

## МІНІАТЮРНІ ПОСТІЙНІ МАГНІТИ НА БАЗІ СПЛАВУ Nd-Fe-B, ОТРИМАНІ МЕТОДОМ ІНТЕНСИВНОЇ ДЕФОРМАЦІЇ

*О.М. Бовда, В.О. Бовда, Г.С. Кошкар'юв, Л.В. Онищенко, О.С. Тортіка,*

*Національний науковий центр*

*«Харківський фізико-технічний інститут», Харків, Україна*

*E-mail: bovda@kipt.kharkov.ua;*

*Б.А. Авраменко, А.Г. Равлік*

*Національний технічний університет*

*«Харківський політехнічний інститут»,*

*Харків, Україна*

Інтенсивна деформація швидкозагартованих магнітних сплавів може стати принципово новим шляхом отримання тонких магнітів з високими магнітними властивостями. Досліджено структуру та магнітні властивості деформованого швидкозагартованого магнітного сплаву Nd<sub>13,5</sub>Fe<sub>73,3</sub>Co<sub>6,7</sub>Ga<sub>0,5</sub>B<sub>6</sub>. Встановлено, що деформація сплаву відбувається не лише за рахунок фрагментації вихідного порошку, а також супроводжується структурно-фазовими перетвореннями. Термічна обробка веде до появи двофазної поведінки кривої розмагнічування.

### ВСТУП

Серед великого розмаїття застосувань постійних магнітів на базі рідкісноземельних сплавів є перспективний напрям як з наукової, так і технологічної точки зору, - а саме мікроелектромеханічні системи або MEMS [1-3]. Але застосування магнітних приводів в MEMS-системах вимагає мініатюризації постійних магнітів. До теперішнього часу в таких пристроях застосовують мініатюрні магніти на базі сплавів Nd-Fe-B та Sm-Co, що були отримані механічною обробкою зразків, виготовлених за технологією порошкової металургії [4,5]. Такий підхід має багато технологічних недоліків [6]. Як альтернатива були розроблені методи осадження магнітних плівок [7-8], проте така технологія ще потребує вирішення ключових питань, пов'язаних з корозійною нестабільністю та обмеженням товщини плівки, що є суттєвими перешкодами, які унеможливають їх застосування у серійному виробництві. Задача отримання дешевої та безвідходної технології залишається невирешеною.

В роботі була зроблена спроба застосувати нестандартний підхід до виготовлення мікромагнітів, що можуть бути застосовані в мініатюрних пристроях. В основі технологічного підходу лежить широко відомий метод Кюнцлера для отримання надпровідників Nb<sub>3</sub>Sn волочінням порошку у трубці. Унікальність технології полягає в деформуванні достатньо твердого інтерметаліду на основі фази Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B при кімнатній температурі. Наступна розробка такого методу дозволить створити недорогу технологію масового виробництва постійних мікро-магнітів.

### ЕКСПЕРИМЕНТ

Вихідні зразки складу Nd<sub>13,5</sub>Fe<sub>73,3</sub>Co<sub>6,7</sub>Ga<sub>0,5</sub>B<sub>6</sub> були отримані аргонодуговою плавкою металів високої чистоти Nd-99,5%, Fe-99%, Co-99% та Ga-99,99%. З них було виготовлено тонкі стрічки (товщиною у діапазоні 20...30 мкм) методом надшвидкого гартування. Лінійна швидкість гартувального

колеса становили 40 м/с, що гарантувало охолодження сплаву зі швидкістю 10<sup>6</sup> К/с та нанокристалічний стан після охолодження. Загартований матеріал було подрібнено до лінійних розмірів 200...300 мкм та проведено термічну обробку при T=600 °С. Далі порошок поміщали в сталеву трубку, зовнішній діаметр якої становив 8 мм, та провадили волочіння та прокатку при кімнатній температурі. Маршрут деформації був наступним:

Ø 8-> Ø 1,7-> Ø 1,35-> 0,68-> 0,49 -> 0,095-> 0,060-> 0,054

95% -> 37% -> 75% -> 48% -> 96% -> 19%

Для зняття накопичених напружень в оболонці провадили проміжні відпалювання при температурі T=500С в захисній атмосфері аргону на діаметрі d=1,35 та товщині 0,49; 0,095 мм та h=0,060 мм. Після деформації зразки легко відокремлювались від оболонки. Дослідження магнітних властивостей провадили за допомогою вібраційного магнітометра. Для дослідження структури було застосовано растрову електронну мікроскопію та рентгеноструктурний аналіз.

