

添加 Nb 对 Nd-Fe-B 磁体温度稳定性的影响*

成问好 李卫 李传健

(钢铁研究总院功能材料研究所, 北京 100081)

摘要 对 $\text{Nd}_{15.15}\text{Fe}_{78.11-x}\text{Nb}_x\text{B}_{6.74}$ ($x=0, 0.21, 0.42, 0.72, 1.08, 1.44$) 永磁体的温度特性和显微组织及两者之间的关系进行了研究. 结果表明: Nb 可以显著降低磁体的磁通不可逆损失, 但对磁体磁通可逆部分几乎没有影响. Nb 在 Nd-Fe-B 磁体中的作用是使晶粒均匀化、规则化, 导致晶粒表面层厚度 τ_0 大幅度变薄. 晶粒表面的最小形核场 H_n 和 Bloch 壁的挣脱钉扎场 H_N 增大, 因而使磁体的不可逆损失降低、温度稳定性和使用温度提高.

关键词 Nd-Fe-B 永磁体, 温度特性, 显微组织

中图分类号 TG132.272

文献标识码 A

文章编号 0412-1961(2001)01-0087-04

EFFECT OF Nb ADDITION ON THE TEMPERATURE CHARACTERISTICS OF THE SINTERED Nd-Fe-B MAGNETS

CHENG Wenhao, LI Wei, LI Chuanjian

Department of Functional Materials, Central Iron & Steel Research Institute, Beijing 100081

Correspondent: CHENG Wenhao, (010)62184522, Fax: (010)62182980,

E-mail: wh-cheng@sohu.com

Manuscript received 2000-07-03, in revised form 2000-09-13

ABSTRACT The temperature characteristic and microstructure of the sintered $\text{Nd}_{15.15}\text{Fe}_{78.11-x}\text{Nb}_x\text{B}_{6.74}$ magnets and their relation have been investigated. It is found that the irreversible magnetic flux loss decreases with increasing Nb content, but the reversible part of magnetic flux loss was hardly affected by Nb addition. Nb addition leads to the homogenization and regularization of the grain of the main phase $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ and decreases the thickness of the Nd-rich boundary phase between main phase, which increases the minimum nucleation field H_n at the surface of the grain and the depinning field H_N of Bloch wall.

KEY WORDS Nd-Fe-B permanent magnet, temperature characteristic, microstructure

Nd-Fe-B 稀土永磁材料因其高的磁能积而获得了广泛的研究和重视. 但由于它的硬磁相 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 的 Curie 温度较低而限制了其在某些工作温度较高领域的应用. 近年来, 人们在改善 Nd-Fe-B 系磁体的温度特性方面进行了大量研究. 研究表明: 在改善磁体的温度特性方面, Dy 和 Co 是两个非常重要的元素, 复合添加 Nb, Al, Ga, Ti, Cu 和 W 等元素可获得更佳效果^[1,2]. Tokunaga 等人首先对 Nb 含量对 Nd-Fe-B 合金的磁性能、磁通不可逆损失的影响进行了研究^[3], 发现添加 Nb 可以减小磁体的不可逆损失, 只轻微降低剩余磁感应强度 B_r . 并研制出了经 200 ℃ 放置后磁通不可逆损失仅为 0.6% 的 $\text{Nd}_{0.8}\text{Dy}_{0.2}$ -

$(\text{Fe}_{0.86}\text{Co}_{0.06}\text{B}_{0.08}\text{Nb}_{0.015})_{5.5}$ 磁体^[4].

为了探究添加 Nb 导致磁体磁通不可逆损失降低的原因, 本文研究了不同 Nb 含量对 Nd-Fe-B 磁体的温度特性和显微组织的影响, 以及两者之间的关系.

1 实验方法

按照 $\text{Nd}_{15.15}\text{Fe}_{78.11-x}\text{Nb}_x\text{B}_{6.74}$ ($x=0, 0.21, 0.42, 0.72, 1.08, 1.44$) 的成分要求, 称取相应质量的工业纯原料. 其中 Nb 和 B 分别以 Nb-Fe 和 B-Fe 合金的形式加入. 在非自耗式电弧钮扣炉中 Ar 气氛下熔炼, 为保证均匀性, 每个试样均反复熔炼 3 次. 合金试样在汽油保护下球磨制粉, 在 12.8 kA/m (16 kOe) 磁场中成型. 经等静压压制后在 1080 ℃ 烧结 2 h, 900 和 600 ℃ 分别回火 1 和 2 h. 用场发射扫描电镜观察磁体的组织形貌.

