

晶界添加 PrCu 合金对 $(\text{Pr}, \text{Nd}, \text{Dy})_{32.2}\text{Co}_{13}\text{Cu}_{0.4}\text{Fe}_{\text{bal}}\text{B}_{0.98}\text{M}_{1.05}$ 磁体磁性能与微观组织的影响*

张家滕¹⁾ 徐吉元¹⁾ 金佳莹²⁾ 孟睿阳¹⁾ 董生智^{1)†}

1) (钢铁研究总院, 功能材料研究院, 北京 100081)

2) (浙江大学材料科学与工程学院, 杭州 310027)

(2022 年 3 月 7 日收到; 2022 年 4 月 22 日收到修改稿)

通过在 $(\text{Pr}, \text{Nd}, \text{Dy})_{32.2}\text{Co}_{13}\text{Cu}_{0.4}\text{Fe}_{\text{bal}}\text{B}_{0.98}\text{M}_{1.05}$ ($M = \text{Al}, \text{Ga}, \text{Zr}$) 磁体中添加低熔点合金 $\text{Pr}_{80}\text{Cu}_{20}$, 提高磁体中的 Cu 含量, 从而调控 Co 在富稀土相中的分布. 相较于原磁体, 掺 PrCu 磁体的剩磁保持不变, 矫顽力提升约 1.3 kOe, 居里温度、剩磁温度系数和不可逆磁损均有所改善. 通过微观组织观察发现, 原磁体二级回火态晶界处同时存在贫 Co 相与富 Co 相, 但掺 PrCu 磁体二级回火态中, Cu 和 Co 在晶界相中的分布均匀性明显改善, 从而有效地消除了富 Co 相. 由于软磁性相 $R_2(\text{Fe}, \text{Co})_{17}$ ($R = \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Dy}$) 容易与富 Co 相共生, 有害于永磁性能, 富 Co 相的消除可能是掺 PrCu 磁体二级回火态矫顽力提升的重要原因.

关键词: 烧结 NdFeB 磁体, 晶界添加, 回火, Cu 和 Co 对立分布, 矫顽力

PACS: 75.50.-y, 75.50.Ww

DOI: 10.7498/aps.71.20220406

1 引言

自 1984 年问世以来, 烧结 NdFeB 永磁材料以其优异的磁性能在新能源汽车、风力发电、轨道交通和国防军工等各领域有着广泛的应用^[1]. 但烧结 NdFeB 永磁材料温度稳定性较差, 这限制了其应用范围. 目前, 已有大量研究通过元素取代来提升烧结 NdFeB 磁体的温度稳定性, 例如添加 Dy, Tb 等重稀土元素取代可提升磁体矫顽力, 利用轻重稀土元素的温度补偿作用可改善温度系数, 利用 Co 取代 Fe 可提升磁体居里温度^[2-7]. Mottram 等^[8] 采用混合 NdFeB 粉末和纯 Co 的方法来提升了烧结 NdFeB 磁体中的 Co 含量, 研究发现, Co 的加入会引入 $\text{Nd}(\text{Fe}, \text{Co})_2$ 软磁相并减少富稀土相的比例, 从而降低了矫顽力. 众所周知, 烧结 NdFeB

磁体主要由硬磁性 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 主相和富稀土相组成, 富稀土相分布在 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 主相晶粒之间, 将 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 主相分隔开, 起到去磁耦合的作用^[8-10]. Kim 和 Camp^[11] 的研究表明, Cu 和 Co 按一定比例联合添加的磁体矫顽力高于仅添加 Co 的磁体. 部分研究已表明, Al 和 Cu 等元素掺杂, 可以优化烧结 NdFeB 磁体中富稀土相的分布, 提高矫顽力^[12-15]. 本课题组前期研究中发现^[16], 对于 Dy 和 Co 共掺杂磁体 $(\text{Pr}, \text{Nd}, \text{Dy})_{32.2}\text{Co}_{13}\text{Cu}_{0.4}\text{Fe}_{\text{bal}}\text{B}_{0.98}\text{M}_{1.05}$ ($M = \text{Al}, \text{Ga}, \text{Zr}$) (重量百分比), Cu 和 Co 之间存在对立分布: 富 Cu 的富稀土相经过回火分布得更均匀, 这可抑制富 Co 相的聚集. 但即使经过二级回火, 也无法完全消除富 Co 晶界相. 因此, 通过晶界添加的方法向磁体中加入 PrCu 合金, 一方面希望能够弥补磁体因加 Co 而减少的富稀土相; 另一方面希望晶界中形成更多的富 Cu 区域, 通过 Cu 和 Co

* 国家重点研发计划 (批准号: 2021YFB3502900) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: dong_shengzhi@163.com

对立分布进一步遏制富 Co 晶界相的聚集, 改善富稀土相的分布, 从而进一步提升矫顽力.

2 实验

本文主要探讨 $\text{Pr}_{80}\text{Cu}_{20}$ 合金晶界添加前后磁体性能与微观结构之间的关系, 故晶界添加前的 $(\text{Pr}, \text{Nd}, \text{Dy})_{32.2}\text{Co}_{13}\text{Cu}_{0.4}\text{Fe}_{\text{bal}}\text{B}_{0.98}\text{M}_{1.05}$ ($M = \text{Al}, \text{Ga}, \text{Zr}$) (重量百分比) 磁体称为原磁体, 晶界添加后的磁体称为掺 PrCu 磁体. 通过电弧熔炼制备 $\text{Pr}_{80}\text{Cu}_{20}$ 合金, 通过感应熔炼和速凝铸片法制备 $(\text{Pr}, \text{Nd}, \text{Dy})_{32.2}\text{Co}_{13}\text{Cu}_{0.4}\text{Fe}_{\text{bal}}\text{B}_{0.98}\text{M}_{1.05}$ ($M = \text{Al}, \text{Ga}, \text{Zr}$) (重量百分比) 合金甩带. 先在惰性气体保护氛围中对 $\text{Pr}_{80}\text{Cu}_{20}$ 合金进行粗破碎, 再将破碎后的 10 g $\text{Pr}_{80}\text{Cu}_{20}$ 合金与 1490 g $(\text{Pr}, \text{Nd}, \text{Dy})_{32.2}\text{Co}_{13}\text{Cu}_{0.4}\text{Fe}_{\text{bal}}\text{B}_{0.98}\text{M}_{1.05}$ ($M = \text{Al}, \text{Ga}, \text{Zr}$) (wt.%) 合金甩带一起进行氢破碎 (混合后的合金 Cu 重量百分比含量为 0.53%), 再经气流磨制粉. 气流磨制粉后, 粉体先在 2 T 磁场下模压取向成型, 再在 220 MPa 压力下冷等静压制磁体生坯. 使用管式炉对生坯进行烧结和回火, 烧结温度为 1050 °C, 保温时间为 5 h; 烧结后进行两级回火热处理, 一级回火温度为 880 °C, 保温时间为 2 h, 二级回火温度为 540 °C, 保温时间为 3 h.