### РЕЗУЛЬТАТИ

На рис. 1 наведено злам та поперечний перетин зразків в залежності від ступеня деформації в напрямку зменшення товщини. Вже на перших етапах деформації відбувається суттєве подрібнення швидкозагартованого матеріалу. Фрагментація швидкозагартованих лусочок іде нерівномірно. Так, у зразку із товщиною 500 мкм спостерігається суміш частинок як великих розмірів близько 20 мкм, так і маленькі частинки розміром близько одного мікрметра (див. рис. 1,а). Подальше збільшення деформації веде до зменшення розмірів частинок великої фракції, які не перевищують 10 мкм (див. рис. 1,б). Із подальшим зростанням деформації розмір частинок великої фракції продовжує зменшуватись і стає бли-

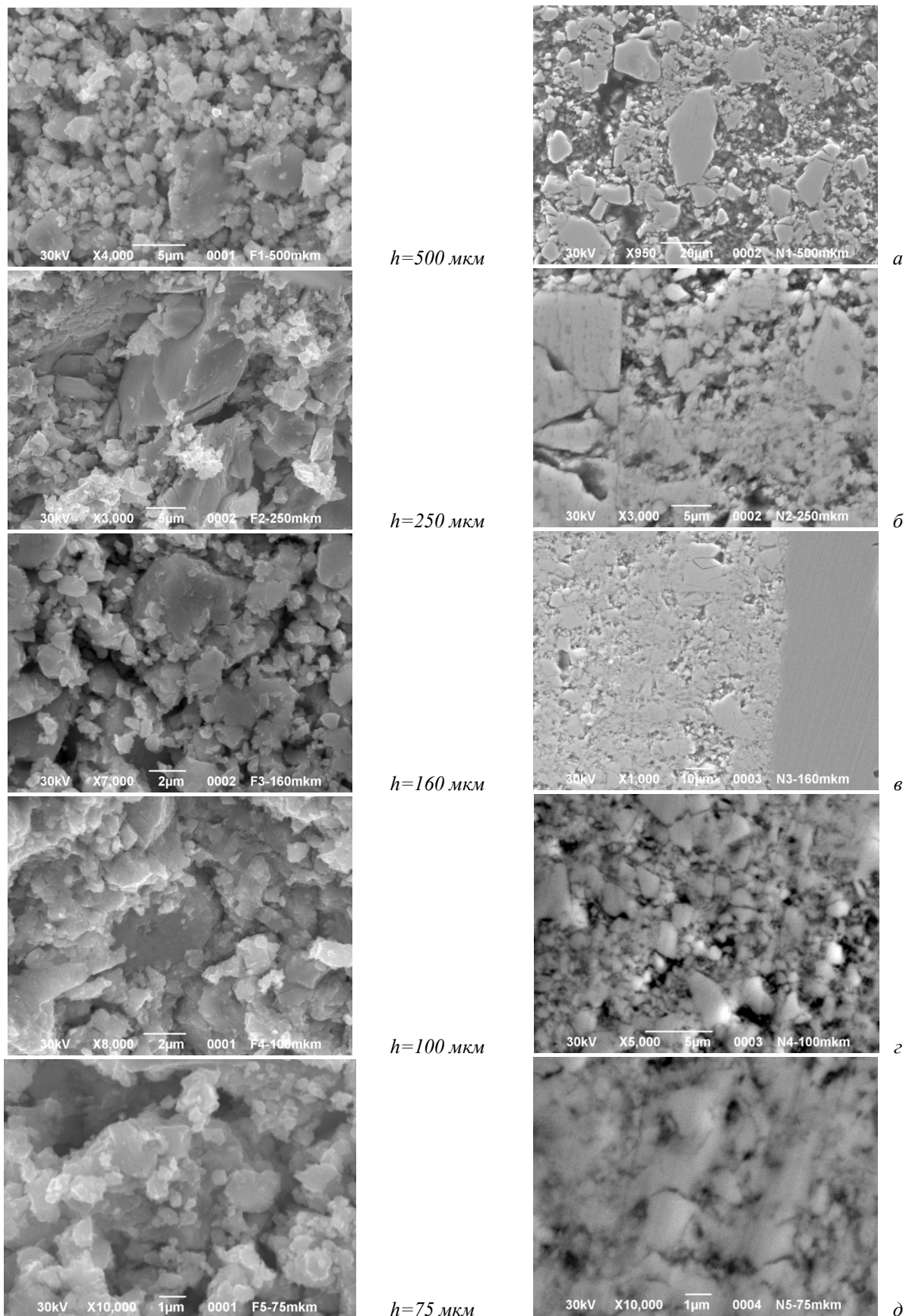


Рис. 1. Еволюція мікроструктури сплаву  $Nd_{13.5}Fe_{73.3}Co_{6.7}Ga_{0.5}V_6$  в залежності від товщини зразка (злам та поперечний перетин)

зько 5 мкм (див. рис 1,в). Із наступним зменшенням товщини зразка структура стає практично гомогенною і має майже однорідний розподіл за розмірами складових, меншими одного мікрометра (див.

рис. 1,г, д), проте у зразку з  $h=100$  мкм ще спостерігають частки, розмір яких складає 2...3 мкм (див. рис. 1,г).

