

УДК 762.8, 621.

PACS number(s): 75.50 Bb; 81.10.Fq; 81.20.Ev; 81.40.R

## ВПЛИВ ТЕРМООБРОБКИ НА СТРУКТУРУ ТА ВЛАСТИВОСТІ МАГНІТІВ СИСТЕМИ Nd-Fe-C

**В. Виставкіна, О. Васильєва**

*Запорізький державний університет,  
вул. Жуковського, 66, 69063 Запоріжжя, Україна  
e-mail: vvv@zsu.zp.ua*

Структурно-фазові перетворення в литих магнітах на базі сплаву системи Nd-Fe-C після ізотермічного відпалу в інтервалі температур 800–1 000°C досліджувалися методами рентгенівського фазового, рентгенівського спектрального та металографічного аналізу. Для отримання сплавів складу  $Fe_{70}Nd_{20}C_{9,5}B_{0,5}$  складові елементи індукційно розплавляли в атмосфері аргону. Литі магніти одержували ізотермічним відпалом злиwkів у вакуумі. Встановлено, що під час відпалів постійних магнітів Nd-Fe-C відбуваються складні процеси розчинення основних елементів, які за температури 950°C призводять до формування оптимальної мікроструктури з погляду магнітних властивостей. Показано, що зміни коерцитивної сили у разі підвищення температури відпалу корелюють зі зміною мікротвердості і розміру зерен фази  $Nd_2Fe_{14}C$ .

*Ключові слова:* мікроструктура, коерцитивна сила, залишкова індукція, розмір зерна, мікротвердість.

Збільшення обсягів виробництва та застосування постійних магнітів на основі сполуки  $Nd_2Fe_{14}B$  за останні десятиріччя зумовлено високими магнітожорсткими властивостями цієї сполуки та зниженою вартістю порівняно з магнітами на основі сплаву Sm-Co [1]. Більшість комерційних процесів виробництва магнітів типу Nd-Fe-B засновані на рідкофазному спіканні та спіннінгуванні розплаву з наступним зв'язуванням полімером або гарячим пресуванням подрібнених стрічок [2]. Обидві технології охоплюють етап обробки порошку, що значно ускладнює технологію.

Однак, на сьогодні існує дві системи, для яких вже у литому стані може бути отримана значна коерцитивна сила. Такими є системи Nd-Fe-C та Pr-Fe-B. Внутрішні магнітні властивості сполуки  $Fe_{14}Nd_2C$  схожі із властивостями  $Fe_{14}Nd_2B$  [3]. Для магнітів на основі сполуки  $Nd_2Fe_{14}C$  можна отримати вищі значення коерцитивної сили порівняно з  $Nd_2Fe_{14}B$ , але процес їх одержання ускладнюється через довготривале перетворення  $Nd_2Fe_{17}C_x \rightarrow Nd_2Fe_{14}C$  (до 20 діб) [4]. Для цієї системи можна отримати матеріал з високою коерцитивною силою після відпалу, протягом якого м'яка магнітна фаза  $Nd_2Fe_{17}C_x$  трансформується за перитектичною реакцією у фазу  $Nd_2Fe_{14}C$  [4]. Подробиці механізмів коерцитивної сили і доменної

структури в таких матеріалах все ще не досить чітко зрозумілі і є важливою ділянкою досліджень. Простота та низька вартість отримання литого матеріалу є головними перевагами магнітів такого класу. Ми досліджували можливість досягнення досить значної коерцитивної сили в литих магнітах системи Nd-Fe-C після короткотривалих ізотермічних відпалів. У статті проаналізовано мікроструктуру та магнітні властивості постійних магнітів на основі сплавів системи Fe-Nd-C залежно від режимів термічної обробки.

Для виготовлення постійних магнітів використовували сплав складу  $\text{Nd}_{20}\text{Fe}_{70}\text{C}_{9,5}\text{B}_{0,5}$ , який отримували індукційною виплавною випалкою чистих елементів в атмосфері аргону. Литі магніти виготовляли безпосереднім відпалом зливків сплаву у кварцових ампулах у вакуумі. Температура відпалу змінювалася в інтервалі  $850\text{--}1050^\circ\text{C}$ . Фазовий склад магнітів визначався за допомогою рентгенографічного аналізу, який проводили на дифрактометрі ДРОН-3М у фільтрованому Fe-K $_{\alpha}$  випромінюванні. Мікроструктура готових магнітів досліджувалася на установці EPIQUANT, використовуючи цифрову фотокамеру "Olympus C3040". Середній розмір зерен визначався методом січних. Визначення хімічного складу структурних складових проводилось методом рентгено-спектрального мікроаналізу. Детальніше мікроструктуру вивчали на установці РЕММА-2М в режимі растрового електронного мікроскопа. Вимірювали магнітні властивості на вібраційному магнітометрі з максимально прикладеним полем 5 Т. Мікротвердість досліджуваних магнітів вимірювалася за методом відновленого відбитка на пристрої ПМТ-3 шляхом вдавлювання діамантової піраміди.