使用 NIM-62000 永磁材料精密测量系统测试样品的退磁曲线, 测试样品的尺寸为 $\Phi 10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$. 使用 HT-707 磁通计和恒温箱测量磁体的不可逆磁通损失, 测试样品的尺寸为 $\Phi 10 \text{ mm} \times 7 \text{ mm}$. 采用 NETZSCH STA-449C 同步热分析仪 (测试时在炉体外部加载磁场) 进行热重测试, 从而获得居里温度. 采用 JSM-IT700HR 场发射扫描电子显微镜 (FESEM) 配备 Oxford ULTIMA MAX 能谱探测系统 (EDS) 对磁体的显微组织进行初步观察, 采用 FEI Talos F200X 透射电子显微镜 (TEM) 结合能量色散 X 射线光谱 (EDX) 和选区电子衍射 (SAED) 进行物相结构分析.

3 结果

图 1 为原磁体和掺 PrCu 磁体二级回火态样品在 20, 50, 100, 150 和 200 °C 下的退磁曲线. 表 1 为原磁体和掺 PrCu 磁体的烧结态和不同热处理状态下的磁性能对比; 图 2 为原磁体和掺 PrCu 磁

体二级回火态样品的磁性能温度稳定性对比. 可以看出, 掺 PrCu 磁体的剩磁 B_r 和磁能积 $(BH)_{\text{max}}$ 较原磁体几乎不变, 而最终的二级回火态矫顽力 H_{cj} 提升约 1.3 kOe; 温度稳定性方面, 掺 PrCu 磁体相较于原磁体, 居里温度、不可逆磁损和剩磁温度系数均有所改善.

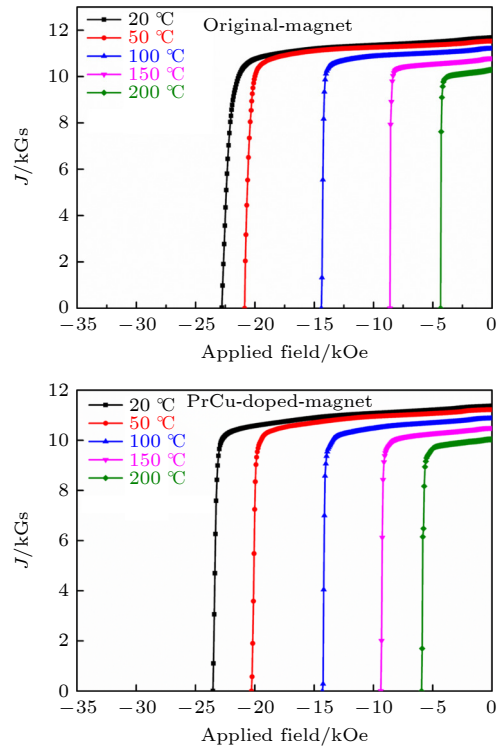


图 1 原磁体和掺 PrCu 磁体二级回火态样品不同温度下的退磁曲线

Fig. 1. Demagnetization curves of the 2nd-annealed original-magnet and PrCu-doped magnet upon elevated temperatures.

表 1 原磁体和掺 PrCu 磁体的室温磁性能对比

Table 1. Comparison of magnetic properties between original-magnet and PrCu-doped magnet.

	剩磁 B_r/kGs	矫顽力 H_{cj}/kOe	最大磁能积 $(BH)_{\text{max}}/\text{MGOe}$	方形度 $H_k/H_{\text{cj}}/\%$	
原磁体	烧结态	11.32	15.64	31.04	94.4
	一级回火态	11.30	17.22	30.88	95.0
	二级回火态	11.30	22.24	31.39	95.9
掺 PrCu 磁体	烧结态	11.31	16.34	30.89	88.9
	一级回火态	11.30	17.60	30.51	89.3
	二级回火态	11.30	23.53	31.36	95.1