На рис. 2 представлено структуру зразка, який зазнав найвищого ступеня деформації (найменша товщина 55 мкм) та злам швидкозагартованої стрічки. Чітко видно, що кінцевий зразок із швидкозагартованим матеріалом має розміри зрівняльні з товщиною вихідної швидкозагартованої стрічки, яка не є гомогенною за своєю природою.

Відомо, що мікроструктура швидкозагартованих сплавів не є однорідною, що пов'язано з різними швидкостями охолодження металу при гартуванні

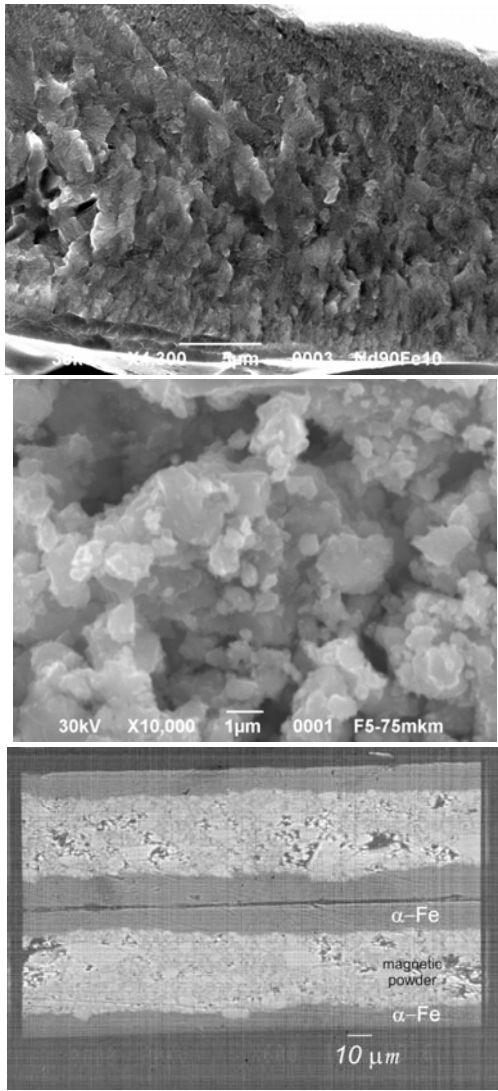


Рис. 2. Мікроструктура вихідної швидкозагартованої стрічки сплаву  $Nd_{13.5}Fe_{73.3}Co_{6.7}Ga_{0.5}B_6$  (а) після деформації товщина зразка 55 мкм (злам) та (б). поперечний перетин (в)

на барабан. Можна виділити декілька зон: поблизу контактної поверхні, найбільша швидкість гартування, спостерігаються високодисперсні кристаліти маленького розміру, проте з вільного боку та у середині стрічки розмір кристалітів значно більший. Така неоднорідність у вихідній структурі має суттєвий вплив на подрібнення матеріалу під час волочіння і прокатки.

За даними рентгеноструктурного аналізу, зразки після деформації волочінням та прокаткою містять фазу  $Nd_2Fe_{14}B$ . На рентгенограмах деформованих

зразків не спостерігається розширення дифракційних ліній (рис. 3).

