

# HDDR 各向异性 NdFeB 磁粉的粒度效应 和表面缺陷层模型

刘旭波 肖耀福 张正义 袁宝琴 王润

北京科技大学材料科学与工程学院, 北京 100083

**摘要** 研究了 HDDR 各向异性 NdFeB 磁粉的粒度效应, 发现尽管其粒度效应较低而适合制备粘结磁体, 但比快淬 NdFeB 磁粉的粒度效应显著. 在此基础上提出了表面缺陷层模型, 即把磁粉颗粒从外表面到内部分成表面缺陷层、过渡层和本体部分, 磁粉磁性是各自磁性的叠加.

**关键词** HDDR; NdFeB; 粒度效应; 表面缺陷层模型

**分类号** TG 132.2; TM 237; O 482.5

HDDR 各向异性 NdFeB 是利用氢化—歧化—脱氢—复合工艺 (Hydrogenation—Decomposition—Desorption—Recombination 简称 HDDR 工艺) 制备的 NdFeB 磁粉; 再与环氧树脂或尼龙等粘结剂混练并利用模压或注射成型技术获得相应的粘结磁体<sup>[1]</sup>.

粒度效应是磁粉的磁性能对粒度的敏感程度. 磁粉的粒度效应越不显著即磁性能对粒度越不敏感, 则越适合制备粘结永磁. 对于稀土粘结永磁, 主要是制造模压磁体. 按照粉末冶金成型理论, 使用一定粒度范围内的磁粉才有利于成型和提高磁体密度. 因此, 要求磁粉具有一定的粒度分布并在此范围内磁性能尽量一致. 如果一种磁粉要求颗粒尺寸很大才具有良好的磁性能, 如烧结 NdFeB 破碎磁粉, 或者颗粒尺寸很小才具有良好的磁性能, 如 SmFeN 等材料, 则不属于制备粘结磁体的良好磁粉. 因此, 研究粘结永磁所用磁粉的粒度效应具有重要的意义.

近年来, 本研究组围绕 HDDR NdFeB 材料进行了一些工作<sup>[2,3]</sup>. 在这里主要报道 HDDR 各向异性 NdFeB 磁粉的粒度效应, 以及解释这种效应的磁粉表面缺陷层模型.

## 1 实验方法

研究用 HDDR 各向异性 NdFeB 磁粉, 在本

实验室按照下述方法制备: 名义成分为  $\text{Nd}_{15}\text{Fe}_{60}\text{Co}_{11.4}\text{B}_{5.8}\text{Zr}_{0.1}$  的母合金在  $1100\text{ }^\circ\text{C}$  均匀化处理 16 h 后破碎为低于 40 目的粉末, 并在  $850\text{ }^\circ\text{C}$  吸氢 2 h 和脱氢处理 1 h, 获得研究使用的磁粉. 对比研究使用的快淬 NdFeB 磁粉为 MQP-D 磁粉; 对比研究使用的烧结 NdFeB 磁粉的原烧结磁体的成分为  $\text{Nd}_{15}\text{Fe}_{60}\text{Co}_{11}\text{B}_8\text{Al}_1$ , 矫顽力为  $800\text{ kA/m}$ . 磁粉矫顽力的测量在 CL 型直流磁特性仪上进行, 其样品制备是利用质量分数 50% 的磁粉和 50% 的环氧树脂混合并在 2 T 的静磁场中固化成型. 每个磁粉颗粒基本上是孤立的, 可忽略它们之间的相互作用.

## 2 结果与讨论

### 2.1 HDDR 各向异性 NdFeB 磁粉的粒度效应

对于稀土永磁材料而言, 主要关心矫顽力随粒度的变化即磁硬化对粒度的敏感程度. 表 1 表示烧结 NdFeB、快淬 NdFeB 和 HDDR 各向异性 NdFeB 的粒度效应.

表 1 的结果表明: (1) 烧结钕铁硼由于粒度效应太显著, 当破碎到亚毫米以下时, 磁性能损失太大而不适合做为永磁材料; (2) HDDR 钕铁硼和快淬钕铁硼具有稳定的、较低的粒度效应, 在适合制备粘结钕铁硼的粒度范围 ( $0.2\sim 0.074\text{ mm}$ ) 内, 矫顽力几乎不变化; (3) 相比较而言, 快淬钕铁硼比 HDDR 钕铁硼的粒度效应更弱, 这同它们的矫顽力机理不同有关; (4) 当

