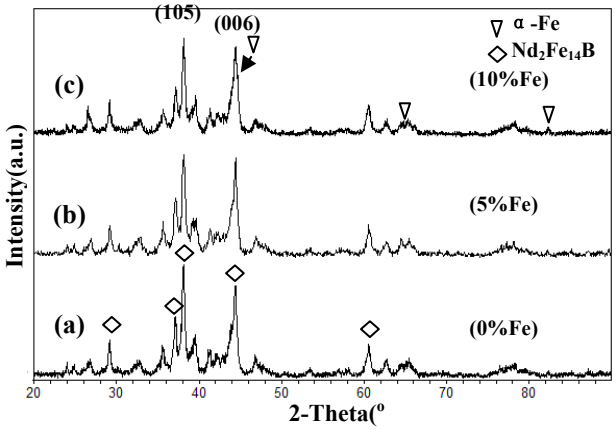

Figure 3. XRD patterns of hot-deformed magnets with different content Fe

图 3. 合金混合不同含量铁粉热变形后的 XRD 图

4 结论

使用放电等离子烧结制备出接近于全致密 $Nd_{13.5}Fe_{80.4}Ga_{0.5}B_{5.6}$/α-Fe 各向同性磁体，利用热变形技术获得高性能各向异性磁体。添加 2.5wt.%Fe 的热变形复合磁体磁性能为：B_r=1.43 T，H_{cj}=1080 kA/m，$(BH)_m$=358 kJ/m^3。当 Fe 添加量过多时，尽管热变形磁体退磁曲线呈现单一硬磁相特征，但由于 Fe 粉团聚严重，磁体 c 轴取向减弱，因此热变形磁体磁性能大幅下降。

References（参考文献）

[1] Shouzeng Zhou, Qingfei Dong. Super Permanent magnets Permanent Magnetic Material of Rare-earth and Iron System [M]. Beijing: Metallurgy Industry Press, 1999. 359.

[2] R. W. Lee. Hot-pressed neodymium-iron-boron magnets[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1985, 15:790-791.

[3] H. W. Kwon, Y. S. Kang, G. S. Choi, et al. Effect of grain size and die-upset temperature on texture in die-upset Nd-Fe-B magnet[J]. *IEEE Trans. Magn.*, 2009, 45: 2590-2593.

[4] M. Leonowicz, D. Derewnicka, M. Wozniak, H. A. Davies. Processing of high-performance anisotropic permanent magnets by die-upset forging[J]. *J. Mater. Processing. Technology*, 2004, 153-154: 860-867.

[5] A. M. Gabay, Y. Zhang and G. C. Hadjipanayis. Die-upset hybrid Pr-Fe-B nanocomposite magnets[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2004, 85: 446-448.

978-1-935068-41-9 © 2010 SciRes.