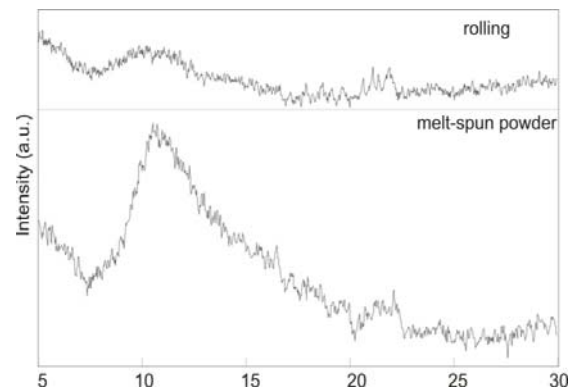


Рис. 3. Дифрактограма сплаву  $Nd_{13.5}Fe_{73.3}Co_{6.7}Ga_{0.5}B_6$  після деформації, товщина зразку 250 мкм та вихідний швидкозагартований сплав

За даними магнітних вимірювань На рис. 4. наведено петлю гістерезису для зразка з  $d=1,2$  мм, коерцитивна сила якого становить 9,5 кОм, що перевищує цю величину для вихідного швидко загартованого сплаву.

а)  
б)

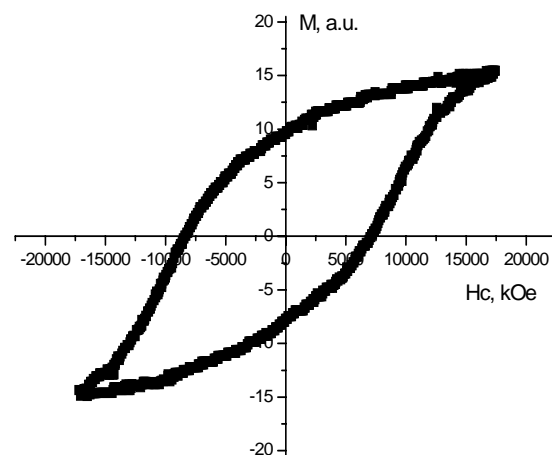


Рис. 4. Крива гістерезису швидкозагартованого сплаву  $Nd_{13.5}Fe_{73.3}Co_{6.7}Ga_{0.5}B_6$  після деформації, товщина зразка 1,2 мм

На рис. 5 наведено криві розмагнічування за намагніченістю та індукцією для зразків після прокатки з  $h=500$  та 190 мкм, виміряні в площині та перпендикулярно до напрямку деформації. Як видно, величини коерцитивної сили виміряні в різних напрямках суттєво відрізняються для обох зразків, але із зростання деформації ця різниця зменшується від 30 до 10 % відповідно. Така відмінність магнітних властивостей за напрямком говорить про анізотропну природу деформованого матеріалу. Проте із збільшенням деформації зразок стає ізотропним.

Така трансформація може бути продемонстрована за допомогою залежності коерцитивної сили від товщини деформованого зразка, яка наведена на рис. 6.

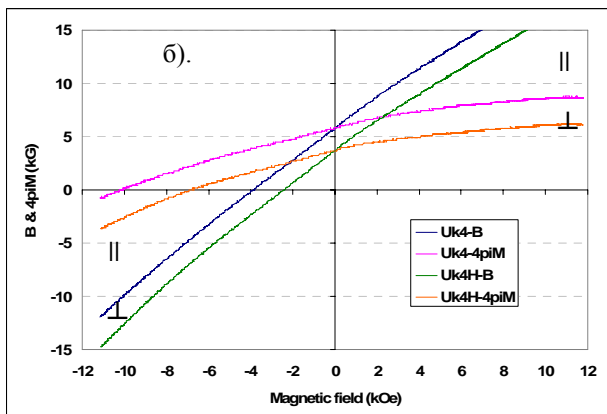
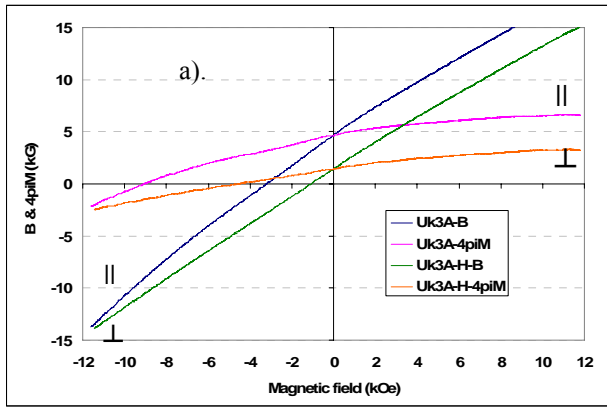