表 1 不同粒度 NdFeB 磁粉的矫顽力 kA/m

| 磁粉平均直径/mm   | 烧结 NdFeCoBaI | HDDR 各向异性 NdFeB | 快淬 NdFeB |
|-------------|--------------|-----------------|----------|
| 块体(10)      | 800          | —               | —        |
| 0.35~0.2    | 400          | 1 120           | 800      |
| 0.2~0.154   | 160          | 1 100           | 800      |
| 0.154~0.105 | 168          | 1 070           | 800      |
| 0.105~0.074 | 120          | 1 040           | 770      |
| 0.074~0.045 | 80           | 1 000           | 750      |
| <0.045      | 64           | 880             | 690      |

粉末粒度低于 0.045 mm 时, 矫顽力明显降低, 这主要和粉末变细后的表面氧化有关。

2.2 磁粉的表面缺陷层模型

首先, 分析烧结 NdFeB、快淬 NdFeB 和 HDDR 各向异性 NdFeB 的组织与磁畴结构。

烧结钕铁硼的晶粒尺寸约 5~15 μm, 并且晶粒由分布于晶界的富 Nd 相所包围, 一般认为其矫顽力机制为形核型<sup>[4]</sup>。快淬钕铁硼的晶粒尺寸约 0.1 μm, 并在晶界存在富 Nd 边界相, 其矫顽力起源于边界相处的钉扎效应<sup>[9]</sup>。HDDR 钕铁硼的晶粒尺寸约 0.3 μm, 尽管其晶界一般几乎没有晶界相, 但存在一些富 Nd 相包围多个晶粒的晶粒团 (尺寸约 1 μm), 其矫顽力被认为同大小接近单畴临界尺寸 (300 nm) 的细小晶粒有关<sup>[1]</sup>。

磁畴观察表明, 热退磁状态下, 烧结钕铁硼每个晶粒对应多个磁畴, 快淬钕铁硼由于边界相的存在基本上每个晶粒对应一个磁畴, 而在 HDDR 钕铁硼中缺少分隔晶粒的边界相, 部分磁畴对应单个晶粒, 还有部分磁畴对应多个晶粒, 这同晶粒之间的交换耦合作用有关<sup>[6]</sup>。

为了从组织和磁硬化方式角度解释 HDDR 和快淬钕铁硼磁粉粒度效应的差别, 提出了下述表面缺陷层模型。

不失一般性, 按照磁粉颗粒从外表面到内部缺陷的多少分成 3 层: 表面缺陷层、过渡层和本体部分。其结构示意图如图 1 所示。磁粉颗粒表面存在一层不完整的晶粒, 设这层非完整晶粒为表面缺陷层, 该表面缺陷层由于边界相破坏等缺陷的存在导致局部退磁场, 是反磁化最容易发生的地方。同表面缺陷层相邻的过渡层是最容易受到表面缺陷层影响的区域, 也是抵抗反磁化的薄弱环节。因此, 颗粒中各部分的永磁性能 (表现为退磁曲线包围的面积) 从内到外降低。这里近似认为整个颗粒的磁性能是上述 3 部分磁性能的线性叠加, 则如果本体部分的体积分数越大, 而表面缺陷层和过渡层的体积分数越少, 尤其是表面缺陷层的体积分数越少, 那么粉末的磁性能损失越小。

考虑到烧结钕铁硼和快淬钕铁硼存在边界富 Nd 相, 可限制磁畴进一步运动。由此可以假定它们的过渡层尺度同其晶粒大小相当; 而对于 HDDR 各向异性钕铁硼, 只是在晶粒团边界存在明显抑制磁畴运动的边界相, 可以假定其过渡层尺度和晶粒团大小相当。

按照上述基本假定, 计算了 3 种钕铁硼粉末不同颗粒尺寸时, 表面缺陷层、过渡层和本体部分 3 者各自所占磁粉颗粒的体积分数。其结果表示在表 2 中。在这里不考虑颗粒和晶粒的形状因子, 利用一维尺度的立方表示其体积。