图 3 为原磁体烧结态、一级回火态和二级回火态样品的扫描电镜背散射照片 (BSE) 及对应区域的能谱照片 (EDS). 如图 3(a)—(c) 背散射照片所示,

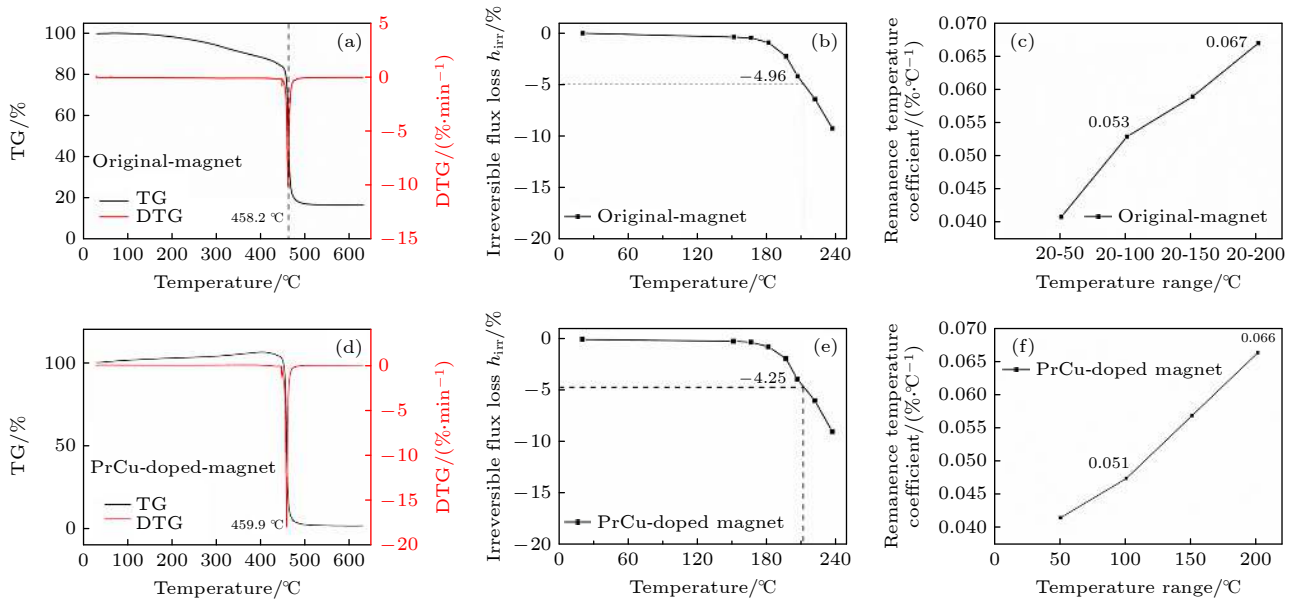


图 2 原磁体和掺 PrCu 磁体的温度稳定性对比 (a), (d) TG/DTG 曲线; (b), (e) 不可逆磁损曲线; (c), (f) 剩磁温度系数

Fig. 2. Comparison of temperature stability of magnetic properties between original-magnet and PrCu-doped magnet: (a), (d) TG/DTG curves; (b), (e) irreversible flux loss curves; (c), (f) remanence temperature coefficient.

深灰色衬度对应硬磁性 $R_2(\text{Fe}, \text{Co})_{14}\text{B}$ ($R = \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Dy}$) 主相, 主相晶粒之间灰白色衬度的相对应富稀土相. 磁体中存在较多的大块富稀土相, 其尺寸甚至大于主相晶粒, 而在主相晶粒之间, 薄层富稀土相很少. 经过一级及二级回火后, 薄层富稀土相的数量也没有明显增加. 图 3(a)–(c) 中的插图为 Co 元素的能谱线扫结果, 线扫区域为图 3(a)–(c) 中实线箭头所划过区域. 从图 3 可以发现, 富稀土相内 Co 含量有所不同, 有一些富稀土相 Co 含量明显低于主相, 也有一些富稀土相 Co 含量明显高于主相. 基于富稀土相中 Co 含量的不同, 将 Co 含量低于主相的富稀土相称为贫 Co 相; 将 Co 含量高于主相的富稀土相称为富 Co 相. 由 BSE 照片和 EDS 面扫照片结合可以在二维平面的角度观察到, 晶界中存在贫 Co 相与富 Co 相.

图 4 为掺 PrCu 磁体烧结态、一级回火态和二级回火态样品的扫描电镜背散射照片 (BSE) 及对应区域的能谱照片 (EDS); 图 4(a)–(c) 中插图为能谱线扫结果, 线扫区域为图 4(a)–(c) 中实线箭头所划过区域. 与原磁体的 SEM 照片相类似, 掺 PrCu 磁体烧结态和一级回火态中也可以发现贫 Co 相与富 Co 相. 但是, 在图 4(c) 所示二级回火态样品中, 富稀土相 Co 含量均低于主相, 即掺 PrCu 磁体二级回火态中的富稀土相均为贫 Co 相.

表 2 为掺 PrCu 磁体 EDS 点扫数据, 对比了

三种状态掺 PrCu 磁体中不同相的成分. 由于掺 PrCu 磁体中烧结和一级回火态可以观察到贫 Co 相和富 Co 相的区别, 但二级回火态仅能观察到贫 Co 相, 故将二级回火态样品中 Co 含量更高的贫 Co 相称为贫 Co 相 1, 将 Co 含量更低的贫 Co 相称为贫 Co 相 2. 由表 2 数据可知, 经过一级和二级回火, 主相的元素含量没有发生变化; 贫 Co 相与富 Co 相之间的实际成分差异不仅局限在 Co 含量的不同: 贫 Co 相含有大量的稀土元素, 富 Co 相由

表 2 掺 PrCu 磁体三种状态样品中不同相的元素含量

Table 2. Element content of different phases in three kinds of PrCu-doped magnets.

	wt.%	O	Fe	Co	Cu	Pr	Nd	Dy
烧结态	主相	0.89	56.185	13.14	0.31	4.87	15.32	9.28
	贫Co相	4.02	4.63	1.98	1.13	24.68	56.75	6.83
	富Co相	0.96	20.54	23.62	0.47	13.66	34.62	6.14
一级回火态	主相	0.93	56.74	13.24	0.38	4.6	14.87	9.24
	贫Co相	4.79	2.67	1.79	1.61	25.37	56.98	6.79
	富Co相	1.15	11.72	16.01	0.58	20.15	44.2	6.19
二级回火态	主相	0.81	56.23	13.89	0.3	4.86	14.78	9.14
	贫Co相1	2.21	5.61	9.02	1.47	23.86	51.67	6.16
	贫Co相2	2.03	6.16	4.05	1.52	25.39	54.54	6.31