Рис. 5. Криві розмагнічування для швидко загартованого сплаву  $Nd_{13.5}Fe_{73.3}Co_{6.7}Ga_{0.5}B_6$  після деформації 500 мкм (а); 190 мкм (б). (Рожева (II) та жовта крива (⊥) – Hсj, синя (II) та зелена (⊥) – HсB)

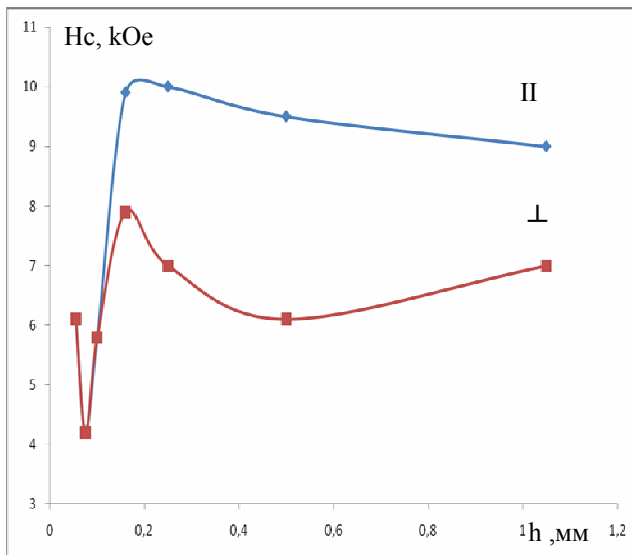


Рис. 6. Залежність коерцитивної сили виміряної в різних напрямках деформації

Як можна побачити, коерцитивна сила усіх зразків вдовж напрямку деформації більша, ніж у перпендикулярній площині, до певної товщини зразка, яка складає  $h=190$  мкм. Із подальшим збільшенням деформації (зменшення товщини) відбувається падіння коерцитивної сили та її величина, виміряна у

різних напрямках, стає однаковою. Можна стверджувати, що у зразку зникає анізотропія і він стає ізотропним, що пов'язано з випадковим розташуванням осі с.

Для оптимізації магнітних властивостей було проведено термічну обробку зразків у діапазоні  $650...950$  °С.

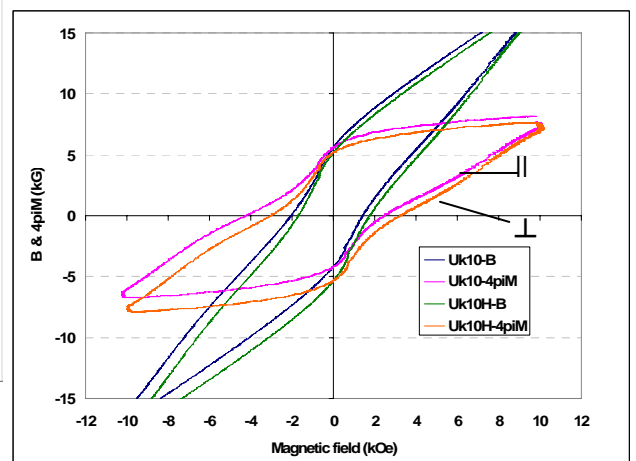
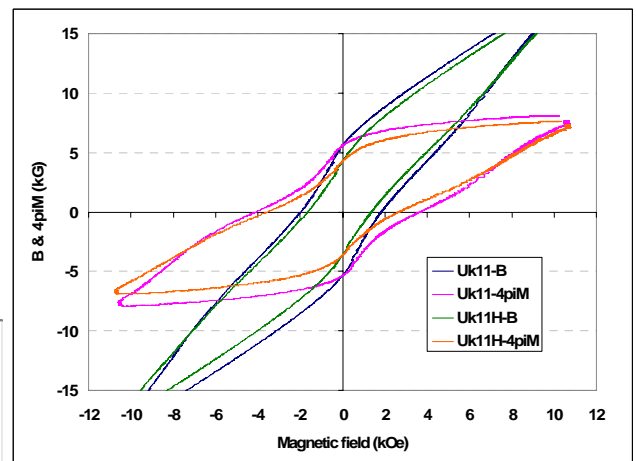
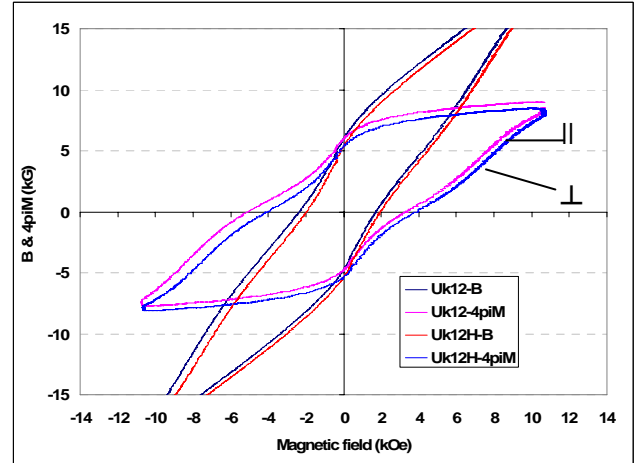


