

高磁性能反向挤压纳米晶Nd-Fe-B磁片研究

岳林¹, 苏柳², 赵树国³, 方以坤⁴, 朱明刚⁴, 郑立允^{1*}

¹河北工程大学稀土永磁材料与应用河北省工程研究中心, 河北 邯郸

²邯郸市科学技术情报研究所, 河北 邯郸

³邯郸职业技术学院机电工程系, 河北 邯郸

⁴钢铁研究总院有限公司, 北京

收稿日期: 2023年9月22日; 录用日期: 2023年10月25日; 发布日期: 2023年11月3日

摘要

本文设计了一种新型的反挤压磁片模具, 系统研究了反挤压法制备的纳米晶各向异性Nd-Fe-B磁片的显微组织、结构和磁性能, 优化了磁片的反挤压成型工艺。在磁片的六个位置取样分析, 探讨了反挤压磁片的成型机制与磁性能均匀性。结果表明, 挤出高度为30 mm的磁片, 在水平方向上磁片中间样品磁性能好于侧边样品, 在垂直方向上磁片中部样品磁性能优于顶部和底部样品, 并且反挤压磁片与反挤压磁环和传统磁体有相同的异质组织特征。同时发现, 随着热压温度的提高, 磁片的最大磁能积随之减小; 随着热变形速度的增大, 磁片的最大磁能积逐渐增大; 变形量由46%增大至63%时磁片磁能积和均匀性提升明显。当热压温度为525°C、热变形温度850°C、变形速度0.07 mm/s时, 变形率为63%的磁片磁性能最好, 其 B_r 、 H_{c_j} 和 $(BH)_{max}$ 分别为12.81 kGs、10.66 kOe和38.03 MGOe。

关键词

热变形Nd-Fe-B磁体, 磁性能, 微观结构, 反向挤压

Research on High Magnetic Performance Nanocrystalline Nd-Fe-B Magnetic Sheet by Backward-Extrusion

Lin Yue¹, Liu Su², Shuguo Zhao³, Yikun Fang⁴, Minggang Zhu⁴, Liyun Zheng^{1*}

¹Hebei Provincial Engineering Research Center of Rare Earth Permanent Magnet Materials and Application, Hebei University of Engineering, Handan Hebei

²Handan Research Institute of Science and Technology Information, Handan Hebei

³Department of Mechanical and Electrical Engineering, Handan Polytechnic College, Handan Hebei

⁴Iron & Steel Research Institute Group Co., Ltd., Beijing

*通讯作者。

文章引用: 岳林, 苏柳, 赵树国, 方以坤, 朱明刚, 郑立允. 高磁性能反向挤压纳米晶 Nd-Fe-B 磁片研究[J]. 材料科学, 2023, 13(11): 941-952. DOI: 10.12677/ms.2023.1311103

Abstract

A set of novel backward-extrusion magnetic sheet molds were designed, and the microstructure, structure and magnetic properties of the nanocrystalline anisotropic Nd-Fe-B magnetic sheet prepared by backward-extrusion method were systematically studied, and the reverse extrusion molding process of magnetic sheet was optimized. The forming mechanism and magnetic uniformity of the backward-extruded magnetic sheet were explored by the samples from six positions of the magnetic sheet. The results show that the magnetic properties of the sample in the middle of the magnetic sheet with an extrusion height of 30 mm are better than those of the samples in both sides in the horizontal direction, and the magnetic performance of the sample in the middle of the magnetic sheet is better than that of the samples in top and bottom in the vertical direction. The backward-extrusion magnetic sheet has the same heterogeneous microstructure characteristics as the backward-extrusion magnetic ring and the traditional upsetting magnet. At the same time, it is found that the maximum magnetic energy products, $(BH)_{\max}$, of the magnetic sheet decreases with the increase of hot-pressing temperature. The $(BH)_{\max}$ of the magnetic sheet gradually increases with the increase of deformation speed. When the deformation amount increases from 46% to 63%, the $(BH)_{\max}$ and uniformity of the magnetic sheet is significantly improved. The magnetic sheet hot-pressed at 525°C, hot-deformed at 850°C with a deformation speed of 0.07 mm/s and a deformation rate of 63% obtain the best magnetic performance and its B_r , H_{c_j} and $(BH)_{\max}$ are 12.81 kGs, 10.66 kOe and 38.03 MGOe, respectively.

Keywords

Hot-Deformed Nd-Fe-B Magnets, Magnetic Properties, Microstructure, Backward-Extrusion

Copyright © 2023 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

钕铁硼稀土永磁材料自 1984 年由日本助友金属公司采用粉末冶金法发明以来, 经过近四十年发展, 依然是目前磁性能最好, 应用范围最广, 所占市场比例最大的稀土永磁材料[1] [2] [3]。钕铁硼磁体根据制备工艺的不同一般分为烧结磁体、粘结磁体和热压/热变形磁体 3 种。热压热变形法分为两个步骤, 热压是获得各向同性的全密度纳米晶前驱体, 热变形是在前驱体变形过程中形成 c 轴织构, 是获得各向异性纳米晶 Nd-Fe-B 磁体的有效方法之一[4]。热压/热变形磁体相对于烧结法能够在保持较高磁性能的前提下, 具有近终成形、优异的热稳定性、良好的腐蚀性和良好的力学性能等优点[5] [6] [7]。并且成型设备简单经济, 不需要外加磁场。热变形主要有两种常用的成形方式, 镦粗法和反挤压法。镦粗法主要进行圆形片状 Nd-Fe-B 磁片的制备, 在单向压制过程中, 磁体不同位置的微观结构, 取向度及性能均存在差异[8]。由于微观组织的明显差异, 有助于探索和精确控制热变形工艺。反挤压法制备目前主要用于制备 Nd-Fe-B 磁环, 现已经拥有了规模性量产并形成产业化。2012 年日本的大同电子年产量已达 1200 吨, 2018 年 2 月国内首条热压钕铁硼生产线建成, 产能达 300 吨/年[9]。小型方形钕铁硼磁片多由烧结法制备, 通常先通过烧结压制成大块的方形毛坯, 完成后由线切割加工出所需尺寸。线切割加工过的产品表面会有

一定厚度的变质层,对产品性能会有一定影响,磁通有所损失;线切割后的表面粗糙度会影响整体品质外观。本文设计了一种新型的反挤压磁片模具,制备并系统研究了反挤压 Nd-Fe-B 纳米晶各向异性磁片的显微组织、结构和磁性能,优化了磁片的反挤压成型工艺。