Результати вимірювань коерцитивної сили і залишкової індукції ( $H_c$ ,  $J_r$ ) виготовлених у роботі литих магнітів після вакуумного ізотермічного відпалу в досліджуваному інтервалі температур показано на рис. 1.

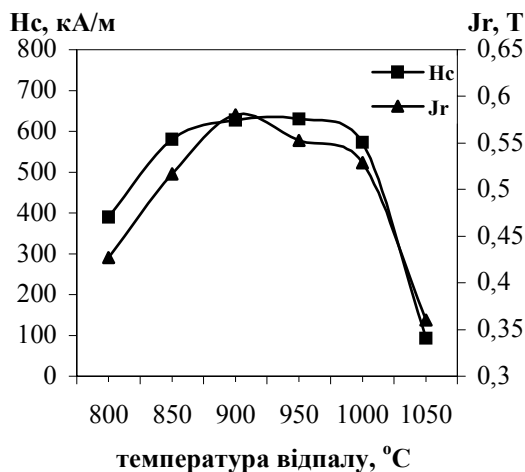


Рис. 1. Залежність коерцитивної сили та залишкової індукції від температури відпалу для магнітів складу  $\text{Nd}_{20}\text{Fe}_{70}\text{C}_{9,5}\text{B}_0$ .

Як видно з рисунка, відпал зумовлює підвищення магнітних характеристик: починаючи з 800°C спостерігається зріст  $H_c$  та  $J_r$ . Коерцитивна сила зростає до максимального значення 640 кА/м при температурі відпалу 950°C. Відпал при вищих температурах призводить до зниження магнітних властивостей. Ріст коерцитивної сили після відпалу при температурі 950°C супроводжувався невеликим спадом залишкової індукції. Залишкова індукція мала значення від 0,35 до 0,58 Т.

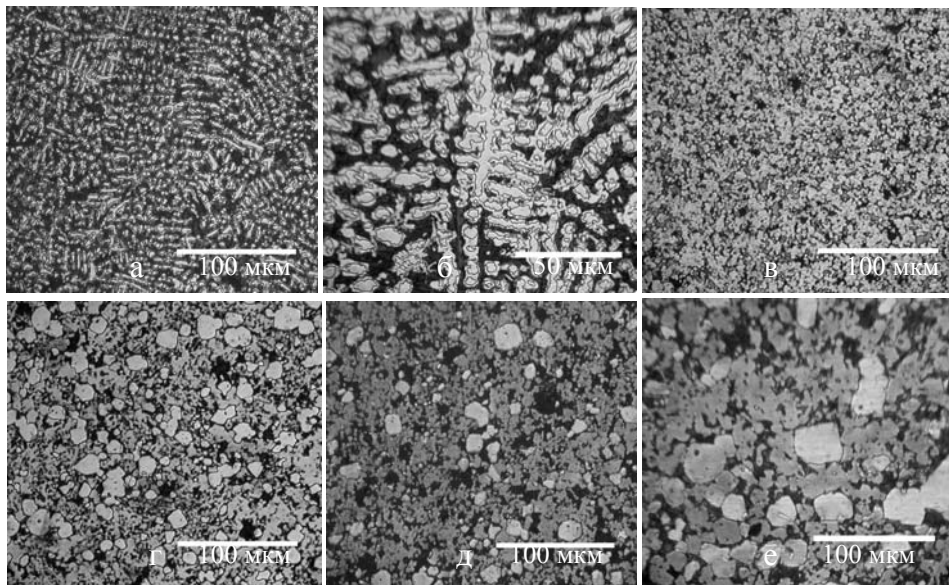


Рис. 2. Мікроструктура магнітів складу  $Nd_{20}Fe_{70}C_{9.5}B_{0.5}$  у литому стані (а, б) і після відпалу протягом 4 год при температурі: в – 850°C; г – 900°C; д – 950°C; е – 1 000°C

