

УДК 762.8, 621

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

МАГНІТИ СИСТЕМИ Nd-Fe-B, АРМОВАНІ ВУГЛЕВОЛОКНОМ

О. Харитонова¹, В. Виставкіна², Г. Брехаря²

¹Дніпродзержинський державний технічний університет,
вул. Дніпробудівницька, 2, 51900 Дніпродзержинськ, Україна

²Запорізький державний університет,
вул. Жуковського, 66, 69063 Запоріжжя, Україна

Досліджено зв'язок між мікроструктурою, фазовим складом, мікротвердістю фаз і магнітними властивостями магнітів Nd-Fe-B, армованих вуглеволокном і легованих міддю. Постійні магніти хімічного складу $Fe_{76}Nd_{16}B_8$ були виготовлені і зазнали термообробки згідно з стандартною технологією. Армування вуглеволокном виконували на стадії виготовлення компакту. Металографічні дослідження довели, що до фазового складу входять основна магнітна фаза $Fe_{14}Nd_2B$, а також фаза $NdFe_4B_4$ та фаза збагачена неодимом. З'ясовано, що з ростом вмісту вуглеволокна (x_C) магнітний потік в зразках зменшується і обертається на нуль при $x_C=0,8$ ваг.%. Досліджено також вплив міді на властивості та мікроструктуру постійних магнітів. Порошок міді додавали у шихту після помолу. З'ясовано, що коерцитивна сила магнітів, виготовлених зі сплаву із додаванням міді, значно зростає і досягає значення $H_C=15$ кЄ. Найвище значення потоку та коерцитивної сили було одержано для магнітів з вмістом міді 2 ваг.%. Досліджено комплексний вплив вуглецю у вигляді вуглеволокна та міді на властивості. Вміст вуглецю 0,12 ваг.%. виявився критичним для магнітів, легованих міддю, магніти з більшим вмістом вуглецю розпалися під час спікання. Після термообробки були отримані постійні магніти з коерцитивною силою $H_C=15,8$ кЄ.

Ключові слова: армування, вуглецеве волокно, коерцитивна сила, залишкова індукція, мікроструктура.

Коерцитивна сила є важливим параметром постійних магнітів при створенні магнітних ланцюгів. Температурна стійкість (максимальна робоча температура) магніту може бути підвищена за рахунок збільшення коерцитивної сили та точки Кюрі. Втрати на намагнічування у ланцюгу можуть бути знижені, і, отже, можливо використовувати магніти менших розмірів при збільшенні коерцитивної сили. Для отримання високих значень коерцитивної сили докладено багато зусиль у світовій науці та досягнуто значного прогресу [1, 2]. Додавання важких рідкісноземельних елементів, таких як Dy, Tb, або Ho, модифікаторів границі зерна, таких як Al, Ga, або Sn, і/або тугоплавких елементів, таких як Nb, Mo, W, V, Cr, Zr, Hf, або Ti підвищує коерцитивну силу, але тільки завдяки залишковій намагніченості та енергетичному добутку [2]. Отже, потрібно розробити метод для підвищення

коерцитивної сили при збереженні достатньо високих значень залишкової намагніченості та енергетичного добутку.

У статті досліджено вплив армування вуглецевим волокном та легуванням міддю постійних магнітів, виготовлених на основі сплаву $\text{Fe}_{76}\text{Nd}_{16}\text{B}_8$. Армування вуглецем як принципово новий метод у практиці виготовлення постійних магнітів було застосовано вперше. Виявлено взаємозв'язок між мікроструктурою, фазовим складом, мікротвердістю та магнітними властивостями магнітів Nd-Fe-B.