2. 实验材料与方法

实验使用的原料是名义成分 $\text{Nd}_{29.1}\text{Pr}_{0.2}\text{Fe}_{63.66}\text{Co}_{5.5}\text{Ga}_{0.5}\text{Dy}_{0.01}\text{B}_{0.87}$ 的商用 MQU-F1 快淬磁粉,将 Nd-Fe-B 磁粉放入涂有二硫化钼作为脱模剂的硬质合金热压模具,放入真空热压烧结炉中,置于感应线圈中央位置,采用感应加热同时加热和加压的方式,在热压温 525°C 、 550°C 、 575°C ,成型压力 150 MPa 下获得各向同性热压 Nd-Fe-B 毛坯;将毛坯置于硬质合金变形模具中,在 0.03 mm/s、0.05 mm/s、0.07 mm/s 的热变形速率, 850°C 热变形温度并在氩气保护的条件下进行反挤压变形,通过调控热压温度,热变形速率、变形量制备出了不同工艺参数的反挤压 Nd-Fe-B 磁片,并对制备的磁片不同位置进行磁性能和组织结构的测试与分析。

使用的 JEOLJSM7001 型扫描电子显微镜,对制备的 Nd-Fe-B 磁片样品的微观形貌变化情况进行分析。使用 X'Pert PRO (panalytical) 型 X 射线衍射仪对 Nd-Fe-B 磁环样品的相组成、晶体结构、晶粒尺寸以及织构强度等进行分析。样品进行 X 射线衍射分析采用的靶材为 Cu 靶,扫描的角度范围是 $20^\circ\sim 80^\circ$,扫描速度 $2^\circ/\text{min}$ 。用电火花线切割机切下直径为 6 mm 的小圆柱,表面打磨后使用 PM-1 脉冲充磁机进行充磁,采用 NIM-6200C 永磁精密测试仪进行磁性能测试,获得退磁曲线、磁滞回线和磁性能。

3. 结果与讨论

图 1 为设计的一套新型反向挤压片状磁体的模具示意图,包括热压和热变形两步,如图 1(a)为热压前后的模具示意图,图 1(b)为热变形前后的模具示意图,图 1(c)为反挤压模具模套示意图。热压模具正方形模腔四角设计了半径为 5 mm 的倒角,以减小热压时的摩擦力,并且获得的热压前驱体为四周倒圆角方体,在后续的热变形中也可在四周倒角的热变形模具内腔中进行反向挤压时减小摩擦力和应力集中,延长模具的使用寿命,减小制品的裂纹,压柱与坯料接触的端面进行了倒角处理,以减小摩擦和裂纹。

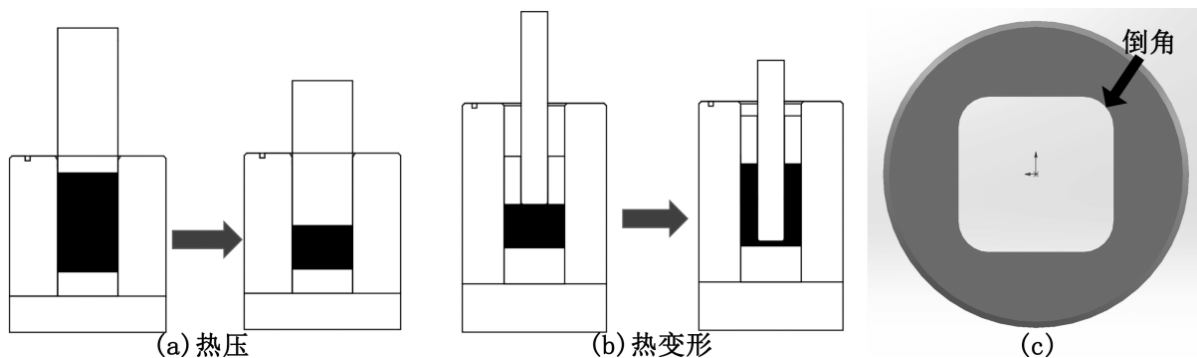


Figure 1. Schematic diagram of backward-extrusion magnetic sheet process and mold, hot pressing (a), hot deformation (b), backward-extrusion die sleeve schematic diagram (c)

图 1. 反挤压磁片流程及模具示意图,热压(a),热变形(b),反挤压模套示意图(c)

最大磁能积 $(BH)_{\max}$ 是磁体磁性能的综合体现,因此以对 $(BH)_{\max}$ 的影响作为主要依据,设计不同工艺参数的实验方案进行实验,并在磁片的 MM 位置样品(见图 2(a))进行磁性能测试,工艺及结果见表 1。其中变形量由断面缩减率 ε_A 计算公式(1)得出,如下:

$$\varepsilon_A = (A_0 - A_1) / A_0 \times 100\% \quad (1)$$

式中, A_0 ——挤压变形前毛坯的横断面积;

A_1 ——挤压变形后挤压件的横断面积。

通过减小变形后磁片的横断面积(即磁片厚度)以提高反挤压磁片的变形量。

Table 1. Results of the different process experiments

表 1. 不同工艺实验结果

序号	热压温度/°C	热变形温度/°C	热变形压速/mm/s	变形量	$(BH)_{\max}$ (MGOe)
BE1	525	850	0.05	46%	32.74
BE2	550	850	0.05	46%	30.49
BE3	575	850	0.05	46%	24.01
BE4	525	850	0.03	46%	29.08
BE5	525	850	0.07	46%	33.94
BEG	525	850	0.07	63%	38.03

3.1. 磁片磁性能均匀性研究

由于磁片的对称结构,如图 2(a)所示对磁片的六个位置取样进行磁性能测试和组织结构表征,表 2 给出了热压温度 525°C、热变形温度 850°C、热变形速率 0.07 mm/s、变形量 46%的磁片不同位置取样的磁性能。图 2(b)和图 2(c)分别为磁片不同位置样品的退磁曲线和 XRD 图谱。在水平方向上,整体上磁片中间样品磁性能好于两侧样品;在垂直方向上,磁片中部样品磁性能优于顶部和底部。

Table 2. Magnetic properties of samples at different positions of magnetic sheets with hot pressing temperature of 525°C, hot deformation temperature of 850°C, hot deformation rate of 0.07 mm/s and deformation of 46%

表 2. 热压温度 525°C、热变形温度 850°C、热变形速率 0.07 mm/s、变形量为 46%的磁片不同位置样品的磁性能

位置	B_r (Gs)	H_{cj} (kOe)	$(BH)_{\max}$ (MGOe)	退磁曲线方形度
ST	9.16	11.36	17.99	0.344
SM	11.13	9.97	27.34	0.571
SB	8.65	8.83	14.77	0.529
MT	10.23	10.92	22.67	0.372
MM	12.44	10.10	33.94	0.740
MB	9.16	8.40	15.66	0.440