将直径为 8 mm × 8 mm 样品饱和充磁, 加热到设

* 国家自然科学基金资助项目 50071051

收到初稿日期: 2000-07-03, 收到修改稿日期: 2000-09-13

作者简介: 成问好, 男, 1962 年生, 博士生

定温度保温 30 min, 用抽拉线圈 - 积分数字电压表法测量该温度时的磁通值, 用来计算总磁通损失. 将测试过总磁通损失的样品加热至 120 °C, 保温 2 h, 然后降温至 100 °C, 保温 30 min 后测量其磁通值 $\phi_{100\text{ }^\circ\text{C}}$; 再降至 20 °C, 保温 30 min 后测量 $\phi_{20\text{ }^\circ\text{C}}$. 按照下式计算 20—100 °C 温度区间的磁通可逆温度系数

$$\alpha_{20-100\text{ }^\circ\text{C}} = \frac{\phi_{100\text{ }^\circ\text{C}} - \phi_{20\text{ }^\circ\text{C}}}{\phi_{20\text{ }^\circ\text{C}}(100 - 20)} \quad (1)$$

2 实验结果和讨论

2.1 Nb 含量对烧结 Nd-Fe-B 磁体温度特性的影响

对不同 Nb 含量的 $\text{Nd}_{15.15}\text{Fe}_{78.11-x}\text{Nb}_x\text{B}_{6.74}$ 系列磁体的磁通在 20—105 °C 温区内随 Nb 含量变化的情况进行了测量. 总磁通 (可逆 + 不可逆) 随温度的变化情况经归一化处理后如图 1 所示.

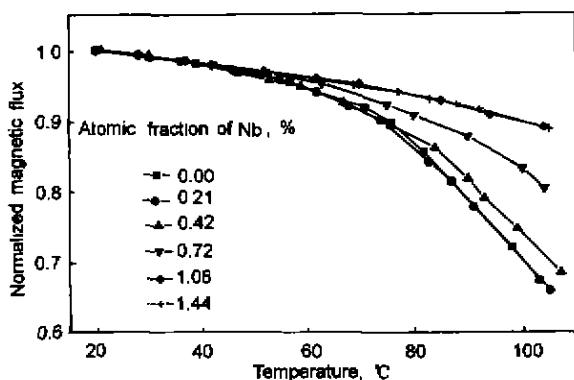


图 1 $\text{Nd}_{15.15}\text{Fe}_{78.11-x}\text{Nb}_x\text{B}_{6.74}$ 磁体的归一化磁通随温度的变化曲线

Fig.1 Normalized magnetic flux vs temperature for $\text{Nd}_{15.15}\text{Fe}_{78.11-x}\text{Nb}_x\text{B}_{6.74}$ magnets

由图 1 可以看出, 增加 Nb 含量可使 Nd-Fe-B 磁体的磁通损失随温度升高明显减小, 磁体的使用温度提高. 在本实验涉及的成分范围内, 当 Nb 含量 $x=1.08$ 时, Nb 对 Nd-Fe-B 磁体使用温度的提高达到最大值. 继续增加 Nb 含量, 磁体的温度特性几乎不再改善. 另外, 当 Nb 含量 $x \leq 0.21$ 时, Nb 对磁体温度特性的改善无明显作用. 其磁通随温度变化的归一化曲线与不含 Nb 磁体的归一化曲线几乎重合.

为弄清楚 Nb 对 Nd-Fe-B 磁体的磁通可逆损失的影响, 对不同 Nb 含量的 $\text{Nd}_{15.15}\text{Fe}_{78.11-x}\text{Nb}_x\text{B}_{6.74}$ 系列磁体 20—100 °C 的磁通温度系数和 100 °C 相对于 20 °C 的可逆磁通损失率进行了测量, 并将其与 100 °C 相对于 20 °C 的磁通总损失率进行了对比.