У дослідженні були виготовлені постійні магніти на основі сплавів $\text{Fe}_{76}\text{Nd}_{16}\text{B}_8$ трьох типів: 1) сплави $\text{Fe}_{76}\text{Nd}_{16}\text{B}_8$ з додаванням вуглецю ($x_{\text{C}}=0,02-8,0$ ваг.%); 2) сплави $\text{Fe}_{76}\text{Nd}_{16}\text{B}_8$, що містять мідь без вуглецю ($x_{\text{Cu}}=1-5$ ваг. %); 3) сплави з додаванням вуглеволокна та міді. Хімічний склад магнітів, армованих вуглеволокном (без Cu), наведено у табл. 1. Для виготовлення вихідного сплаву $\text{Fe}_{76}\text{Nd}_{16}\text{B}_8$ високочисті елементи сплавилися в індукційній печі у захисній атмосфері аргону. В подальшому вихідний сплав подрібнювали у вібротліні до отримання порошку з розміром частинок менше 10 мкм. Перед пресуванням у суміш порошків додавали вуглецеве волокно (довжина 2 мм, діаметр 50 мкм). Для виготовлення магнітів, що містять мідь, на стадії пресування додавали порошок міді разом з вуглецевим волокном.

Магніти отримували за допомогою спікання орієнтованих у магнітному полі компактів при температурі 1100°C у печі з вакуумом 10^{-5} мм. рт. ст. Після спікання застосовували термообробку при температурі 530°C. Магнітні властивості вимірювали з використанням імпульсного гістерезіографу У-5056. Магнітні вимірювання були скореговані на власне розмагнічування. Мікроструктуру досліджували з використанням оптичного та скануючого електронного мікроскопа. Фазовий склад було ідентифіковано методом рентгенівської дифракції у Co-K_α випромінюванні.

Мікроструктуру виготовлених магнітів досліджували за допомогою оптичного мікроскопа. Як показано на рис. 1(а)–1(е), магніти мають багатофазну мікроструктуру. Згідно з даними рентгенівської дифракції у структурі наявні фази $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$, $\alpha\text{-Fe}$, NdFe_4B_4 та фаза, збагачена неодимом. Рівноосні зерна основної фази мають тонкі та чіткі межі. Міжзернова область є потрійною евтектикою, збагаченою неодимом. Після додавання незначної кількості вуглеволокна (0,02 ваг.%) у міжзерновому просторі з'являється фаза, яка має темно-сірий колір. Ця фаза огортає зерна основної фази і виглядає як сліди волокна. Кількість такої міжзернової фази зростає при підвищенні вмісту вуглеволокна. Межі зерен основної фази стають розмитими та нечіткими.

Виявлено, що зі зростанням вмісту вуглецю (x_{C}) магнітний потік, вимірюваний при внесенні зразка у соленоїд, знижується, і для вмісту вуглецю $x_{\text{C}}=0,8$ ваг.% потік взагалі дорівнює нулю ($W=0$). Вміст вуглецю 5,0 ваг.% виявився критичним – магніти розвалилися після спікання. Такий негативний вплив вуглеволокна на магнітні властивості може бути пояснено різницею мікроструктури вихідного сплаву та сплаву з додаванням вуглеволокна: припускається, що вуглецеве волокно перешкоджає орієнтуванню частинок під час пресування у магнітному полі та дифузія вуглецю в основну та допоміжні фази змінює тип фазової рівноваги.