Рис. 7. Петлі гістерезису для деформованого швидко загартованого сплаву  $Nd_{13.5}Fe_{73.3}Co_{6.7}Ga_{0.5}B_6$  після термічної обробки  $T=650, 700$  та  $750$  °С. (Позначення на рис. 5)

Однак за результатами магнітних вимірювань, було встановлено, що відпалювання не сприяє збільшенню коерцитивної сили та залишкової індукції, а, навпаки, веде до погіршення магнітних властивостей. Крім того на кривій розмагнічування спостерігається перегин, що є свідченням двофазної поведінки сплаву. Тобто сплав складається з магнітом'якої фази, яка перемагнічується у невеликих магнітних полях, за рахунок низької коерцитивної сили, та висококоерцитивної магнітожорсткої фази. Крім того, не спостерігається суттєвої різниці у величинах коерцитивної сили, виміряних у різних напрямках, на відміну від зразків після деформації (рис. 7).

На рис. 8 наведено залежність коерцитивної сили від температури термічної обробки для деформованого та швидкозагартованого матеріалу.

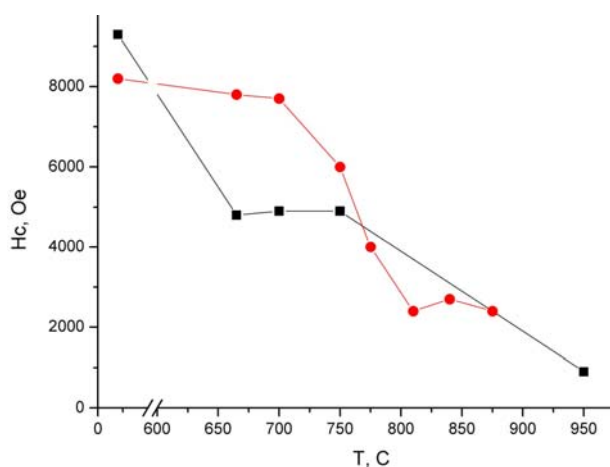


Рис. 8. Залежність коерцитивної сили швидко загартованого сплаву від температури термічної обробки (червоний цвіт – швидкозагартований сплав, чорний цвіт – після деформації  $d=1,2$  мм)

Як можна побачити, падіння магнітних властивостей у деформованих зразках починається значно раніше, ніж для швидкозагартованого сплаву. Значне зменшення  $H_c$  для вихідного сплаву відбувається лише після  $T=700$  °C, проте результатом термообробки деформованого зразку стає падіння  $H_c$  майже у двічі. Подальше погіршення магнітних властивостей може бути пов'язано, як з збільшенням розміру зерна, так і з структурно-фазовими перетвореннями.