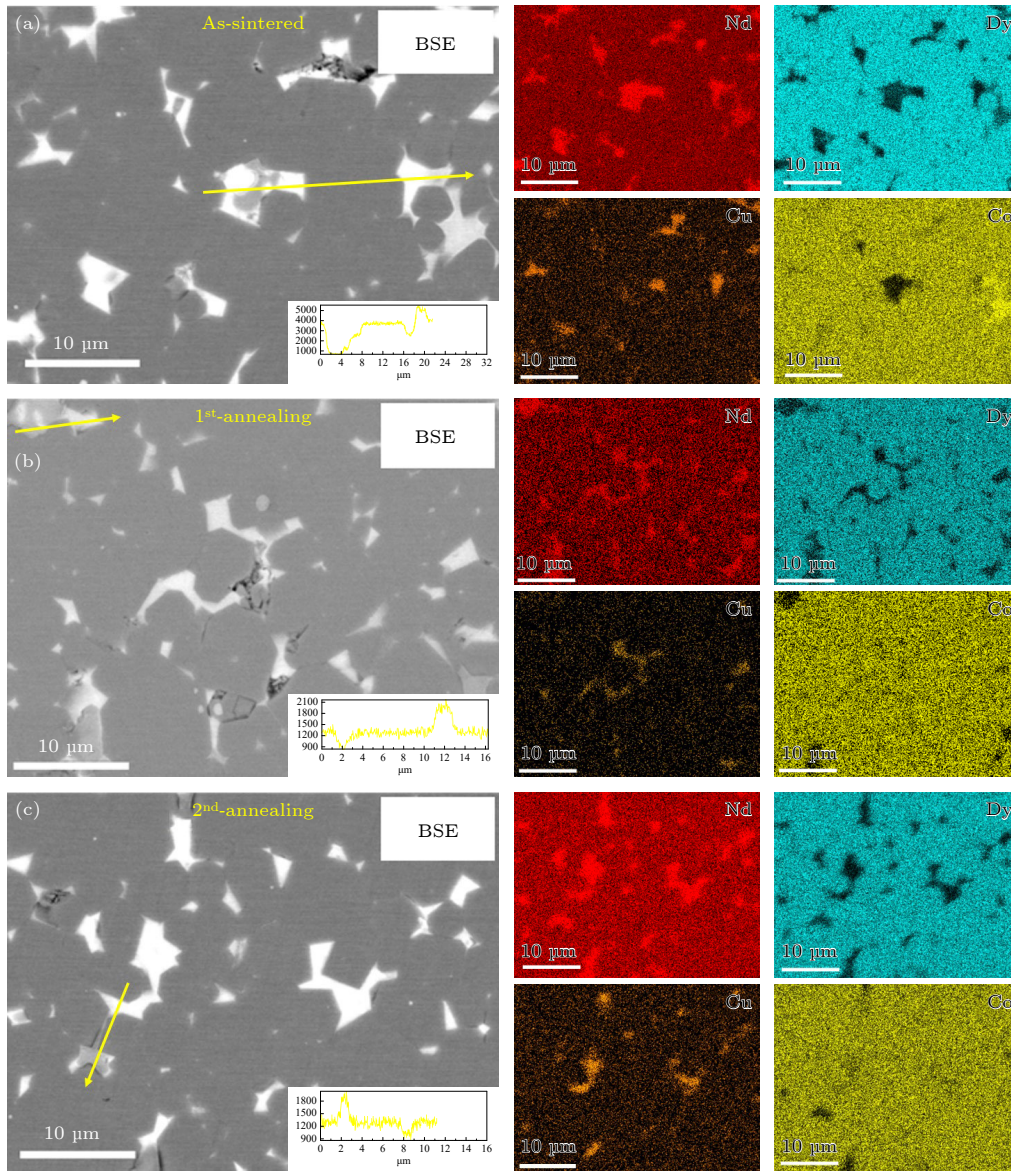


图 3 (a) 原磁体烧结态、(b) 一级回火态和 (c) 二级回火态样品的扫描电镜背散射照片 (BSE) 及对应区域的能谱照片 (EDS)
 Fig. 3. SEM figure (BSE) and EDS figure of the corresponding region of original-magnet (a) as-sintered, (b) 1st-annealing and (c) 2nd-annealing.

于含有大量的 Co 而导致稀土元素比例低于贫 Co 相; 由烧结态到一级回火态, 富 Co 相的 Co 含量比例降低, 二级回火态后富 Co 相则被消除, 且二级回火态中贫 Co 相 Co 含量比例高于烧结态和一级回火态中贫 Co 相 Co 含量的比例; 贫 Co 相含有大量稀土元素的同时又具有一定的 O, 故推测贫 Co 相中包含大量稀土氧化物相, 在二级回火态中, 贫 Co 相 1 和贫 Co 相 2 的 O 含量几乎相同, 且 O 含量比例均低于烧结态和一级回火态的贫 Co 相; Cu 在贫 Co 相中的比例高于其在富 Co 相中的比例, 表明 Cu 和 Co 之间的对立分布; 贫 Co 相中 Fe 含量大于 Co 含量, 在富 Co 相中 Fe 含量则小于

Co 含量, 而贫 Co 相 1 和贫 Co 相 2 的 Fe 含量无明显差异.

图 5 为原磁体 TEM 明场像 (BF) 照片及对应区域的元素面分布照片 (EDX)、选区电子衍射照片 (SAED), 电子衍射选取的区域为图 5(a)–(c) 中圆圈所示区域 (即富 Co 相区域); 为便于观察, 富稀土相已用虚线框标出. 结合图 5 明场像照片和元素面分布可知, 原磁体三种状态样品中 Nd, Dy 分布均匀; Nd 在晶界中富集、Dy 主要分布在主相中. 由图 5(a) 可知, 原磁体烧结态中 Cu 和 Co 仅分布在晶界内一部分区域, 富 Co 相倾向于分布在贫 Cu 区域, 而 Cu 含量较高的区域 Co 含量较少, 即