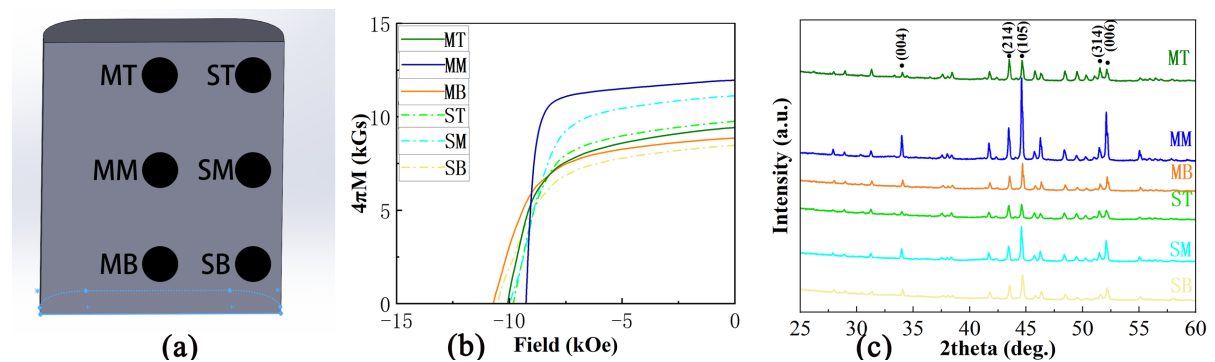


Figure 2. The position (a) and demagnetization curve (b) and XRD diagram (c) of 6 samples on the magnetic sheet with hot pressing temperature 525°C, hot deformation temperature 850°C, hot deformation rate of 0.07 mm/s, deformation of 46%

图 2. 热压温度 525°C、热变形温度 850°C、热变形速率 0.07 mm/s、变形量为 46%的磁片上 6 个样品的位置(a)及其退磁曲线(b)和 XRD 图(c)

热压/热变形法包括两个步骤, 首先将快淬钕铁硼磁粉在高温下施加压力得到具有纳米晶的全密度钕各向同性钕铁硼先驱体, 热变形即是对已经致密化的磁体加热到一定温度在惰性气体保护下施加压力, 使 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 晶粒沿着与压力垂直的方向扩散析出, 形成具有 c 轴织构的各向异性磁体, 磁体显示出由粗晶区(CG区)和细晶区(FG区)组成的异质显微组织, 这已被广泛报道[10] [11]。磁各向异性是在形变过程中形成的, 等轴晶粒转变为片状晶粒, 片状晶粒沿压力方向取向, 形成织构, 有利于材料的磁性能[12]。

由图 2(b)和表 2 可以观察到, 反挤压磁片在水平方向(垂直于压力方向)上中间样品磁性能要好于侧边样品, 以磁片的 SM 和 MM 样品为例进行对比分析, 从图 2(c)可以看出, MM 和 SM 样品的代表 Nd-Fe-B 磁环织构强度的(105)衍射峰和(006)衍射峰的衍射峰强度均为最强峰, 代表热变形磁体的晶体完成择优取向形成了一定的织构, 并且 MM 样品的(105)峰和(006)峰的衍射峰强度明显高于 SM 样品, 通过测定反挤压磁片中 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 主相(006)衍射峰和(105)衍射峰强度的比值, 用来定量的描述(00L)织构 c 轴取向的程度以便于对比, MM 样品 $I_{(006)}/I_{(105)} = 0.593$, 而 SM 样品的 $I_{(006)}/I_{(105)} = 0.555$, 说明中间相对于两侧有着更好的织构。从图 3(a)和图 3(c)可以观察到明显的异质结构组织的分布, MM 样品中异质组织与压力方向基本呈直线平行分布, 而 SM 样品则存在一定的弧度取向稍差, 并且有着更大的富 Nd 相聚集, 这对磁性能有着一定的损害。图 3(d)中可以观察 MM 样品到晶粒已经全部转变为片状晶粒, 且已经形成良好的织构, 与压力方向平行排列, 图 3(b)中 SM 样品除了片状晶粒外还有部分未变形的粗大等轴晶粒, 并且其片状晶粒长度较 MM 样品明显更短, 因而其剩磁和磁性能较中间较差, 这与 XRD 的结果相互印证。磁片水平方向上, 中间样品磁性能优于两侧可能与模具两侧有着半径为 5 mm 的倒角, 导致其变形过程中两侧应力相对于中间较小因而导致晶粒变形不充分, 且难以取向有关, 因此磁性能稍差。

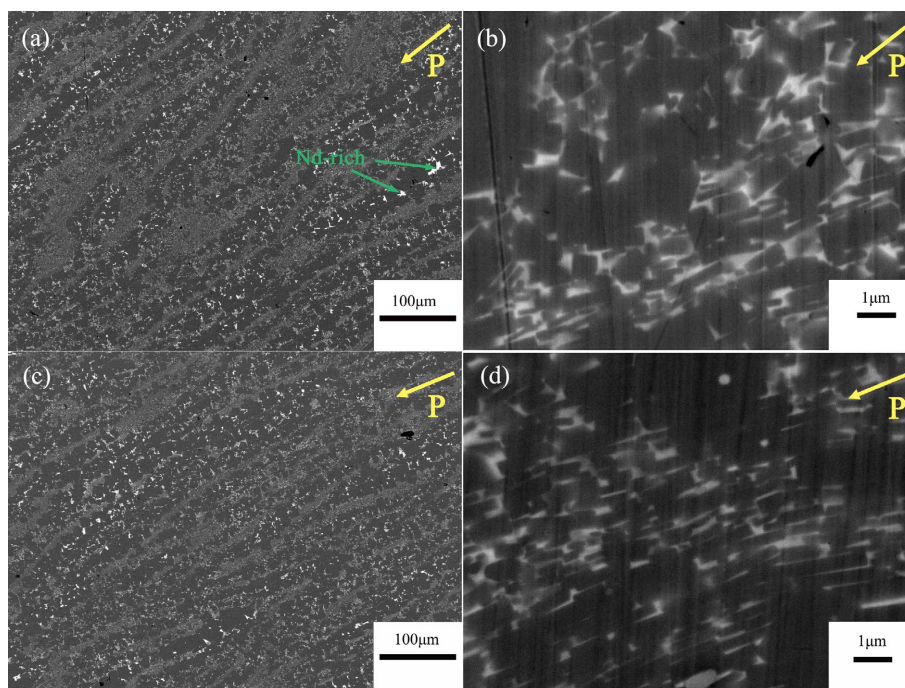


Figure 3. Cross-sectional SEM images of magnetic sheet SM (a, b) and MM (c, d) under hot pressing temperature of 525°C, hot deformation temperature of 850°C, hot deformation rate of 0.07 mm/s, and deformation of 46%

图 3. 热压温度 525°C、热变形温度 850°C、热变形速率 0.07 mm/s、变形量为 46%下磁片 SM (a, b)和 MM (c, d)的断面 SEM 照片