当 Nb 含量 x 分别为 0, 0.21, 0.42, 0.72, 1.08 和 1.44 时, $\text{Nd}_{15.15}\text{Fe}_{78.11-x}\text{Nb}_x\text{B}_{6.74}$ 系列磁体在 20—100 °C 的磁通可逆温度系数 $\alpha_{20-100\text{ }^\circ\text{C}}(\%/^\circ\text{C})$ 分别为: -0.107, -0.103, -0.102, -0.105, -0.104 和 -0.106. 由此

可以看出, Nb 对 Nd-Fe-B 磁体的磁通可逆温度系数的影响, 几乎可以忽略不计.

图 2 为 $\text{Nd}_{15.15}\text{Fe}_{78.11-x}\text{Nb}_x\text{B}_{6.74}$ 磁体 100 °C 时的磁通总损失和可逆损失随 Nb 含量变化的情况. 由图可以看出, Nb 的加入使 Nd-Fe-B 磁体 100 °C 的磁通总损失大为降低, 但磁体的可逆损失几乎没有改善, 即 Nb 使 Nd-Fe-B 磁体的磁通不可逆损失部分得到了显著改善. 这种作用在 Nb 含量 x 为 1.08 左右时达到最大值. 继续增加 Nb 含量, 对磁体的磁通不可逆损失的影响已不明显. 文献 [3] 对 $\text{Nd}(\text{Fe}_{0.92-y}\text{Nb}_y\text{B}_{0.08})_{5.6}$ 磁体 100 °C 时的磁通损失进行了测量, 发现磁体的不可逆损失随 Nb 含量的增加成线性减小, 但他们只选了 3 个点 ($y=0, 0.009, 0.015$), 其中 $y=0.015$ 对应图 2 中 Nb 含量 $x=1.27$ 的位置. 从图 2 可以看出, 此时 Nb 含量对磁通不可逆损失的影响已进入不敏感区域. 相比之下, 本实验揭示的变化更细微.

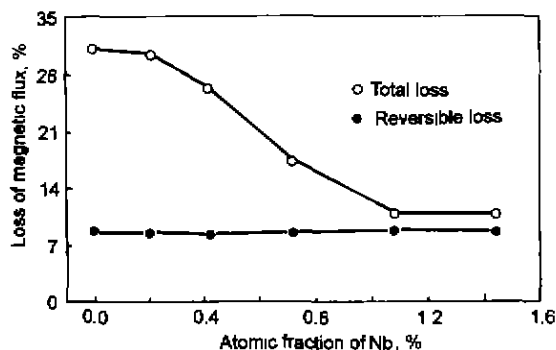


图 2 $\text{Nd}_{15.15}\text{Fe}_{78.11-x}\text{Nb}_x\text{B}_{6.74}$ 磁体 100 °C 时的磁通总损失和可逆损失随 Nb 含量的变化曲线

Fig.2 Total loss and reversible loss of magnetic flux at 100 °C vs Nb content for $\text{Nd}_{15.15}\text{Fe}_{78.11-x}\text{Nb}_x\text{B}_{6.74}$ magnets

2.2 Nb 对 Nd-Fe-B 磁体显微结构的影响

图 3 为不含 Nb 和含 Nb 磁体的显微组织形貌.

从图可以看出, 和含 Nb 的 Nd-Fe-B 磁体比, 不含 Nb 的 Nd-Fe-B 磁体中晶粒的大小及形状相差非常大. 尺寸在 2—5 μm 和 20—30 μm 的晶粒分别占很大比例, 且绝大部分晶粒的形状极不规则. 较大晶粒的边缘常出现“头状”鼓出物; 尺寸较小、破碎、形状极不规则且含有锐角的多边形晶粒到处可见. 晶粒与晶粒之间大多以点接触, 只有很少部位是面接触.