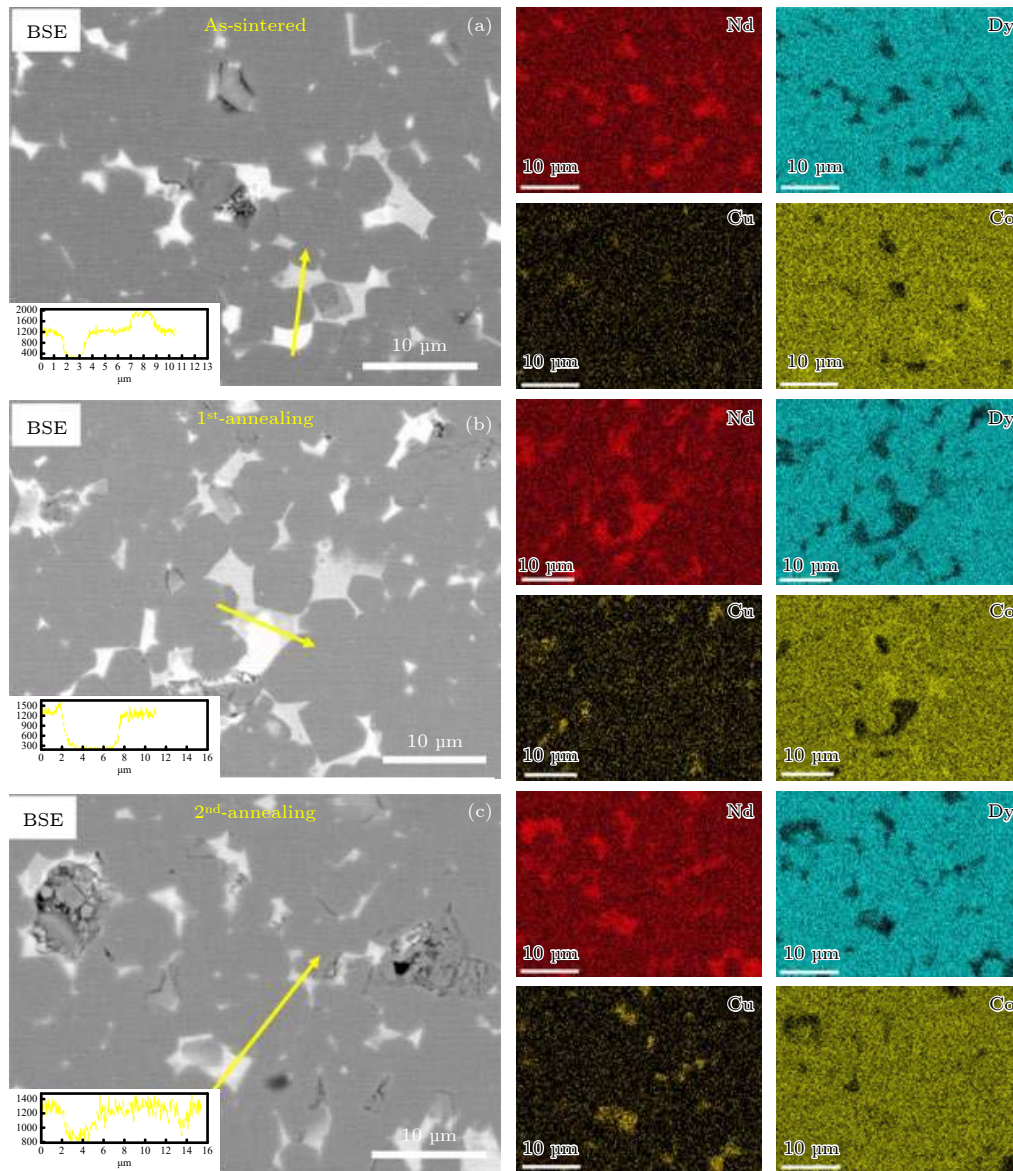


图 4 (a) 掺 PrCu 磁体烧结态、(b) 一级回火态和 (c) 二级回火态样品的扫描电镜背散射照片 (BSE) 及对应区域的能谱照片 (EDS)
 Fig. 4. SEM figure (BSE) and EDS figure of the corresponding region of PrCu-doped magnet (a) as-sintered, (b) 1st-annealing and (c) 2nd-annealing.

二者形成了对立分布. 由图 5(b) 可知, 在原磁体一级回火态样品中 Cu 和 Co 也形成了对立分布, 晶界中存在富 Co 相. 由图 5(c) 可知, 原磁体二级回火态样品晶界中 Cu 分布均匀, 虽然 Co 受到 Cu 和 Co 的对立分布影响, 仅分布在富稀土相与主相之间的边界夹角位置, 不再聚集在富稀土相内部, 但其 Co 含量仍然高于主相; 即在原磁体二级回火态样品中主相与富稀土相之间的边界夹角位置依然存在富 Co 相. 图 5(a1)–(c1) 所示的选区电子衍射照片 (SAED) 表明, 富 Co 相区域内存在 $R_2(\text{Fe}, \text{Co})_{17}$ ($R = \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Dy}$) 软磁相 (hexagonal, $a = b = 8.441 \text{ \AA}$, $c = 12.181 \text{ \AA}$).

图 6 为掺 PrCu 磁体烧结态、一级回火态和二级回火态样品的透射电镜明场像 (BF) 及对应区域的元素面分布照片 (EDX)、选区电子衍射照片 (SAED). 在明场像照片中, 富稀土相已用虚线框标出. 结合图 6 明场像照片和元素面分布可知, 掺 PrCu 磁体三种状态样品中 Nd, Dy 分布均匀; Nd 在晶界中富集、Dy 主要分布在主相中. 由图 6(a) 及其对应元素面分布照片所示, 掺 PrCu 磁体烧结态样品中, Cu 仅分布在富稀土相的一部分区域, 而 Co 弥散分布在富稀土相中, 且存在富 Co 相; 由图 6(b) 及其对应元素面分布照片所示, 掺 PrCu 磁体一级回火态样品中, Cu 在富稀土相中分布得