Відповідно до діаграми фазових рівноваг системи Nd-Fe-C [3], у сплавах досліджуваного складу можлива наявність таких фаз:  $Nd_2Fe_{14}C$ ,  $Nd_2Fe_{17}$ ,  $\alpha$ -Fe і рідка фаза, що утворює суміш фаз Fe,  $Fe_{17}Nd_2C_x$  та збагачених неодимом і вуглецем карбідів  $NdC_3$ ,  $Nd_2C_3$ , при цьому основною фазою є фаза  $Nd_2Fe_{17}$ . Карбіди, залізо, неодим та фаза  $Nd_2Fe_{17}$  кристалізуються з розплаву. Аналіз та розрахунок дифрактограм засвідчив, що в литих магнітах основними фазами є тетрагональна  $Nd_2Fe_{14}C$  (ф-фаза) та ромбоєдрична фаза  $Nd_2Fe_{17}$ . На дифрактограмах наявні дифракційні максимуми від площин цих фаз, а також для литого сплаву спостерігаються лінії, які належать фазі  $\alpha$ -Fe. Для зразків у вихідному стані (після лиття) більшість ліній ідентифікувалась як лінії фази  $Nd_2Fe_{17}$ .

За даними металографічного аналізу, досліджувані зразки мали складну структуру (спостерігалися області різного травлення). У вихідному стані магніти мають типову для литого матеріалу дрібнодисперсну структуру.

За даними рентгеноспектрального аналізу основою структури є фаза типу  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}\text{C}_x$  (зерна світло-сірого кольору), які являють собою стовбчасті кристаліти з чіткими межами, орієнтовані перпендикулярно до фронту кристалізації (рис. 2 *a, б*, рис. 3, *a*). У структурі, в середині зерен фази  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ , явно спостерігаються зерна з чіткими тонкими межами округлої форми. За даними рентгеноспектрального мікроаналізу такі зерна є частинками  $\alpha\text{-Fe}$  (рис. 3, *б*).

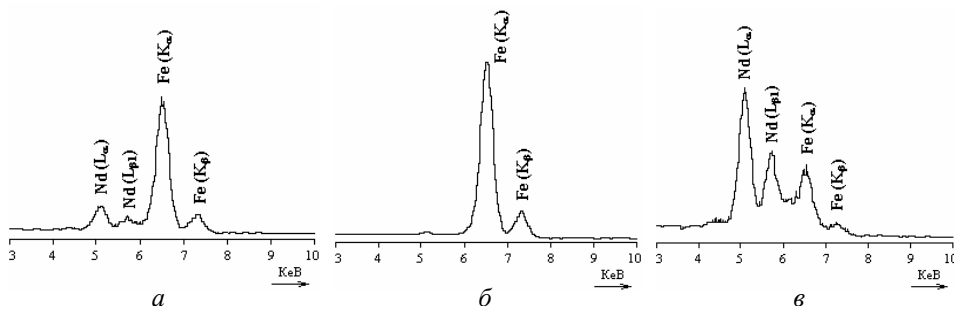


Рис. 3. Спектри характеристичного випромінювання елементів, які наявні у різних фазах литого сплаву складу  $\text{Nd}_{20}\text{Fe}_{70}\text{C}_{9,5}\text{B}_{0,5}$ : *a* – включення в середині дендритів; *б* – фаза  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ ; *в* – міжзернові області

Таблиця 1

Хімічний склад структурних складових литого сплаву складу



	Nd, ат. %	Fe ат. %	$\Delta\text{Nd}$ , ат. %	$\Delta\text{Fe}$ , ат. %
Рис. 3, <i>a</i>	1,3	98,7	0,1	1,3
Рис. 3, <i>б</i>	12,0	88,0	1,6	0,5
Рис. 3, <i>в</i>	62,0	38,0	1,5	1,5

Металографічні дослідження магнітів після відпалу свідчать, що вже при температурі відпалу  $850^\circ\text{C}$  в структурі з'являються зерна основної магнітної фази  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{C}$ . Зерна фази  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}\text{C}_x$  зменшуються у розмірах і набувають округлої форми, частинки заліза в результаті перитектичної реакції розчиняються: після відпалу вище температури  $850^\circ\text{C}$  у структурі не виявляються частинки  $\alpha\text{-Fe}$ . Оскільки після відпалу хімічний склад міжзернових областей змінився (табл. 1, 2), то можна припустити, що при підвищенні температури відпалу до  $850^\circ\text{C}$  ріст зерен ф-фази відбувається за рахунок розчинення частинок  $\alpha\text{-Fe}$  і дифузії основних елементів із міжзернового простору, так що утворюється однорідна структура, складена з дрібних зерен фаз  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{C}$  та  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$  (рис. 2, *в*). При температурі відпалу  $850^\circ\text{C}$  значення мікротвердості є максимальними для цих фаз (рис. 4, *a*), тобто обидві фази перебувають у напруженому стані, що відповідає умовам проходження реакції. Згідно з діаграмою фазової рівноваги системи Nd-Fe-C [4], фаза  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{C}$  утворюється за перитектичною реакцією  $\text{L} + \alpha\text{-Fe} + \text{Nd}_2\text{Fe}_{17}\text{C}_x \Rightarrow \text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{C} + \chi$  за температури  $850^\circ\text{C}$  (де  $\chi$  – залишок  $\text{L} + \text{Nd}_2\text{Fe}_{17}\text{C}_x$ ).