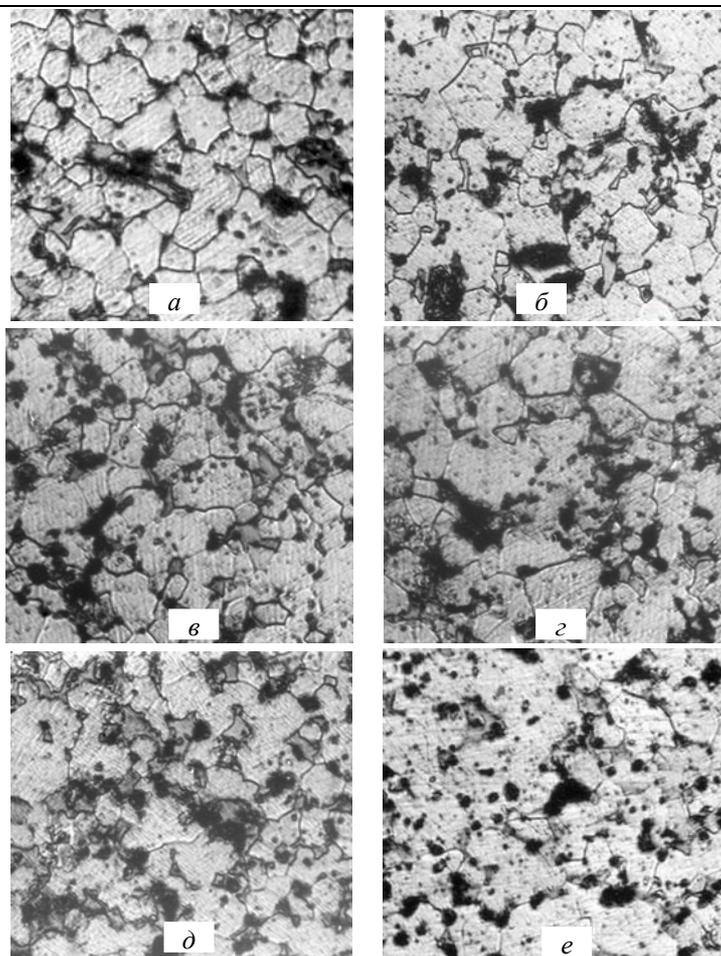


Рис. 1. Мікроструктура магнітів складу $Nd_{16}Fe_{76}B_8$, армованих вуглеволокном:
 а – вихідний сплав; б – 0,1 ваг.%; в – 0,2 ваг.%; г – 0,3 ваг.%; д – 0,4 ваг.%;
 е – 0,6 ваг. % (x120)

Таблиця 1

Характеристика магнітів, армованих вуглеволокном

Склад, ваг. %				H_c , кг/мм ²	Д, мкм	W, мкВб	
Nd	Fe	B	C			До ТО	після ТО
34,76	63,93	1,303	0	561,8	14,9	17	24
34,73	63,87	1,301	0,1	553,8	15,1	14	18
34,69	63,80	1,300	0,2	437,8	17,1	10	11
34,66	63,74	1,299	0,3	541,4	16,7	7	8
34,62	63,68	1,298	0,4	472,8	13,8	3	3
34,59	63,61	1,296	0,5	–	–	2	2
34,55	63,55	1,295	0,6	517,8	14,8	2	3
34,52	63,49	1,294	0,7	–	–	1	1

З'ясовано, що додавання міді значно поліпшує магнітні властивості. Криві розмагнічування магнітів Nd-Fe-B з додаванням незначної кількості порошку міді у вихідний сплав показані на рис. 2. Як видно з рисунка, збільшення вмісту міді призводить до поліпшення магнітних властивостей: коерцитивна сила збільшується при достатньо високому ступені прямокутності петлі гістерезису та незначному зниженні B_r (крива 2, рис. 2). Подальший зріст вмісту Cu негативно впливає на магнітні властивості. Оптимальна кількість вмісту міді становить 2 ваг.%.

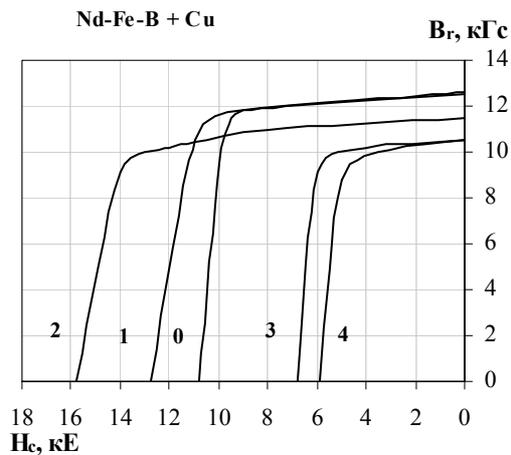


Рис. 2. Криві розмагнічування магнітів складу $Nd_{16}Fe_{76}B_8$, легованих міддю: 0 – вихідний сплав, 1 – 1 ваг.% Cu; 2 – 2 ваг.% Cu; 3 – 3 ваг.% Cu; 4 – 4 ваг.% Cu