## ОБГОВОРЕННЯ

Деформація швидкозагартованих сплавів  $Nd_{13,5}Fe_{73,3}Co_{6,7}Ga_{0,5}B_6$  методами волочіння та прокатки супроводжується не лише подрібненням вихідних швидкозагартованих стрічок, але сприяє структурно-фазовим перетворенням. Так, інші автори спостерігали, що при інтенсивній пластичній деформації крученням литих та швидкозагартованих сплавів R-Fe-B відбувається розпад основної кристалічної фази  $Nd_2Fe_{14}B$  на аморфну складову, та з подальшим збільшенням деформації відбувається нанокристалізація з аморфної фази чистого  $\alpha$ -Fe з розміром кристалітів 10 нм [9]. Отримані результати та аналіз робіт інших авторів [10-13] дозволяє при-

пустити наступний механізм перетворень у сплаві під час волочіння та прокатки. На початковому етапі деформації відбувається фрагментація вихідного матеріалу, яка є неоднорідною, за рахунок неомогенної вихідної структури загартованої стрічки із накопиченням дефектів вакансійного типу у структурі [14-15]. Це, в свою чергу, викликає утворення високонерівноважного стану з розміром зерен порядку десятків нанометрів та локальним перерозподілом атомів Nd, Fe та B. Таким чином, відбувається розпад основної магнітної фази  $Nd_2Fe_{14}B$  та утворення областей, збагачених на залізо, але розмір таких локальних областей, збагачених на залізо, не перевищує 20 нм, критична довжина для ефективної обмінної взаємодії між магнітожорсткою та магнітом'якою фазою [16], що підтверджується даними магнітних вимірювань – гладка крива розмагнічування (див. рис. 4,5). Нажаль, стандартним методом рентгеноструктурного аналізу або магнітними вимірюваннями не можливо спостерігати утворення локальних областей, збагачених на залізо. Проте термічна обробка деформованих зразків веде до інтенсивної рекристалізації та зростання розміру зерен  $\alpha$ -Fe, оскільки енергія активації для  $\alpha$ -Fe нижча, ніж для основної магнітної фази  $Nd_2Fe_{14}B$ . Що підтверджується появою двофазної поведінки кривої розмагнічування після термічної обробки (див. рис. 7).

## ВИСНОВКИ

Як було показано, інтенсивна деформація методом волочіння та прокатки швидкозагартованого сплаву  $Nd_{13,5}Fe_{73,3}Co_{6,7}Ga_{0,5}B_6$  дозволяє отримувати тонкі магніти із гладкою кривою розмагнічування та високою величиною коерцитивної сили. Фрагментація швидкозагартованого сплаву під впливом інтенсивної деформації чутлива до структури вихідної швидко загартованої стрічки. Із зростанням величини деформації відбувається структурне перетворення у сплаві, що супроводжується перерозподілом елементів та утворенням областей, збагачених на залізо. Термічна обробка веде до погіршення магнітних властивостей за рахунок рекристалізації та зростання зерен  $\alpha$ -Fe.

Застосування такого методу для виготовлення мініатюрних магнітів є перспективним, оскільки відкриває безліч технологічних можливостей, серед яких є деформація волочінням і прокаткою магнітного матеріалу з високими магнітними параметрами у різноманітних оболонках – діамантних, біметалевих або на базі сплавів нікелю.

## ЛІТЕРАТУРА

1. O. Cugat, G. Reyne, J. Delamare, H. Rostaing. Novel magnetic micro-actuators and systems (MAG-MAS) using permanent magnets // *Sensors and Actuators, A: Physical*. 2006, v. 129, p. 265-269.
2. A. Walther, C. Marcoux, B. Desloges, R. Grechishkin, D. Givord, and N.M. Dempsey. Micro-patterning of NdFeB and SmCo magnet films for integration into micro-electro-mechanical-systems // *J. Mag. Mag. Mat.*, 2009, v. 321, p. 590-594.