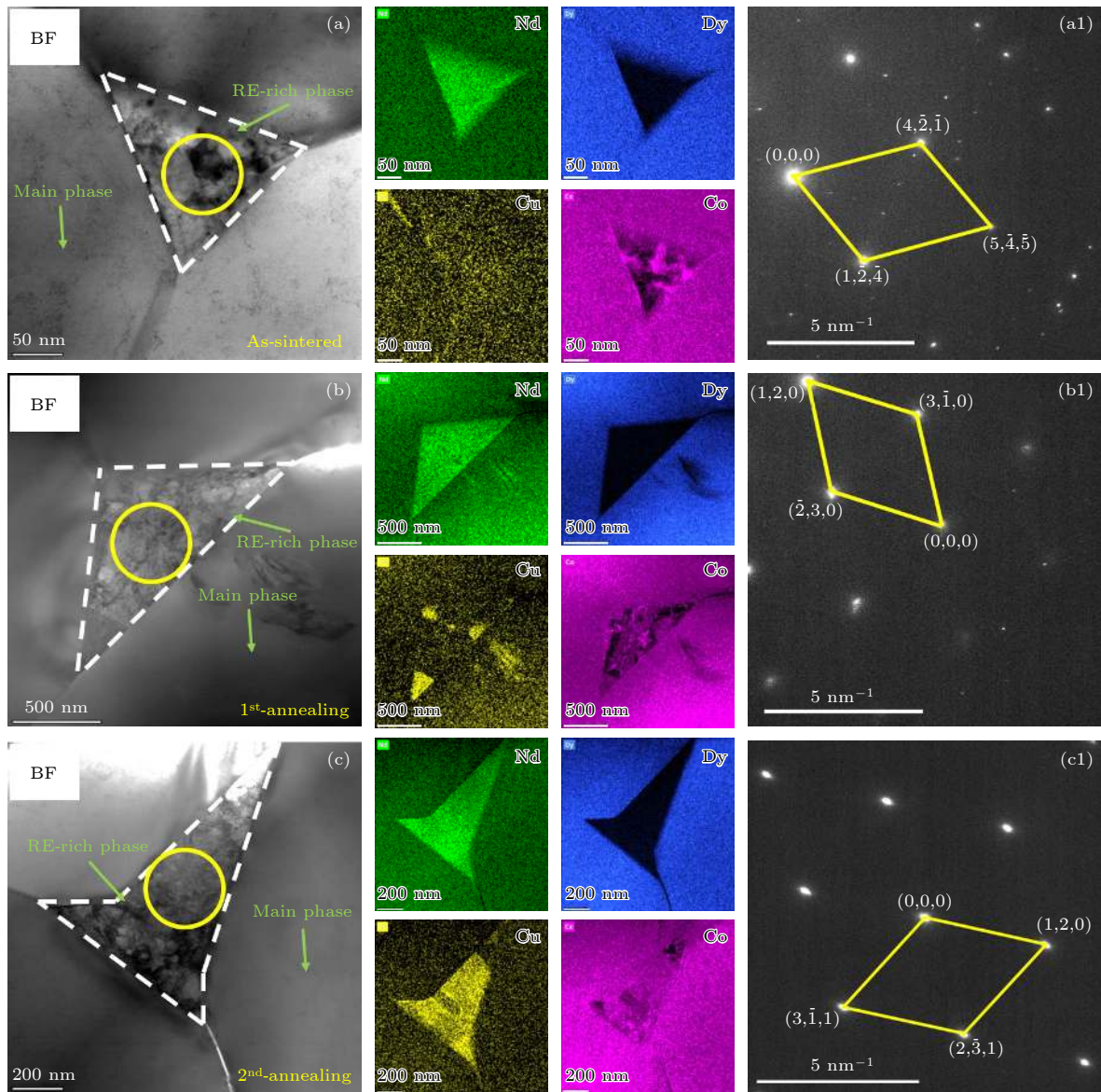


图 5 原磁体透射电镜明场像照片(BF)及对应区域的元素面分布 (a) 烧结态; (b) 一级回火态; (c) 二级回火态

Fig. 5. Bright field image (BF) and corresponding EDX mapping of original-magnet: (a) As-sintered; (b) 1st-annealing; (c) 2nd-annealing.

比较均匀, Co 在晶界内一些位置发生了聚集, 聚集位置 Co 含量高于主相; 由图 6(c) 及其对应元素面分布照片所示, 掺 PrCu 磁体二级回火态样品中, 富稀土相中 Cu 分布更为均匀, Co 元素在晶界处的含量很低, 且明显低于主相, 即富 Co 相被消除. 目前 SEM 和 TEM 所发现的掺 PrCu 磁体中情况是相一致的, 即烧结态和一级回火态磁体中富 Co 相和贫 Co 相共存, 而二级回火态磁体中富 Co 相已被消除.

图 6(a1)、图 6(b1) 和图 6(c1) 所示的选区电子衍射区域分别取自各自磁体的主相位置, SAED 结果表明相应位置为 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 四方相 (tetragonal,

$a = b = 8.805 \text{ \AA}$, $c = 12.205 \text{ \AA}$); 图 6(a2)、图 6(b2) 和图 6(c2) 所示的选区电子衍射区域分别取自各自磁体的晶界相位置, 由图 6(a2) 和图 6(b2) 可知, 掺 PrCu 磁体的烧结态和一级回火态样品的富 Co 相中存在 $R_2(\text{Fe}, \text{Co})_{17}$ ($R = \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Dy}$) 软磁相 (hexagonal, $a = b = 8.441 \text{ \AA}$, $c = 12.181 \text{ \AA}$); 由图 6(c2) 可知, 二级回火态样品富稀土相中, 存在 NdO_2 相 (cubic, $a = b = c = 5.542 \text{ \AA}$). SAED 结果与图 6 所示元素面分布结果相符, 证明烧结态和一级回火态样品中富 Co 相位置的确存在 $R_2(\text{Fe}, \text{Co})_{17}$ ($R = \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Dy}$) 相, 二级回火态晶界相位置存在稀土氧化物相.

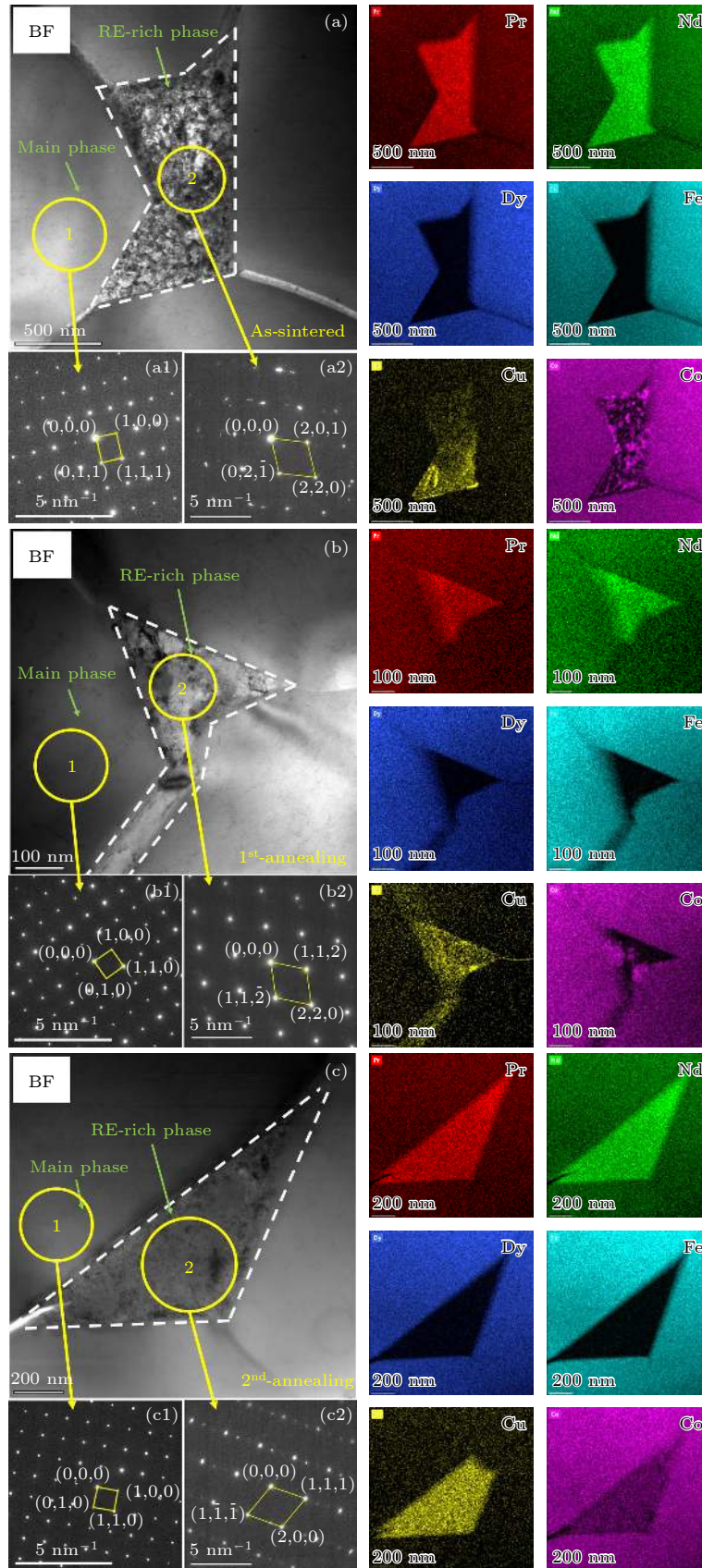


图 6 掺 PrCu 磁体透射电镜明场像照片 (BF) 及对应区域的选区电子衍射照片、元素面分布照片 (a) 烧结态; (b) 一级回火态; (c) 二级回火态

Fig. 6. Bright field image (BF) and corresponding Selected Area Electron Diffraction figure and EDX mapping of PrCu-doped magnet: (a) As-sintered; (b) 1st-annealing; (c) 2nd-annealing.