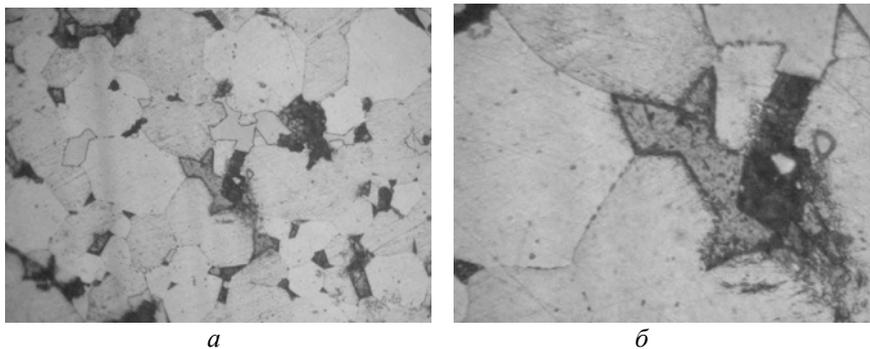


Рис. 3. Мікроструктура магнітів складу $Nd_{16}Fe_{76}B_8$ з додаванням міді 2 ваг.%. а – х 120, б – х 700

Мікроструктура виготовлених магнітів, легованих міддю, представлена на рис. 3. Як видно з рисунка, магніти мають багатофазну структуру. Згідно з даними рентгеноспектрального аналізу матрична фаза являє собою зерна $Nd_2Fe_{14}B$, її об'ємна частка становить 90%. Світлі дрібні зерна являють собою фазу $Nd_{1,1}Fe_4B_4$

(об'ємна частка – 8% від загальної кількості), а світлі зерна – фазу, збагачену неодимом. Дрібні зерна правильної геометричної форми спостерігаються у потрійних стиках матричної фази. Стосовно даних рентгеноспектрального аналізу, такі зерна мають склад $\text{Nd}_{44,68}\text{Fe}_{13,84}\text{Cu}_{38,31}$ (ат.%).

Для дослідження комбінованого впливу вуглецю та міді на мікроструктуру і властивості спечених магнітів, армованих вуглеволокном, були виготовлені магніти із вмістом міді 2 ваг.%. Кількість вуглеволокна змінювалася у діапазоні 0,02–0,2 з кроком 0,02 ваг.%. На рис. 4 показано криві розмагнічування для армованих вуглеволокном магнітів, що містять 2 ваг.% міді. Як видно з рис. 4, при збільшенні вмісту вуглеволокна значення коерцитивної сили і залишкової індукції знижуються, а також спостерігається погіршення прямокутності петлі гістерезису. Подальше підвищення вмісту вуглеволокна (з 0,08 до 0,18 ваг.%) призводить до появи перегину на кривій розмагнічування.

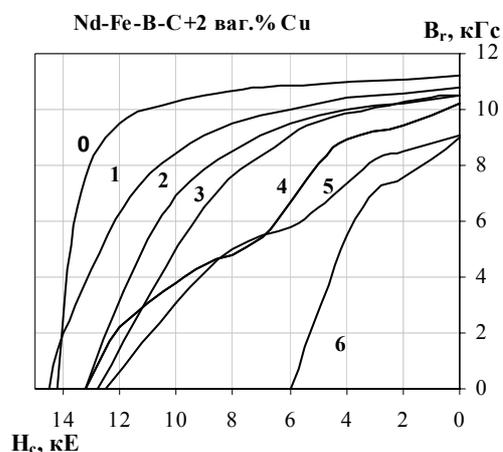


Рис. 4. Криві розмагнічування магнітів складу $\text{Nd}_{34,08}\text{Fe}_{62,67}\text{B}_{1,27}\text{Cu}_2$, армованих вуглеволокном: 0 – вихідний сплав, 1 – 0,02 ваг.%; 2 – 0,04 ваг.%; 3 – 0,06 ваг.%; 4 – 0,08 ваг.%; 5 – 0,16 ваг.%; 6 – 0,18 ваг.%