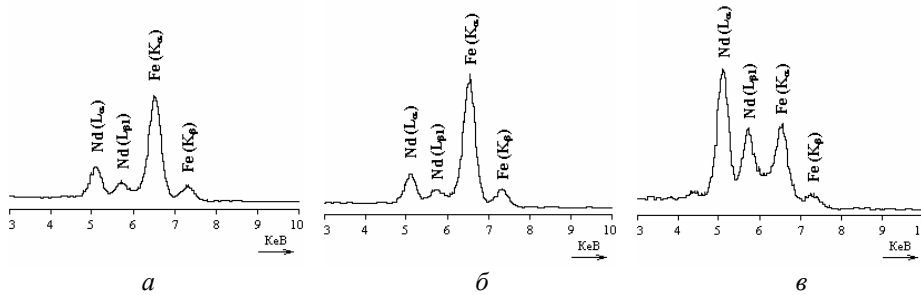


Рис. 4. Спектри характеристичного випромінювання елементів для сплаву складу  $\text{Nd}_{20}\text{Fe}_{70}\text{C}_{9,5}\text{B}_{0,5}$  після відпалу протягом 4 год. за температури  $850^\circ\text{C}$ : *a* – фаза  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{C}$ ; *б* – фаза  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ ; *в* – міжзернові області

Таблиця 2

Хімічний склад структурних складових сплаву складу  $\text{Nd}_{20}\text{Fe}_{70}\text{C}_{9,5}\text{B}_{0,5}$  після відпалу протягом 4 год за температури  $850^\circ\text{C}$

	Nd, ат. %	Fe ат. %	$\Delta\text{Nd}$ , ат. %	$\Delta\text{Fe}$ , ат. %
Рис. 4, <i>a</i>	17,9	82,1	0,7	1,8
Рис. 4, <i>б</i>	14,7	85,3	0,5	1,6
Рис. 4, <i>в</i>	55,4	44,6	1,5	1,7

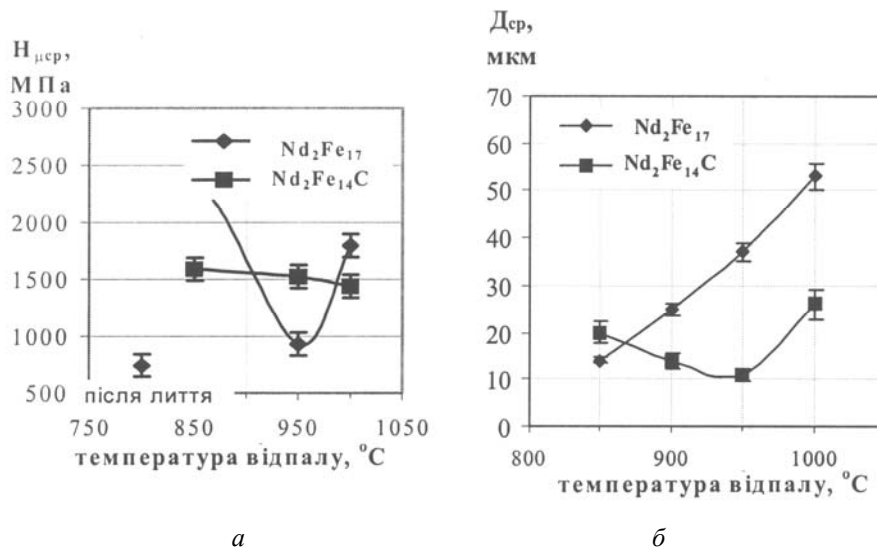


Рис. 5. Залежність мікротвердості і середнього розміру зерен фаз  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$  і  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{C}$  (*a*) від температури відпалу магнітів складу  $\text{Nd}_{20}\text{Fe}_{70}\text{C}_{9,5}\text{B}_0$  (*б*)

Підвищення температури відпалу призводить до виділення неодиму та бору з фази  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{C}$ , мікронапруги зерен зменшуються, про що свідчить збільшення меж зерен фази. Всередині зерен та на межах з'являються точкові включення.