4 讨论

对比表 1 所示原磁体与掺 PrCu 磁体烧结态和不同热处理状态下的磁性能, 可知掺 PrCu 磁体的剩磁 B_r 和磁能积 $(BH)_{\max}$ 较原磁体几乎不变, 而最终的二级回火态矫顽力 H_{cj} 提升了约 1.3 kOe; 由图 2 可知, 掺 PrCu 磁体和原磁体相比, 居里温度、剩磁温度系数和不可逆磁损均有所改善.

已有研究表明, 掺进磁体中的 Co 会进入主相, 取代主相中的 Fe, 形成更高居里温度的 $R_2(\text{Fe}, \text{Co})_{14}\text{B}^{[3,4,11]}$. 而图 5 和图 6 中 SAED 结果表明, 富 Co 晶界相内存在 $R_2(\text{Fe}, \text{Co})_{17}$ 相 ($R = \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Dy}$), 其在使用温度范围内为面各向异性的软磁相^[17,18], 其存在对矫顽力是有害的. 因此, 应消除晶界内的富 Co 相. 众所周知, 回火过程中, 富稀土相呈熔融液相, 可通过流动来均匀成分^[8,9]; 但图 3 所示原磁体 SEM 照片和图 5 所示原磁体 TEM 照片表明, 即使经过二级回火, 也无法完全消除富 Co 相, 可能是由于原磁体中富 Cu 富稀土相的数量不够, 导致均匀成分的能力不足.

由图 4 所示的掺 PrCu 磁体 SEM 观察结果可知, 经一级回火, 富 Co 相中 Co 含量比例降低; 经二级回火, 富 Co 相已被消除; 再结合表 2 的数据可以发现, 由烧结态到一级回火态, 原本贫 Cu 的富 Co 相被消除, 到二级回火态仅存在富 Cu 的贫 Co 相. 富 Co 相中的 Co 并没有进入主相, 而是进入了贫 Co 相, 表现出晶界处的 Co 含量更为均匀. 这可以说明掺 PrCu 合金后有利于晶界内的成分均匀化; 由于 Cu 和 Co 的对立分布, 更均匀的 Cu 抑制了 Co 的聚集, 从而消除了富 Co 相. 进一步结合图 6 所示的掺 PrCu 磁体 TEM 观察结果可知, 在二级回火态掺 PrCu 磁体中, 富 Co 相已消除, $R_2(\text{Fe}, \text{Co})_{17}$ 软磁相也随着富 Co 相的消除而消失. 由于原磁体晶界内仍存在富 Co 相, 而掺 PrCu 磁体晶界内富 Co 相已消除, 这可能是二级回火态掺 PrCu 磁体矫顽力高于原磁体的重要原因之一.

5 结论

通过晶界添加的方法向 $(\text{Pr}, \text{Nd}, \text{Dy})_{32.2}\text{Co}_{13}$

$\text{Cu}_{0.4}\text{Fe}_{\text{bal}}\text{B}_{0.98}\text{M}_{1.05}$ ($M = \text{Al}, \text{Ga}, \text{Zr}$) 磁体中掺入 $\text{Pr}_{80}\text{Cu}_{20}$ 合金, 制备了掺 PrCu 磁体. 研究表明, 相较于原磁体, 掺 PrCu 磁体的剩磁与磁能积保持不变, 但矫顽力提升约 1.3 kOe, 且居里温度、不可逆磁损和剩磁温度系数均有所改善. 经显微组织观察可知, 向磁体中掺入 PrCu 有利于富稀土相在回火时的流动, 促进二级回火态中富稀土相成分的均匀化, Cu 在富稀土相中的分布更为均匀, 基于 Cu 和 Co 存在的对立分布关系, 使得富 Co 相基本消除, $R_2(\text{Fe}, \text{Co})_{17}$ 软磁相也随之消除, 促进了矫顽力的提升.

参考文献

- [1] Sagawa M, Fujimura S, Togawa N, Yamamoto H, Matsuura Y 1984 *J. Appl. Phys.* **55** 2083
- [2] Yan G L, McGuinness P J, Farr J P G, Harris I R 2010 *J. Alloys Compd. J. Alloys Compd.* **491** L20
- [3] Mottram R S, Williams A J, Harris I R 2000 *J. Magn. Magn. Mater.* **217** 27
- [4] Hu Z H, Lian F Z, Zhu M G, Li W 2008 *J. Magn. Magn. Mater.* **320** 2364
- [5] Kostyuchenko N V, Tereshina I S, Gorbunoy D I, Tereshina-Chitrova E A, Rogacki K, Andreev A V, Doerr M, Politova G A, Zvezdin A K 2020 *Intermetallics* **124** 106840
- [6] Cui X G, Yan M, Ma T Y, Luo W, Tu S J 2009 *Sci. Sinter.* **41** 91
- [7] Brown D, Ma B M, Chen Z M 2002 *J. Magn. Magn. Mater.* **248** 432
- [8] Yan M, Yu L Q, Luo W, Wang W, Zhang W Y, Wen Y H 2006 *J. Magn. Magn. Mater.* **301** 1
- [9] Li W F, Ohkubo T, Hono K 2009 *Acta Mater.* **57** 1337
- [10] Li D, Dong S Z, Li L, Xu J Y, Chen H S, Li W 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 147501 (in Chinese) [李栋, 董生智, 李磊, 徐吉元, 陈红升, 李卫 2020 物理学报 **69** 147501]
- [11] Kim A S, Camp F E 1996 *J. Appl. Phys.* **79** 5035
- [12] Pandian S, Chandrasekaran V, Markandeyulu G, Lyer K J L, Rao R 2002 *J. Appl. Phys.* **92** 6082
- [13] Ni J J, Ma T Y, Yan M 2011 *J. Magn. Magn. Mater.* **323** 2549
- [14] Li M, Tamura T 2021 *J. Alloys Compd.* **883** 160915
- [15] Luo S E, Lu Y J, Zou Y R, Zhong S W, Wu Y, Yang M N 2021 *J. Magn. Magn. Mater.* **523** 167620
- [16] Zhang J T, Xu J Y, Hu C L, Meng R Y, Dong S Z. 2022 *J. Chin. Rare Earth Soc.* **40** 235 (in Chinese) [张家滕, 徐吉元, 胡成林, 孟睿阳, 董生智 2022 中国稀土学报 **40** 235]
- [17] Hu B P, Rao X L, Wang Y Z 2017 *Rare-earth Permanent Magnet Materials* (Vol. 1) (Beijing: Metallurgical Industry Press) p197 (in Chinese) [胡伯平, 饶晓雷, 王亦忠 2017 稀土永磁材料(上册) (北京: 冶金工业出版社) 第197页]
- [18] Kou X C, Zhao T S, R. Grössinger, de Boer F R 1992 *Phys. Rev. B* **46** 6225