垂直方向(平行于压力方向)上, 磁片中部样品的磁性能要优于顶部和底部, 以磁片垂直方向上的 MT、

MM、MB 三个位置进行分析。从图 4(a)可以观察到磁片 MT 样品异质组织分布呈现弧状分布,并未按压力方向呈直线水平分布,并有较多富 Nd 相聚集,从图 4(b)中观察到只有少量片状晶粒且长度较小,大部分为等轴晶粒或球状,这可能是由于这变形初期在较小应力,使得只有少量晶粒转变为片状晶粒,坯料有较大的流动性导致异质组织和晶粒取向较差并未形成良好的织构。随着变形的进行,坯料所处高温时间更长,晶粒尺寸有所增大,变形抗力逐渐增加,坯料流速变慢,变形更加充分均匀,从图 4(c)可以观察到异质组织基本沿压力方向呈水平分布,图 4(d)中可以观察到晶粒已经全部转变为片状晶粒并且片状晶粒细长,晶粒与压力方向平行排列,已经形成良好的织构。在变形的后期,变形抗力增大,坯料流速缓慢,从图 4(e)看出 MT 样品的异质组织沿压力方向直线分布,说明较慢的流速有利于组织的取向,从图 4(f)中观察发现,MB 样品大部分晶粒已经变得粗大,这与未变形的坯料在高温下已经经历过长时间,晶粒在变形前就会长大,较粗的颗粒更加难以变形成为片状晶粒有关,以上原因导致剩磁和磁能积下降。从图 2(c)的 XRD 图谱分析表明,反挤压的主相为 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相。对于反挤压磁片的 MM 样品,从(006)和(105)的明显更强的衍射峰

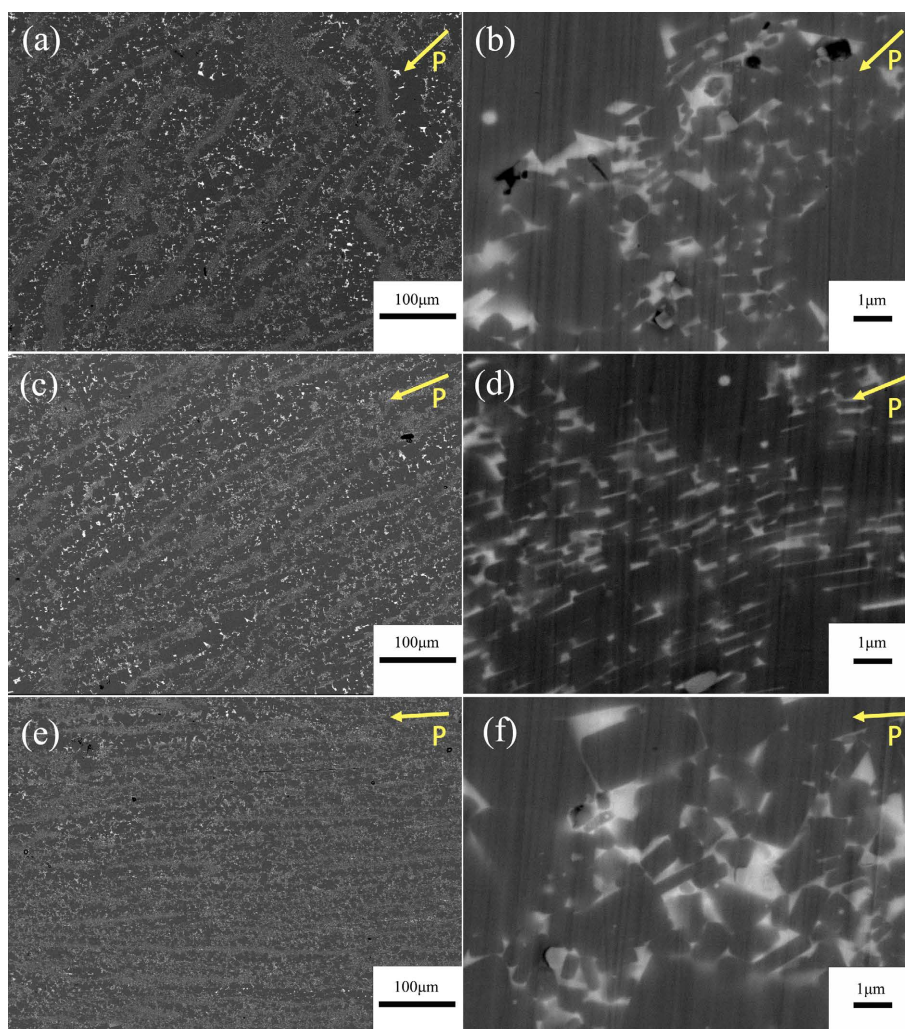


Figure 4. Cross-sectional SEM images of magnetic sheet MT (a, b), MM (c, d), MB (e, f) under hot pressing temperature of 525°C, hot deformation temperature of 850°C, thermal deformation rate of 0.07 mm/s, and deformation of 46%

图 4. 热压温度 525°C、热变形温度 850°C、热变形速率 0.07 mm/s、变形量为 46%下磁片 MT (a, b), MM (c, d), MB (e, f) 的断面 SEM 照片

可以推断具有更强的c轴织构, MM明显强于MT和MB样品,且MM样品 $I_{(006)}/I_{(105)} = 0.593$ 。磁片MT样品的(006)和(105)峰已经略低于(214)和(314)峰,其 $I_{(006)}/I_{(105)} = 0.537$,说明变形初期,晶粒在小的变形量和大的坯料流动速度下取向较差,排列较为“杂乱”,织构较差。磁片底部MB样品(006)和(105)峰虽为最强峰,较与中间MM样品强度已经大幅降低,并且相对于(214)和(314)峰增强要小于MM样品,其 $I_{(006)}/I_{(105)} = 0.522$,说明织构变差。这应该与底部MB样品在变形前所处高温时间较长,晶粒在变形前已有大部分变粗大,粗大晶粒难于变为片状晶粒,只有部分等轴晶转变为片状晶粒择优取向,因而织构变差。