对含 Nb 的 Nd-Fe-B 磁体的显微形貌进行分析表明, Nb 使 Nd-Fe-B 磁体的晶粒均匀化和规则化, 使条形、四边形、楔型等含有尖锐棱角的、形状极不规则的晶粒和尺寸过大或过小的晶粒大为减少甚至消失. 晶粒之间由点接触过渡到面接触, 结合得更加紧密, 富 Nd 相的分布更加均匀. 这一过程使磁体的 iH_c 显著增加.

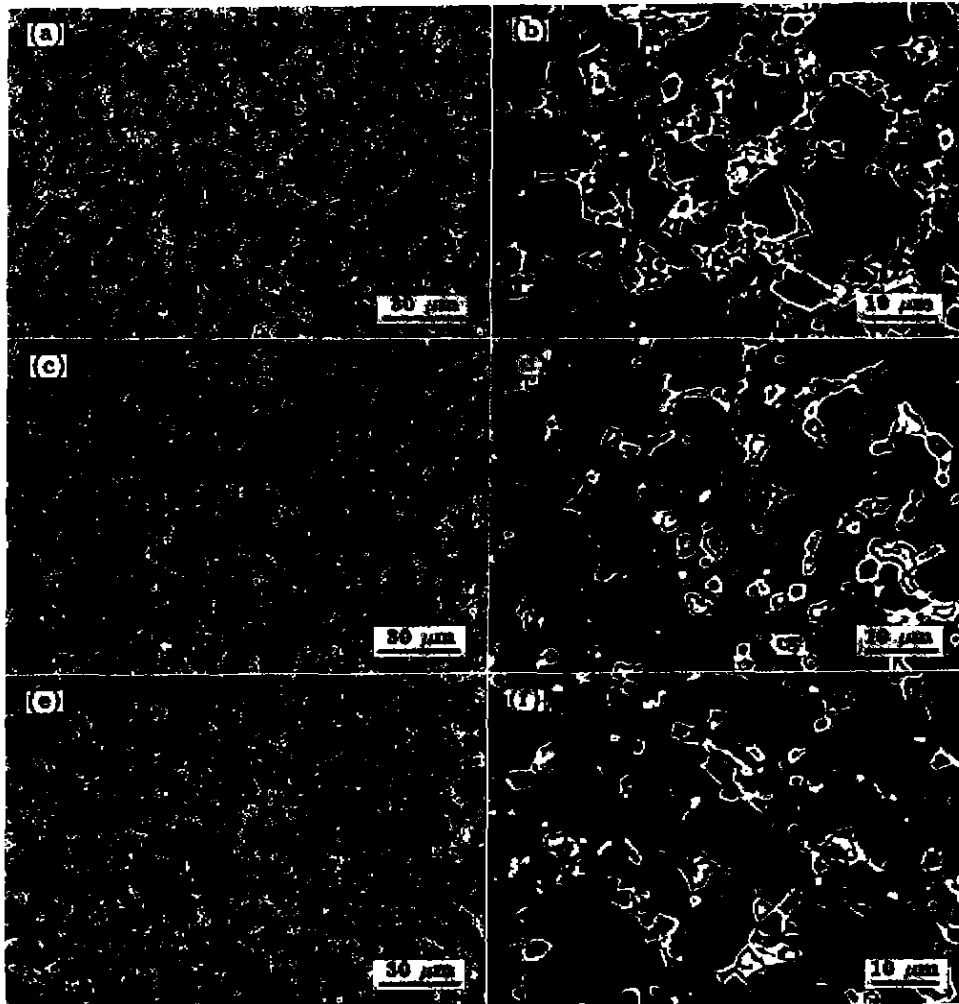


图 3 $Nd_{15.15}Fe_{78.11-x}Nb_xB_{6.74}$ 系列磁体的显微形貌
 Fig.3 Microstructures of the sintered $Nd_{15.15}Fe_{78.11-x}Nb_xB_{6.74}$ magnets
 (a), (b) $x=0$ (c), (d) $x=0.72$ (e), (f) $x=1.44$