Effect of $\text{Pr}_{80}\text{Cu}_{20}$ grain boundary addition on microstructure and magnetic properties of $(\text{Pr}, \text{Nd}, \text{Dy})_{32.2}\text{Co}_{13}\text{Cu}_{0.4}\text{Fe}_{\text{bal}}\text{B}_{0.98}\text{M}_{1.05}$ magnet*

Zhang Jia-Teng¹⁾ Xu Ji-Yuan¹⁾ Jin Jia-Ying²⁾

Meng Rui-Yang¹⁾ Dong Sheng-Zhi^{1)†}

1) (*Division of Functional Materials, Central Iron & Steel Research Institute, Beijing 100081, China*)

2) (*School of Materials Science and Engineering, Zhejiang University, Hangzhou 310027, China*)

(Received 7 March 2022; revised manuscript received 22 April 2022)

Abstract

With the aim of increasing Cu concentration to regulate the distribution of Co elements in RE-rich phase, the low-melting-point $\text{Pr}_{80}\text{Cu}_{20}$ intergranular alloy is introduced into the $(\text{Pr}, \text{Nd}, \text{Dy})_{32.2}\text{Co}_{13}\text{Cu}_{0.4}\text{Fe}_{\text{bal}}\text{B}_{0.98}\text{M}_{1.05}$ ($M = \text{Al}, \text{Ga}, \text{Zr}$) magnet. Comparing with the original magnet, the remanence of PrCu-doped magnet is basically unchanged, and the coercivity is increased by approximately 1.3 kOe. Simultaneously, the Curie temperature, remanence temperature coefficient and irreversible flux loss are slightly improved. Microstructural study reveals that the Co-lean phase and the Co-rich phase coexist in the grain boundary in the 2nd-annealed original magnet. However, for the PrCu-doped magnet, the uniform distribution of Cu and Co elements in the intergranular phase are evidently improved, resulting in the elimination of the Co-rich phase. Since the $R_2(\text{Fe}, \text{Co})_{17}$ ($R = \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Dy}$) soft magnetic phase easily coexist with the Co-rich phase and are detrimental to the coercivity, the elimination of Co-rich intergranular phase may be an important reason for the higher coercivity of the 2nd-annealed PrCu-doped magnet than that of the original magnet.

Keywords: sintered NdFeB magnet, intergranular addition, annealing, opposite distribution between Cu and Co, coercivity

PACS: 75.50.-y, 75.50.Ww

DOI: [10.7498/aps.71.20220406](https://doi.org/10.7498/aps.71.20220406)

* Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant No. 2021YFB3502900).

† Corresponding author. E-mail: dong_shengzhi@163.com

晶界添加PrCu合金对 $(\text{Pr}, \text{Nd}, \text{Dy})_{32.2}\text{Co}_{13}\text{Cu}_{0.4}\text{Fe}_{\text{bal}}\text{B}_{0.98}\text{M}_{1.05}$ 磁体磁性能与微观组织的影响

张家滕 徐吉元 金佳莹 孟睿阳 董生智

Effect of $\text{Pr}_{80}\text{Cu}_{20}$ grain boundary addition on microstructure and magnetic properties of $(\text{Pr}, \text{Nd}, \text{Dy})_{32.2}\text{Co}_{13}\text{Cu}_{0.4}\text{Fe}_{\text{bal}}\text{B}_{0.98}\text{M}_{1.05}$ magnet

Zhang Jia-Teng Xu Ji-Yuan Jin Jia-Ying Meng Rui-Yang Dong Sheng-Zhi

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 167502 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20220406

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220406>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

利用Pr70Cu30晶界扩散改善烧结钕铁硼废料矫顽力的研究

Coercivity enhancement of waste Nd–Fe–B magnets by Pr70Cu30 grain boundary diffusion process

物理学报. 2018, 67(6): 067502 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172551>

稀土永磁体及复合磁体反磁化过程和矫顽力

Magnetization reversal and coercivity in rare–earth permanent magnets and composite magnets

物理学报. 2019, 68(17): 177501 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190364>

核 $(\text{Nd}_{0.7}, \text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ –壳 $(\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B})$ 型磁体反磁化的微磁学模拟

Micromagnetic simulations of reversal magnetization in core $(\text{Nd}_{0.7}, \text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ –shell $(\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B})$ type

物理学报. 2020, 69(14): 147501 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200435>

铁基合金薄带多次等温回火特性的研究

The characteristics of multiple isothermal tempered Fe–based alloy ribbons

物理学报. 2019, 68(13): 137501 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190017>

一种具有“1111”型结构的新型稀磁半导体 $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)(\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{SbO}$

$(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)(\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{SbO}$: A novel 1111–type diluted magnetic semiconductor

物理学报. 2021, 70(10): 107501 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201966>

退火时间对 $\text{Fe}_{80}\text{Si}_9\text{B}_{10}\text{Cu}_1$ 非晶合金纳米尺度结构不均匀性和磁性能的影响

Effects of annealing time on nanoscale structural heterogeneity and magnetic properties of $\text{Fe}_{80}\text{Si}_9\text{B}_{10}\text{Cu}_1$ amorphous alloy

物理学报. 2022, 71(15): 156102 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220446>