3.2. 热压温度对磁体的影响

图5为不同热压温度、热变形温度850℃、热变形速率0.05 mm/s、变形量为46%时反向挤压制备的磁片MM位置样品退磁曲线和XRD图谱,其磁性能如表3所示。

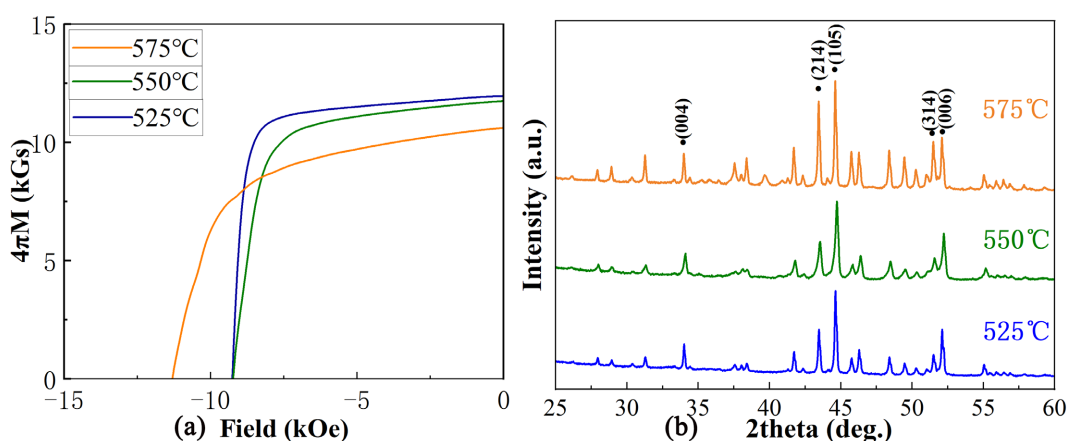


Figure 5. Demagnetization curve (a) and XRD pattern (b) of magnetic sheet MM samples at different hot pressing temperatures with hot deformation rate of 0.05 mm/s, hot deformation temperature of 850℃ and deformation of 46%

图5. 热变形速率0.05 mm/s、热变形温度850℃、变形量为46%时不同热压温度下磁片MM样品的退磁曲线(a)及XRD图谱(b)

Table 3. Magnetic properties of magnetic sheet MM samples at different hot pressing temperatures with a hot deformation rate of 0.05 mm/s, a hot deformation temperature of 850℃, and a deformation of 46%

表3. 热变形速率0.05 mm/s、热变形温度850℃、变形量为46%时不同热压温度下磁片MM样品的磁性能

热压温度/℃	B_r (Gs)	H_{cj} (kOe)	$(BH)_{max}$ (MGOe)	达到理论密度百分比/%
525	11.96	9.27	32.74	98.9
550	11.75	9.24	30.49	99.1
575	10.16	11.31	24.01	99.5

从图5和表3中可以看出,在热压温度为525℃制备的磁片,再经过热变形后,尽管致密性较差,但磁性能要优于550℃和575℃热压下的磁片。其 $(BH)_{max}$ 达到32.74 MGOe, B_r 为11.96 Gs, H_{cj} 为9.27 kOe。热压温度影响压坯晶粒尺寸和致密性,继而影响压坯的塑性变形能力,并影响着热变形磁体织物的形成。

由于热变形过程中是单轴变形,较细的晶粒在变形后由热压材料中的球状转变为片状,这种纹理发展的机制已经在之前讨论过[13] [14],相比之下,较粗的颗粒难以改变其形状。图6为热变形速率0.05 mm/s、热变形温度850℃、变形量为46%时不同热压温度下磁片MM样品的断面SEM照片,由图6可

以发现,随着热压温度的升高,热变形的晶粒在逐渐增大,当热压温度为 525℃时(图 6(a))样品的大部分晶粒为细长的片状,取向较好,少部分晶粒为等轴晶或小球状且大部分尺寸较小;图 6(b)中较大的等轴晶占较大比例,部分片状晶粒长度较小,厚度较厚;当热压温度增大到 575℃时晶粒尺寸在热变形前已经较为粗大,图 6(c)可以观察到大量的粗大等轴晶粒未发生变形。

根据图 5(b)中的 XRD 分析发现,在 575℃热压温度下,代表织构强度的(006)和(105)衍射峰虽强但几乎与(314)和(214)衍射峰持平,其(006)衍射峰和(105)衍射峰强度的比值也较低为 $I_{(006)}/I_{(105)} = 0.457$,说明磁体织构较差,这与大量晶粒未从球状转变为片状有关。525℃热压时的 $I_{(006)}/I_{(105)} = 0.583$,而 550℃时 $I_{(006)}/I_{(105)} = 0.570$,低于 525℃,这表明 525℃热压时(00L)织构强度强于 550℃热压时的织构强度,这一现象很好的解释了 525℃热压的磁片剩磁和磁能积高于 550℃热压时的原因。说明在 525℃热压时磁体已经拥有足够的致密度和较小的晶粒尺寸,有利于在后续热变形时达到更好的磁性。

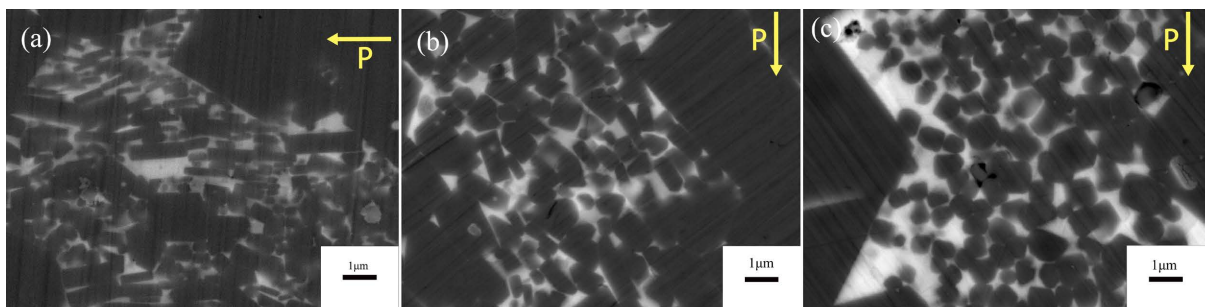


Figure 6. Cross-sectional SEM images of magnetic sheet MM samples at different hot pressing temperatures with a hot deformation rate of 0.05 mm/s, a hot deformation temperature of 850℃, and a deformation of 46%: (a) 525℃, (b) 550℃, (c) 575℃
图 6. 热变形速率 0.05 mm/s、热变形温度 850℃、变形量为 46%时不同热压温度下磁片 MM 样品的断面 SEM 照片: (a) 525℃, (b) 550℃, (c) 575℃

3.3. 变形速率对磁体的影响

图 7 为热压温度 525℃、热变形温度 850℃、变形量为 46%、不同热变形速率反向挤压制备磁片的 MM 样品退磁曲线和 XRD 图谱,其磁性能如表 4 所示。