Така форма петлі гістерезису може мати місце, якщо в складі постійного магніту присутні зерна двох магнітних фаз з різними магнітними властивостями: магнітом'якої і магнітожорсткої, або зерен двох магнітожорстких фаз з різними значеннями полів магніто-кристалічної анізотропії, що орієнтовані довільно. При уважному дослідженні можна зазначити, що більша частина зерен фази $\text{Fe}_{14}\text{Nd}_2\text{B}$ має добре 120° огранення з чіткими межами. Але в місцях, де знаходилися нитки вуглеволокна, є також фаза типу $\text{Fe}_{14}\text{Nd}_2\text{B}$, форма якої не збігається з попередньою і її розміри значно менші. На основі наведених міркувань можна припустити, що в процесі спікання вуглець дифундує у матричну фазу з волокна. Та частка зерен, яка перебуває у тісному контакті з волокном, збагачується вуглецем, одночасно відбувається витіснення бору у міжзерновий простір. Як наслідок, межа зерен матричної фази стає нечіткою – розмивається. У результаті при підвищенні температури відбувається контактне плавлення в областях, що збагачені вуглецем. Температура контактного плавлення значно менша, ніж евтектична точка сплаву без домішок вуглеволокна. Кристалізація потрійної евтектики (із складом,

збагаченим вуглецем) призводить до утворення фази $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}(\text{B},\text{C})$ у міжзерному просторі у місцях контактного плавлення, водночас у структурі присутні зерна $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$. Легка вісь c зерен матричної фази $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ зберігає свою орієнтацію за напрямом прикладеного намагнічуючого поля, а нова фаза $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}(\text{B},\text{C})$ в процесі росту орієнтується віссю c довільно (рис. 5).

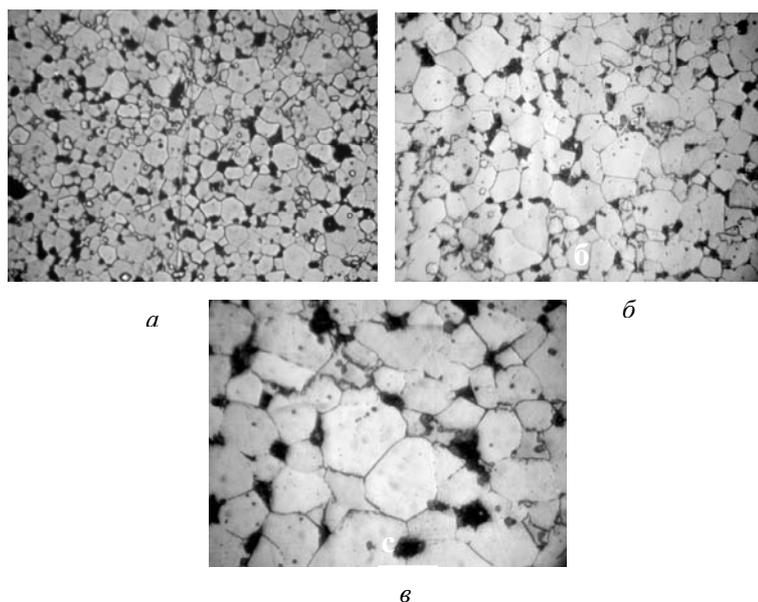


Рис. 5. Мікроструктура магнітів складу $\text{Nd}_{16}\text{Fe}_7\text{B}_8$, армованих вуглеволоконном, з додаванням 2 ваг.% Си: *a* – вихідний сплав; *б* – $\times 120$, *в* – $\times 300$

Таблиця 2
Результати вимірювання розміру зерна і мікротвердості для спечених магнітів

Зразок	Середній розмір зерна, мкм.	H_c , кг/мм ²
0	14,9	561,8
1	15,1	553,8
2	17,1	437,8
3	16,7	541,4
4	13,8	472,8
6	14,8	517,8

За результатами досліджень можна зробити такі висновки: вуглець, дифундуючи у складові фази, призводить до зниження критичних точок фазової рівноваги, тобто до утворення евтектики з низькою точкою плавлення. Присутність низькоплавкої потрійної евтектики веде до кристалізації з рідини при охолодженні фази $\text{Fe}_{14}\text{Nd}_2(\text{B},\text{C})$. Водночас, додавання міді без вуглецю веде до різкого збільшення магнітних властивостей (коерцитивної сили) з невеликим

зниженням залишкової індукції. Комбіноване додавання міді і вуглецю спричинює утворення довільно орієнтованих зерен фази $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}(\text{B},\text{C})$, окрім того у структурі присутні зерна фази $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$, які зберігають свою початкову текстуру. В результаті присутності в структурі зерен двох магнітожорстких фаз, що орієнтовані по-різному, криві розмагнічування мають перегин.