对比表明，含 Nb 磁体的晶粒尺寸与不含 Nb 磁体的晶粒尺寸相当，只是前者的晶粒外形更规则。随着 Nb 含量的增大，晶粒的尺寸差变小，晶粒间的晶界相越来越薄，越来越多的晶粒断面趋向正六面体，出现了几个晶粒以极薄的晶界相聚合在一起的现象，且 Nb 含量越高聚合度越大。当 Nb 含量 $x=1.44$ 时，几乎所有晶粒都连成一体。因此，Nb 在 Nd-Fe-B 磁体中的作用主要是使晶粒均匀化、规则化，使晶粒表面层的厚度大幅度变薄。

根据铁磁学理论，假设晶粒表面层的厚度为 τ_0 ，其它磁性常数与晶粒内部的相同，只有磁晶各向异性常数 K_0 随易磁化轴 z 变化，则晶粒表面的最小形核场 [5]

$$H_n = \frac{2K_0}{\mu_0 M_0} - \frac{3}{4} M_0 + \frac{2}{\pi} \frac{\Delta K}{\mu_0 M_0} \frac{\delta_B}{\tau_0} \quad (2)$$

式中， K_0 为晶粒表面的磁晶各向异性常数； ΔK 表示磁晶各向异性常数从晶粒内部（基体）至晶粒表面的总变化， $\Delta K = K_1 - K_0$ ； M_0 为晶粒表面区的磁化强度； δ_B

为 Bloch 壁的厚度， $\delta_B = \pi \sqrt{A_0/K_1}$ ，其中， A_0 为晶粒表面区的交换能常数。

由式 (2) 可以看出，对某种特定的磁性材料来说，表面形核场的大小与表层厚度的关系极大。

在晶粒表面形成的反磁化核需进一步长大才能导致整个样品的反磁化，而反磁化核的长大是通过畴壁的移动来实现的。已知晶粒表面 Bloch 壁的挣脱钉扎场 [5]

$$H_N = 0.273 \frac{K_1 - K_0}{\mu_0 M_1} \frac{\delta_B}{\tau_0} \quad (3)$$

从 H_n 和 H_N 的表达式式 (2, 3) 可以看出，无论是晶粒表面的反磁化核形成场 H_n 还是晶粒表面 Bloch 壁的挣脱钉扎场 H_N ，均与表面层厚度 τ_0 有极大关系。当 τ_0 减小时， H_n 和 H_N 同时增大。 H_n 增大反磁化核的形成难度增加， H_N 增大反磁化核不易长大。结果均使磁体的稳定性提高。

从以上关于 Nb 对 Nd-Fe-B 磁体晶粒显微结构影响

的讨论可知, Nb 的作用是减小了磁体中晶粒表面层的厚度 r_0 , 因而使晶粒表层的 H_n 和 H_N 值增大, 使磁体的不可逆损失降低.

3 结论

(1) Nb 能够显著降低磁体的磁通不可逆损失, 但对磁体的磁通可逆部分影响甚微.

(2) Nb 使 Nd-Fe-B 磁体的晶粒均匀化和规则化, 使条形、四边形及楔型等含有尖锐棱角的、形状极不规则的晶粒和尺寸过大或过小的晶粒大为减少甚至消失, 晶粒之间由点接触过渡到面接触.

(3) Nb 使晶粒表层间晶界相的厚度显著度变薄, 使晶粒表面的最小形核场 H_n 和 Bloch 壁的挣脱钉扎场 H_N

增大, 因而使得磁体的不可逆损失降低.

参考文献

- [1] Velicescu M, Fernengel W, Rodewald W, Schrey P, Wall B. *J Magn Magn Mater*, 1996; 157/158: 47
- [2] Fidler J. *Proc 7th Int Symp on Anisotropy and Coercivity in Rare Earth Transition Metal Alloys*, 16 July, 1992, Canberra, Australia, 1992: 11
- [3] Tokunaga M, Harada H, Trout S R. *IEEE Trans Magn*, 1987; MAG-23: 2284
- [4] Tokunaga M, Kogure H, Endoh M, Harada H. *IEEE Trans Magn*, 1987; MAG-23: 2287
- [5] Zhong W D. *Ferromagnetism*. Vol.2, 2nd ed., Beijing: Metallurgical Industry Press, 1997: 377
(钟文定. 铁磁学 (中册). 第 2 版, 北京: 冶金工业出版社, 1997: 377)