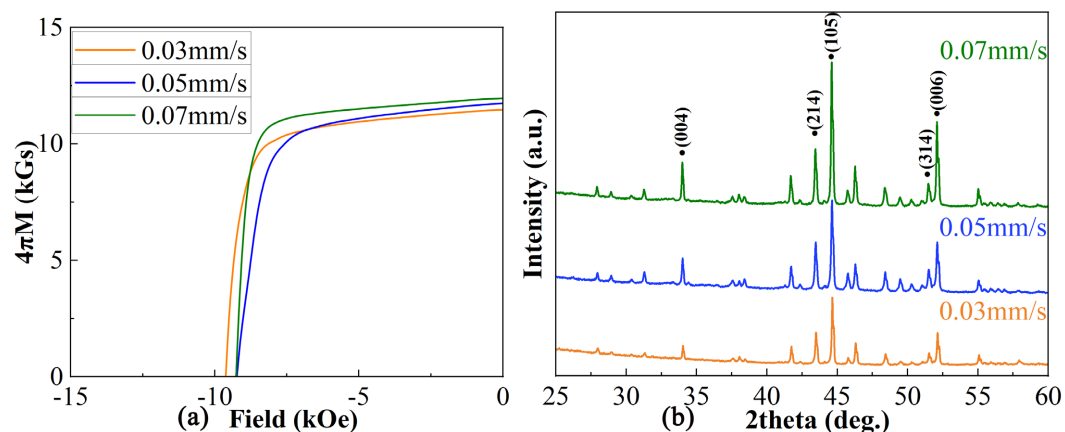


Figure 7. Demagnetization curve (a) and XRD pattern (b) of magnetic sheet MM samples at different hot deformation rates with hot pressing temperature of 525℃, hot deformation temperature of 850℃ and deformation of 46%

图 7. 热压温度 525℃、热变形温度 850℃、变形量为 46%时不同热变形速率下磁片 MM 样品的退磁曲线(a)及 XRD 图谱(b)

Table 4. The magnetic properties of magnetic sheet MM samples at different hot deformation rates with hot pressing temperature 525°C, hot deformation temperature 850°C and deformation of 46%

表 4. 热压温度 525°C、热变形温度 850°C、变形量为 46% 时不同热变形速率下磁片 MM 样品的磁性能

变形速率/mm ⁻¹	B_r (kGs)	H_{cj} (kOe)	$(BH)_{max}$ (MGOe)	热变形时间/s
0.03	11.47	9.62	29.08	300
0.05	11.96	9.27	32.74	210
0.07	12.44	10.10	33.94	180

可以发现随着热变形速率的提升剩磁和磁能积也随之增加。当热变形速率为 0.03 mm/s 时, 变形时间较长为 300 s, 从图 8(a)可以观察到已有大量粗大晶粒的出现, 这是因为过慢的变形速率下, 变形时间较长, 晶粒在高温下时间过长致使大量粗大晶粒的出现, 粗大晶粒难以向片状晶转变并择优取向, 导致其剩磁和磁能积较低。速率增加至 0.05 mm/s 时, 热变形时间也减少至 210 s, 图 8(b)可以观察到粗大晶粒明显减少, 大部分为细长的片状晶粒, 取向较好, 以及部分尺寸较小的等轴晶粒, 因为剩磁和磁能积有所提高。变形速率加快至 0.07 mm/s 时, 热变形时间减少至 180 s, 晶粒在高温中时间内更短, 晶粒受高温影响小, 较小的晶粒容易转变为片状晶, 从图 8(c)可以观察到, 晶粒已经全部转变为片状晶粒并且片状晶粒细长, 晶粒排列良好, 说明已经形成良好的织构。因而磁片随着热变形速率的增加其剩磁和磁能积在逐渐增大。

分析图 7(b)中的 XRD 发现, 热变形速率为 0.07 mm/s 时(006)和(105)衍射峰明显强于热变形速率为 0.03 mm/s 和 0.05 mm/s 时, 其 $I_{(006)}/I_{(105)} = 0.593$ 。而热变形速率为 0.03 mm/s 和 0.05 mm/s 磁性能相近, XRD 差异不明显, 以(006)衍射峰和(105)衍射峰强度的比值来对比, 热变形速率为 0.03 mm/s 时 $I_{(006)}/I_{(105)} = 0.562$, 而 0.05 mm/s 时 $I_{(006)}/I_{(105)} = 0.583$ 表明热变形速率为 0.05 mm/s 时磁片的织构好于 0.03 mm/s 时。

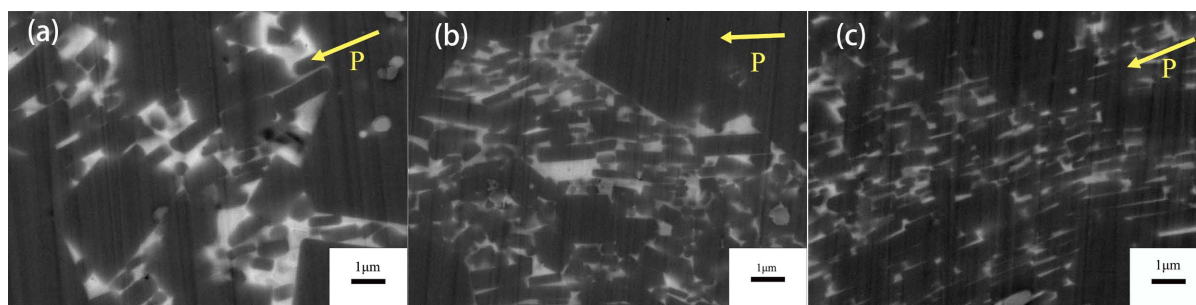


Figure 8. Cross-sectional SEM images of magnetic sheet MM samples at different hot deformation rates with hot pressing temperature 525°C, hot deformation temperature 850°C, and deformation of 46%: (a) 0.03 mm/s, (b) 0.05 mm/s, (c) 0.07 mm/s

图 8. 热压温度 525°C、热变形温度 850°C、变形量为 46% 时不同热变形速率下磁片 MM 样品的断面 SEM 照片:(a) 0.03 mm/s, (b) 0.05 mm/s, (c) 0.07 mm/s

3.4. 变形量对磁体的影响

蒋红刚等[15]研究了不同变形量对磁环磁性能均匀性的影响发现, 随着变形量增加, 磁体径向(垂直模压方向)表面和中心磁性能差异及轴向(平行模压方向)上下磁性能差异均是先减小后增大, 变形量为 63% 时, 磁体已较为均匀。雷颖劫等人[16]对锻造粗热变形工艺进行了系统性探究发现, 对变形量 55%, 65%, 75% 的进行了研究发现过低的变形量晶粒变形不充分, 过高的变形量会导致粗大晶粒的出现, 因此通过改变模具压柱的宽度来增大热变形的变形量, 与修改前制备的反挤压磁片的磁性能及均匀性进行了对比, 修改前变形量为 46%, 修改后变形量为 63%, 表 5 为热压温度 525°C、热变形温度 850°C、热变形速率

0.07 mm/s、变形量为 63%时磁片不同位置样品磁性能，由表 5 可知，磁片各位置样品磁性能均有明显的提高，磁片不同位置样品最大磁能积差距由 56.48%降低至 40.78%，均匀性有了明显的改善。