Коерцитивна сила при цьому підвищується. Подальше підвищення температури відпалу (до 900°C) призводить до росту зерен фази  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ , але загальна кількість фази зменшується. З підвищенням температури до 950°C об'єм магнітної фази збільшується, зерна зменшуються за розмірами (рис.5, б), що приводить до збільшення коерцитивної сили після відпалу при цій температурі. Окрім основної магнітної фази  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{C}$  в структурі у невеликій кількості присутня фаза  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$  (рис. 2, д).

Подальше підвищення температури відпалу (до 1 000°C) призводить до росту зерен фази  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ , об'єм феромагнітної фази зменшується (рис. 2, е). Наявність в структурах великих зерен магнітом'якої фази сприяє виникненню полів розсіювання, що призводить до спаду  $H_c$ . Розмір зерна основної магнітної збільшується, зерна очищуються, проте об'єм зернограничних фаз не змінюється, в міжзерновому просторі візуально фіксуються пори, включення інших фаз, які можуть виступати джерелом утворення доменів зворотного знаку.

При відпалах постійних магнітів  $\text{Nd}_{20}\text{Fe}_{70}\text{C}_{9,5}\text{B}_{0,5}$  відбуваються процеси розчинення основних елементів, які спричинюють за температури відпалу 950°C утворення оптимальної структури з погляду магнітних властивостей. Збагачена неодимом фаза в основному перебуває в міжзерновому просторі і сприяє формуванню висококоерцитивного стану. Проаналізувавши мікроструктуру досліджуваних сплавів залежно від часу та температури відпалу, та знаючи відомі механізми утворення високих значень коерцитивної сили [5], можна припустити, що підвищення коерцитивної сили сплаву  $\text{Nd}_{20}\text{Fe}_{70}\text{C}_{9,5}\text{B}_{0,5}$  відбувається як за рахунок пригнічення утворення зворотних доменів, так і завдяки гальмуванню руху доменних стінок.

Отже, за рахунок оптимізації комплексу технологічних параметрів отримання та подальших термообробок магнітів (оптимізація часу і температури відпалу) можна досягнути досить значного рівня магнітних характеристик сплавів системи Nd-Fe- C.

1. *Кекало И.Б., Самарин Б.А.* Физическое металловедение прецизионных сплавов. М.: Наука, 1989. 450 с.
2. *Rob H.J. Fastenau, Evert J. van Loenen.* Applications of rare earth permanent magnets // J. of Mag. and Mag. Mater., 157/158, 1996. P. 1–6.
3. *Stadelwaier H., Elmarsy N.A., Stallard S.R.*, Alternative method of preparing high-coercivity neodymium-iron-boron magnets // J.Appl.Phys. Vol. 57. 1985. P. 4149–415.
4. *Fritz K., Reinsch B., Petzow G.* As-cast magnets in the system Nd-Fe-Cu-C-B // Proc. of 13<sup>th</sup> Int. Workshop on RE Magnets and their Application, Birmingham, UK, 1994. P. 493–501.
5. *Hadjipanayis G.C.* Nanophase hard magnets // J. of Magn. and Magn. Mater, Vol. 200. 1999. P. 373–391.

**HEART TREATMENT INFLUENCE ON MICROSTRUCTURE AND  
PROPERTIES OF Nd-Fe-C TYPE PERMANENT MAGNETS****V. Vystavkina, O. Vasil'yeva**

*Zaporozhye State University,  
Zhukovskiy str., 66, UA-69063 Zaporozhye, Ukraine  
e-mail: vvv@zsu.zp.ua*

The structure-phase transformation after heat treatment in temperature range of 800–1 000°C of cast Nd-Fe-C based permanent magnets has been investigated by XRD, EDS and metallography analyses. in present work. For Nd<sub>20</sub>Fe<sub>70</sub>C<sub>9,5</sub>B<sub>0,5</sub> alloy preparation constituent elements were induction melted under argon atmosphere. The magnets were prepared by vacuum annealing of ingots. It is established that complex processes of main element dilution are occurred after Nd-Fe-C magnets annealing. Such processes lead to optimal microstructure formation at annealing temperature of 950°C. It was shown that during annealing temperature enhancement the coercivity change correlates with Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>C phase microhardness and grain size.

*Key words:* microstructure, coercivity, remanence, grain size, microhardness.

Стаття надійшла до редколегії 19.05.2004

Прийнята до друку 21.11.2005