З'ясовано, що для поліпшення магнітних властивостей у вихідний сплав перед спіканням можуть бути додані мідь та вуглець разом з титаном та ніобієм у вигляді порошку. Порошки С, Ti, Nb, Cu, які при компактуванні знаходяться переважно по межах зерен основної магнітної фази, при спіканні сприяють утворенню карбідів титану та ніобію. Утворення в міжзеренному просторі парамагнітних карбідів та фази, що містить мідь, приводить до кращої ізоляції зерен фази $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ і перешкоджає утворенню фази $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}(\text{B},\text{C})$. В результаті кінцева мікроструктура магніту добре відповідає основним вимогам для отримання висококоерцитивного стану, тобто фаза $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ добре ізольована парамагнітною оболонкою. На підставі результатів досліджень зробимо висновок, що основним механізмом висококоерцитивного стану у досліджених магнітах є механізм затримки зародження доменів зворотної намагніченості.

-
1. *Croat J.J., Herbits J.F., Lee R.W., Pinkerton F.E.* Structural and magnetic properties of $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ // *J. Appl. Phys.* 1985. Vol. 57. P. 4094–4096.
 2. *Kim A., Cam F.E.* Design of high coercivity ReFeNd permanent magnets // *Proc. of 14th Int. Workshop on RE Magnets and their Applications*, 1–4 Sept., Sao Paulo, Brazil. 1996. P. 678–688.
 3. *Leonowicz M., Kaszuwara W.* Combinad effect of additive elements on the magnetic properties of Nd-Fe-B sintered magnets // *Proc. Of 14th Int. Workshop on RE Magnets and their Applications*, 1–4 sept., Sao Paulo, Brazil, P. 149–157.

CARBON REINFORCED Nd-Fe-B MAGNETS**E. Kharitonova¹, V. Vystavkina², G. Brekharya²**¹*Dneprodzerzhinsk Technical University,
Dneprostroy Str., 2, UA-51900 Dneprodzerzhinsk, Ukraine*²*Zaporozhye State University,
Zhukovskiy Str., 66, UA-69063 Zaporozhye, Ukraine**e-mail: vvv@zsu.zp.ua*

A correlation between magnetic properties of Nd-Fe-B magnets microstructure, phase composition, microhardness and impact elasticity has been established. Carbon reinforced permanent magnets with nominal composition of $\text{Fe}_{76}\text{Nd}_{16}\text{B}_8$ were produced and heat-treated according to standard technology. Multiphase microstructure was evident from metallographic studies. Metallographic studies showed that microstructure consist of matrix, NdFe_4B_4 and Nd-rich phases. It was found that with increasing carbon content (x_C) the magnetic flux measured in search coil decreases and $F=0$ for $x_C=0,8$ weight %. And carbon content of 5,0 weight % were crucible – magnets are fallen to pieces during compacting. The effect of Cu addition on the hard magnetic properties and microstructures of these type permanent magnets was investigated. Powder copper was introduced to magnets during milling stage. It was found that coercivity of magnets produced from alloy with Cu addition is considerably higher than H_c values for magnets without Cu addition. The best value of flux was reached for magnets with 2 weight % Cu additions. Carbon content of 0,12 weight % was critical for Cu-doped magnets, magnets with higher carbon content fall apart during sintering. Permanent magnets with coercivity $H_c=15,8$ kOe have been obtained after heart treatment.

Key words: reinforcing, carbon fibre, coercivity, remanence, microstructure.

Стаття надійшла до редколегії 19.05.2004

Прийнята до друку 21.11.2005