Table 5. The magnetic properties of the magnetic sheet at different positions are 525°C, the hot deformation temperature is 850°C, the hot deformation rate is 0.07 mm/s, and the deformation is 63%

表 5. 热压温度 525°C、热变形温度 850°C、热变形速率 0.07 mm/s、变形量为 63%时磁片不同位置磁性能

位置	B_r (kGs)	H_{cj} (kOe)	$(BH)_{max}$ (MGOe)	退磁曲线方形度
ST	10.84	9.12	25.93	0.721
SM	12.69	9.27	35.02	0.805
SB	8.24	10.77	22.52	0.695
MT	11.05	8.87	27.11	0.686
MM	12.81	10.66	38.03	0.870
MB	11.66	10.66	31.51	0.766

图 9 为热压温度 525°C、热变形温度 850°C、热变形速率 0.07 mm/s、变形量为 63%反挤压磁片不同位置样品的退磁曲线和 XRD 图谱，由图 9(a)可知，与变形量为 46%的样品有着类似的规律，变形量增大到 63%后，磁片各位置样品的退磁曲线方形度都更好。

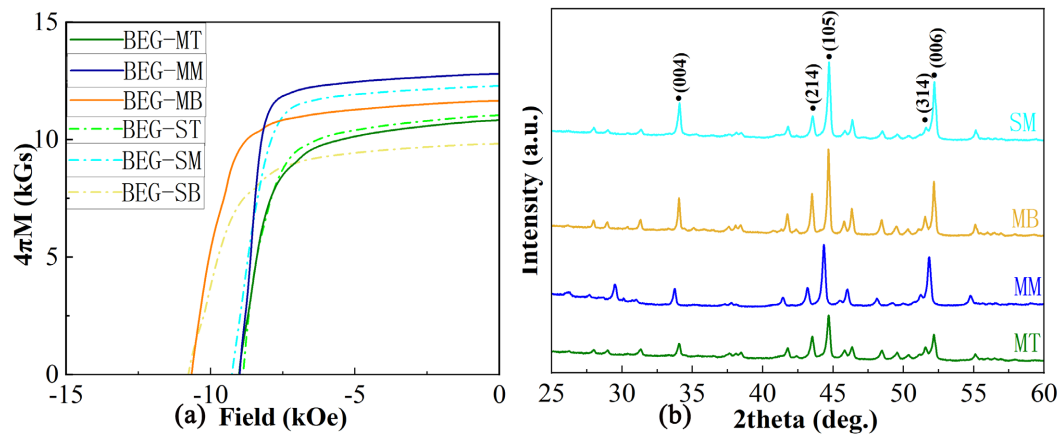


Figure 9. Demagnetization curves (a) and XRD patterns (b) at different positions of magnetic sheet at hot pressing temperature of 525°C, hot deformation temperature of 850°C, hot deformation rate of 0.07 mm/s and deformation of 63%

图 9. 热压温度 525°C、热变形温度 850°C、热变形速率 0.07 mm/s、变形量为 63%时磁片不同位置样品退磁曲线(a)和 XRD 图谱(b)

图 10 为热压温度 525°C、热变形温度 850°C、热变形速率 0.07 mm/s、变形量为 63%时磁片中间垂直方向上的 MT、MM、MB 三个位置和 SM 位置样品的断面形貌 SEM 图，与变形量增大前(图 2)形貌有着类似的规律。图 10(a) MT 样品多为较小的未变形的球状晶粒但与增大前相比球状晶粒更小且相比之下有更多晶粒转变为片状；图 10(b) MM 样品则几乎全部转变为细长的片状晶粒，与增大前相比片状晶粒明显更加细长晶粒取向更好；图 10(c) MB 样品则有较多粗大晶粒的出现但与增大前相比片状晶依然占有较大比例。图 10(d)的 SM 样品与变形量改变前相比晶粒也几乎全部转变为片状晶粒，而之前仅有部分变形为片状，但与变形量增大后的 MM 样品相比，短小的片状晶占得比例更大，MM 样品的片状晶在整体上更为细长，因此剩磁和磁能积稍高于 SM 样品。可以观察到整体上磁片各个位置样品的晶粒相较于变形量

增大前均有明显的减小。

由图 9(b) 中发现, MT 样品的(105)和(006)峰明显较弱, 并且相对于(214)和(314)衍射峰强度较小, SM 和 MM 样品的(314)峰几乎消失, (105)和(006)峰相对于(214)和(314)衍射峰强度明显更强, 并且(006)峰更接近(105)峰, 说明晶粒更多的沿(006)方向生长, 织构更好; 磁片 MB 样品(105)和(006)峰相对于(214)和(314)衍射峰强度明显强于顶部, 但相对于中间较弱。至于 MM 样品的 $I_{(006)}/I_{(105)} = 0.780$, SM 样品 $I_{(006)}/I_{(105)}$ 则为 0.752, 与变形量增大前工艺相同的磁片 MM 样品的 $I_{(006)}/I_{(105)} = 0.593$ 相比有着明显的提高, 因而织构明显更好, 与微观结构显示的结果一致。

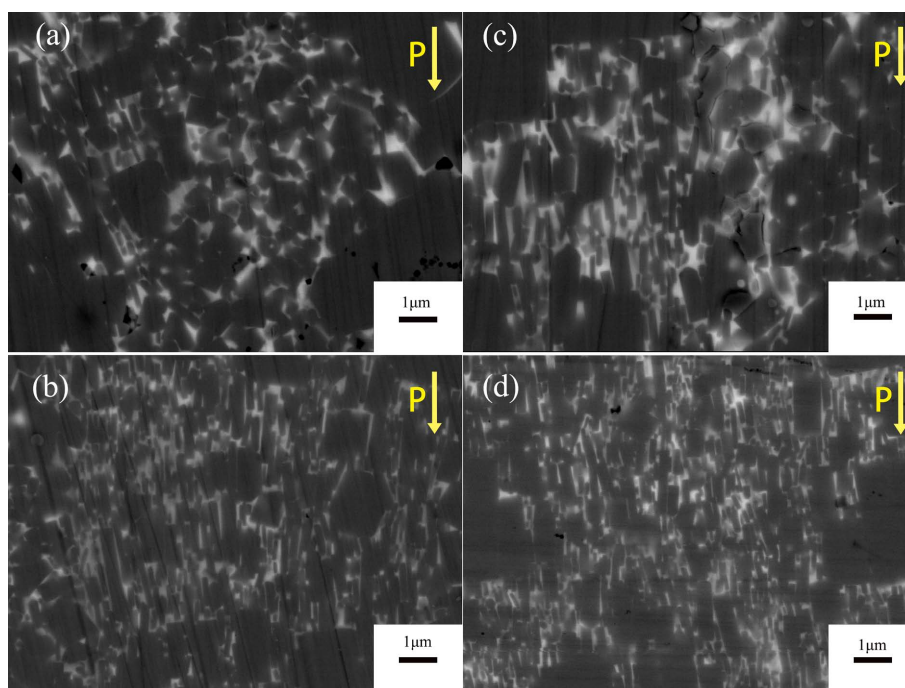


Figure 10. Cross-section SEM images of magnetic sheet at hot pressing temperature 525°C, hot deformation temperature 850°C, hot deformation rate of 0.07 mm/s, deformation of 63%: (a) MT, (b) MM, (c) MB, (d) SM