3. P. Pennarun, C. Rossi, D. Estève, R-D. Colin. *Deformation*". Wiley-Vch Verlag GmbH & Co. KGa, Weinheim, 2004, p. 165-169.
- Single use, robust, MEMS based electro-thermal microswitches for redundancy and system reconfiguration // *Sensors and Actuators A: Physical*. 2007, v. 136, p. 273-281.
4. B. Wagner and, W. Benecke. *Microsystem Technologies*. Berlin: Springer Verlag, 1990, p. 838.
5. C. Yan, X. Zhao, G. Ding, C. Zhang, and B. Cai // *J. Micromech. Microeng.* 2001, v. 11, p. 113.
6. J. Töpfer, B. Pawlowski, and D. Schabbel. NdFeB Thick Films For Magnets Applications // *Proceedings of the 18th International Workshop on High Performance Magnets and their Applications*. Annecy, France, 2004 p. 828-835.
7. G. Rieger et al. Nd-Fe-B permanent magnets (thick films) produced by a vacuum-plasma-spraying process // *J. Appl. Phys.* 2000, v. 87, p. 5329-5331.
8. N.M. Dempsey, N.V. Kornilov, and O. Cuga. Thick Hard Magnetic Films for MEMS: some Key Issues // *Proceedings of the 18th International Workshop on High Performance Magnets and their Applications*. Annecy, France, 2004 p. 779-791.
9. D.V. Gunderov, A.G. Popov, N.N. Schegoleva, V.V. Stolyarov, A.R. Yavary // *Phase Transformation in Crystalline and Amorphous Rapidly Quenched Nd-Fe-B Alloys under SPD, "Nanomaterials by Severe Plastic*
10. A.G. Popov, V.S. Gaviko, A.S. Ermolenko, N.N. Schegoleva, V.V. Stolyarov, and D.V. Gunderov // *Proceedings of the XVI international Workshop on Rare-earth magnets and their applications*, Japan, 2000, p. 621-630.
11. Wei Li, Lanlan Li, Yun Nan, Xiaohong Li, and Xiangyi Zhanga and et al. // *Appl. Phys. Lett.* 2007, v. 91, p. 062509 (1-3).
12. Wei Wu, Defeng Guo, Wei Li, Lanlan Li, Hongyu Sun, Xiangyi Zhang, Xiaohong Li and Baoting Liu // *J. Appl. Phys.* 2008, v. 104, p. 086103 (1-3).
13. Wei Li, Xiaohong Li, Defeng Guo, Kiminori Sato, Dmitry V. Gunderov, Vladimir V. Stolyarov, and Xiangyi Zhang // *Appl. Phys. Lett.* 2009, v. 94, p. 231904(1-3).
14. J.H. Perepezko, K.E. Kimme, R.J. Hebert // *Journal of Alloys and Compounds*. 2009, v. 483, p. 14-19.
15. K. Lua and N. Hansen // *Scripta Materialia*, 2009, v. 60, p. 1033-1038.
16. Skomski and Coey. Giant energy product in nanostructured two-phase magnets // *Phys. Rev. B*, 1993, v. 48, p. 15812-15816.

Статья поступила в редакцию 14.10.2009 г.

### МИНИАТЮРНЫЕ ПОСТОЯННЫЕ МАГНИТЫ НА БАЗЕ СПЛАВА Nd-Fe-B, ПОЛУЧЕННЫЕ МЕТОДОМ ИНТЕНСИВНОЙ ДЕФОРМАЦИИ

*А.М. Бовда, В.А. Бовда, Г.С. Кошкарёв, Л.В. Онищенко, А.С. Тортика,  
Б.А. Авраменко, А.Г. Равлик*

Интенсивная деформация быстрозакаленных сплавов может стать принципиально новым путем получения тонких магнитов с высокими магнитными свойствами. В работе исследована структура и магнитные свойства деформированного быстрозакаленного магнитного сплава  $Nd_{13.5}Fe_{73.3}Co_{6.7}Ga_{0.5}B_6$ . Установлено, что деформация сплава происходит не только за счет фрагментации исходного порошка, а также сопровождается структурно-фазовыми превращениями. Термическая обработка приводит к появлению двуфазного поведения кривой размагничивания.

### MINIATURE PERMANENT MAGNETS ON THE BASE OF Nd-Fe-B ALLOY PRODUCED BY SEVERE DEFORMATION

*O.M. Bovda, V.O. Bovda, G.S. Koshkarev, L.V. Onischenko, O.S. Tortika,  
B.A. Avramenko, A.G. Ravlik*

Severe deformation of melt-spun magnetic alloys can be a principally a new way for obtaining thin magnets with high magnetic performance. The aim of this paper was to study structure and magnetic properties of deformed  $Nd_{13.5}Fe_{73.3}Co_{6.7}Ga_{0.5}B_6$  melt-spun alloy. It was shown that deformation is not only due fragmentation of the initial powder, but accompanied by the phase and structure transformations. Heat treatment leads to the appearance of two-phase behaviour of demagnetisation curve.