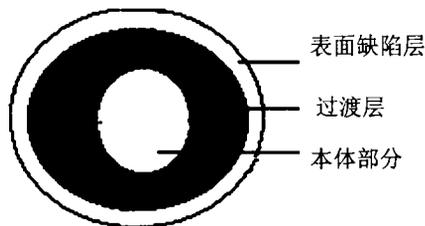


图 1 磁粉表面缺陷层模型

表 2 钕铁硼粉末的表面缺陷层、过渡层和本体部分

| 制备方式 | 颗粒大小/mm | 表面缺陷层 |      | 过渡层   |      | 本体部分    |      |
|------|---------|-------|------|-------|------|---------|------|
|      |         | 厚度/μm | φ/%  | 厚度/μm | φ/%  | 厚度/μm   | φ/%  |
| 烧结   | 0.2     |       | 14   |       | 13   | 0.18    | 73   |
|      | 0.1     | 10    | 27   | 10    | 22   | 0.08    | 51   |
|      | 0.05    |       | 49   |       | 27   | 0.03    | 22   |
| HDDR | 0.2     |       | 0.45 |       | 1.55 | 0.198 7 | 98.0 |
|      | 0.1     | 0.3   | 0.90 | 1     | 2.90 | 0.098 7 | 96.2 |
|      | 0.05    |       | 1.80 |       | 5.80 | 0.048 7 | 92.4 |
| 快淬   | 0.2     |       | 0.15 |       | 0.15 | 0.199 8 | 99.7 |
|      | 0.1     | 0.1   | 0.30 | 0.1   | 0.30 | 0.099 8 | 99.4 |
|      | 0.05    |       | 0.60 |       | 0.60 | 0.049 8 | 98.5 |

表2的结果表明,对于烧结钕铁硼,当破碎到亚毫米尺寸时其表面缺陷层体积分数已经达到整个体积的20%,矫顽力遭到严重破坏,失去作为粘结钕铁硼磁粉的可能性.对于HDDR各向异性钕铁硼磁粉和快淬钕铁硼磁粉,其表面缺陷层的体积不到整个磁粉颗粒体积的1%.然而,HDDR钕铁硼磁粉的过渡层体积远大于快淬钕铁硼的过渡层体积,这正是HDDR钕铁硼磁粉与快淬钕铁硼磁粉相比,其粒度效应比较明显和磁性对表面缺陷比较敏感的原因.

### 3 结论

(1)HDDR各向异性NdFeB磁粉的粒度效应较低而适合制备粘结磁体,但比快淬NdFeB磁粉的粒度效应显著.

(2)上述结果可以利用本文的磁粉表面缺陷层模型进行解释.本模型的要点是,磁粉颗粒从外表面到内部分成3层即表面缺陷层、过渡层和本体部分;每个磁粉的磁性能是上述3部分磁性能的叠加.

### 参考文献

- 1 Tomida T, Sono N, Uehara M. Memory Site in the Microstructure of the Decomposition Stage for HDDR Anisotropy NdFeB. *J Appl Phys*, 1997,81(11): 7170
- 2 孙爱芝,肖耀福,裘宝琴,等.  $Nd_2(Fe,Co)_{11}B/Nd_2(Fe,Co)_7$  双相HDDR磁粉的微观结构和磁特性. *金属学报*, 1996, 32(8): 872
- 3 Wei G, Zhang Z Y, Xiao Y F, et al. Anisotropy HDDR NdFeB Bonded Magnet Made by Warm Compaction Process. In: Schultz L, Muller K eds. 15th Inter Workshop on RE Magnets and their Application. Dresden, Germany: Werkstoff informationsgesellschaft mbh, 1998. 537
- 4 Livingston J D. Magnetic Domain in Sintered NdFeB Magnets. *J Appl Phys*, 1985, 57(1): 4137
- 5 Hadjipanayis G C, Chnstodoulou C N. Magnetic Hysteresis in Fe-Nd-B Powder. *J Magn Magn Mater*, 1987, 66: 390
- 6 Uehara U, Tomida T, Tomizawa H, et al. Magnetic Domain Structure of Anisotropy NdFeB based Magnets Produced via Hydrogenation Decomposition Desorption Recombination(HDDR). *J Magn Magn Mater*, 1996, 159: L304

## Granularity Effect for HDDR Anisotropy NdFeB Powder and Magnetic Powder Surface Defect Layer Model

*Liu Xubo, Xiao Yaofu, Zhang Zhengyi, Qiu Baoqin, Wang Run*

Material Science and Engineering School, UST Beijing, Beijing 100083, China

**ABSTRACT** The granularity effect for HDDR anisotropy NdFeB powder is studied. The results indicate that the granularity effect for the above powder is low and this powder adapts to preparing for bonded magnet. However, the granularity effect for HDDR anisotropy NdFeB powder is higher than melt-spun NdFeB powder. On the basis of above results, a magnetic powder defect layer model is put forward. The model considers that each magnetic powder consists of surface defect layer, transition layer and main body and that the overall magnetic properties of each magnetic powder result from the magnetic properties of the above each layer of the magnetic powder.

**KEYWORDS** HDDR; NdFeB; granularity effect; magnetic powder defect layer model