图 10. 热压温度 525°C、热变形温度 850°C、热变形速率 0.07 mm/s、变形量为 63% 时磁片的断面 SEM 照片: (a) MT, (b) MM, (c) MB, (d) SM

4. 结论

本文采用热压/热变形法制备了反向挤压纳米晶各向异性 Nd-Fe-B 磁片, 探讨了反挤压磁片的成型机制与磁性能均匀性, 研究了不同热压温度、热变形速率和变形量对磁体的影响, 主要结论如下:

1) 对磁片的磁性能均匀性进行了研究, 发现磁片上中心位置 MM 样品的磁性能最好, 均匀性差异受变形过程中应力的影响、毛坯流动速度、置于高温中的时间等因素的影响。

2) 随着热压温度由 525°C 提升至 575°C, 磁片的 $(BH)_{\max}$ 由 32.74 MGOe 下降到 24.01 MGOe, 这可能是由于热压温度升高会导致毛坯中晶粒尺寸增大, 较大的晶粒难以转变为片状晶粒并且更难取向。

3) 随着热变形速率由 0.03 mm/s 提升到 0.07 mm/s, 磁片的 $(BH)_{\max}$ 由 28.08 MGOe 提升到 33.95 MGOe, 这可能是由于随着热变形速率的提高, 热变形的时间也随之减少, 磁体在高温下的时间减少, 晶粒不会发生粗大, 有利于在热变形过程中转变为片状晶, 形成良好的织构。

当反挤压磁片的变形量由 46% 增大至 63% 时, 磁片的磁性能均匀性更好, $(BH)_{\max}$ 也由 33.94 MGOe

提升至 38.03 MGOe, 这与变形量的增大会导致晶粒尺寸的减小有关。

参考文献

- [1] Sagawa, M., Fujimura, S., Togawa, N., *et al.* (1984) New Material for Permanent Magnets on a Base of Nd and Fe. *Journal of Applied Physics*, **55**, 2083-2087. <https://doi.org/10.1063/1.333572>
- [2] 王明坤, 刘进军, 朱小云, 等. 热压/热变形 NdFeB 磁体研究的新进展[J]. 稀土, 2019, 40(5): 121-130.
- [3] 胡伯平, 饶晓雷, 钮萼, 等. 稀土永磁材料的技术进步和产业发展[J]. 中国材料进展, 2018, 37(9): 653-661.
- [4] Song, T., Tang, X., Yin, W., *et al.* (2019) Magnetic Properties Improvement of Hot-Deformed Nd-Fe-B Permanent Magnets by Pr-Cu Eutectic Pre-Diffusion Process. *Acta Materialia*, **174**, 332-341. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2019.05.065>
- [5] Lv, K., Dong, R., Zhao, M., *et al.* (2019) Recent Development of Hot-Pressed-/Deformed Nd-Fe-B Permanent Magnets. *Physics and Engineering of Metallic Materials: Proceedings of Chinese Materials Conference 2018 19th*, Springer, 593-605. https://doi.org/10.1007/978-981-13-5944-6_58
- [6] Li, Y., Xu, X., Yue, M., *et al.* (2019) Effect of Heterogeneous Microstructure on Magnetization Reversal Mechanism of Hot-Deformed Nd-Fe-B Magnets. *Journal of Rare Earths*, **37**, 1088-1095. <https://doi.org/10.1016/j.jre.2019.03.009>
- [7] Yoshida, Y. and Yoshikawa, N. (2022) Hot Formed NdFeB Magnets. In: *Modern Permanent Magnets*, Woodhead Publishing, 251-304. <https://doi.org/10.1016/B978-0-323-88658-1.00006-6>
- [8] Lee, R.W. (1985) Hot-Pressed Neodymium-Iron-Boron Magnets. *Applied Physics Letters*, **46**, 790-791. <https://doi.org/10.1063/1.95884>
- [9] 王子涵, 饶晓雷, 胡伯平, 等. 热变形 Nd-Fe-B 磁体研究现状与发展趋势[J]. 热加工工艺, 2015, 44(19): 10-13.
- [10] Gabay, A.M. and Hadjipanayis, G.C. (2017) Manufacturing of Die-Upset Rare Earth-Iron-Boron Magnets with (Ce, La)-Mischmetal. *IEEE Transactions on Magnetics*, **53**, 1-4. <https://doi.org/10.1109/TMAG.2017.2693283>
- [11] Tang, Y., Li, Y., Xu, X., *et al.* (2021) Analysis on Deformation and Texture Formation Mechanism of Hot-Deformed Nd-Fe-B Magnets Based on Heterogeneous Structure Evolution. *Journal of Materials Science & Technology*, **80**, 28-35. <https://doi.org/10.1016/j.jmst.2020.11.051>
- [12] Kojima, K., Ibata, A. and Kojima, S. (1989) Magnetic Properties and Crystal Orientation of Extruded Nd-Fe-B Magnets. *IEEE Translation Journal on Magnetics in Japan*, **4**, 263-269. <https://doi.org/10.1109/TJM.1989.4564224>
- [13] Hao, T., Dongzhe, J., Ying, L., *et al.* (2006) Microstructure and Magnetic Properties of Anisotropic Nd-Fe-B Magnets Fabricated by Single-Stage Hot Deformation. *Journal of Rare Earths*, **24**, 318-320. [https://doi.org/10.1016/S1002-0721\(07\)60390-1](https://doi.org/10.1016/S1002-0721(07)60390-1)
- [14] 马毅龙, 薛建东, 陈登明, 等. 热压热变形纳米晶钕铁硼磁体微观结构研究(英文) [J]. 材料保护, 2013, 46(S1): 119-121.
- [15] 蒋红刚, 李军, 刘颖, 等. 感应热压/热变形钕铁硼磁体形变均匀性及微观结构[J]. 磁性材料及器件, 2014, 45(4): 24-27.
- [16] 雷颖劼, 刘颖, 李军. 热变形工艺对各向异性 NdFeB 永磁体显微结构和磁性能的影响[J]. 磁性材料及器件, 2013, 44(4): 5-8.