

## PHÂN TÍCH HÌNH THÁI HỌC NAM CHÂM ĐẤT HIẾM Nd-Fe-B BẰNG PHƯƠNG PHÁP HIỂN VI KIM TƯƠNG VÀ HIỂN VI ĐIỆN TỬ QUÉT

**Lê Công Quý, Nguyễn Văn Vượng, Đỗ Hùng Mạnh, Vũ Hữu Tường**  
Viện Khoa học Vật liệu, Viện Khoa học và Công nghệ Việt Nam  
Số 18 Hoàng Quốc Việt, quận Cầu Giấy, Hà Nội  
E-mail: lequy\_2002@yahoo.com

### TÓM TẮT

Đã tiến hành nghiên cứu hình thái học nam châm chứa đất hiếm NdFeB chế tạo bằng phương pháp thiêu kết trên kính hiển vi kim tương và kính hiển vi điện tử quét (FESEM). Các mẫu nam châm được mài bóng bằng bột kim cương hoà trong keroxin và ăn mòn tâm thực bằng dung dịch 3% Nital.

Ảnh hiển vi kim tương và hiển vi điện tử quét cho phép xác định kích thước hạt (~ 5-30 $\mu$ m), sự phân bố các hạt và các vùng biên hạt, độ xốp của mẫu. Thành phần pha của các hạt và biên hạt được xác định bằng phân tích phổ năng lượng X-ray (EDX). Thành phần hoá học trong các hạt tương ứng công thức pha từ cứng Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B, tại các biên hạt là vùng giàu Nd.

Kết quả nghiên cứu được sử dụng để hoàn thiện quy trình công nghệ chế tạo nam châm vĩnh cửu NdFeB chất lượng cao.

**Từ khoá (Keywords):** Nd-Fe-B magnets, structure, morphologic analysis, SEM, metallographic microscope

### GIỚI THIỆU

Quy trình công nghệ chế tạo nam châm vĩnh cửu dạng thiêu kết từ hợp kim chứa đất hiếm có các công đoạn như sau [1-2]: Nấu hợp kim - Nghiền thô - Nghiền tinh - Ép định hình (ép sơ bộ trong từ trường dị hướng và ép đẳng tĩnh) - Thiêu kết - Ủ nhiệt - Nạp từ và đo các thông số.

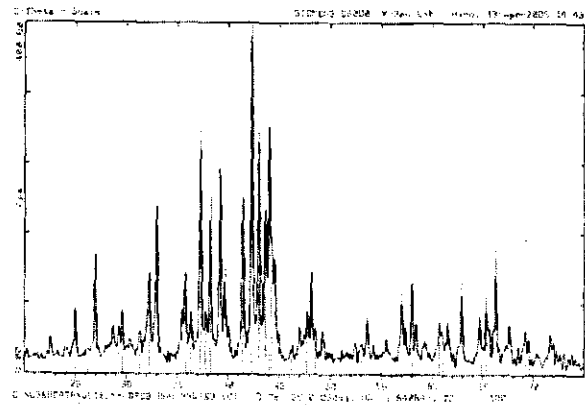
Để ổn định quy trình chế tạo chế tạo nam châm thiêu kết với giá trị tích năng lượng từ cực đại (BH)<sub>max</sub> ~ 30-35MGOe, hợp kim ban đầu với thành phần pha Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B có dư lượng nhỏ Nd mà không pha tạp chất đã được lựa chọn. Phẩm chất của nam châm còn được xác định bởi quá trình công nghệ tác động lên giá trị các đại lượng: cảm ứng từ dư B<sub>r</sub>, trường kháng từ H<sub>c</sub> và hệ số vuông góc  $\gamma$ . Giá trị B<sub>r</sub> được nâng cao bằng việc giảm thiểu kích thước hạt đến mức có thể. Giảm kích thước hạt đến giá trị kích thước đơn đô men và phân lập các hạt bằng các lớp biên hạt phi từ giàu Nd nhằm nâng cao

giá trị H<sub>c</sub> và  $\gamma$ . Như vậy vi cấu trúc của nam châm ảnh hưởng tới chất lượng của chúng.

Để xác định ảnh hưởng của các khâu công nghệ như nghiền, ép viên, thiêu kết trong quá trình chế tạo nam châm tới vi cấu trúc vật thể, gián tiếp là tới chất lượng nam châm, đã tiến hành nghiên cứu hình thái học các mẫu nam châm bằng hiển vi kim tương và hiển vi điện tử quét (SEM). Đồng thời cũng xác định thành phần nguyên tố bằng phương pháp phân tích phổ năng lượng X-Ray (EDX). Mục đích của nghiên cứu là hỗ trợ việc hoàn thiện quy trình công nghệ chế tạo nam châm thiêu kết chất lượng cao.

### THỰC NGHIỆM

Trên hình 1 là giản đồ nhiễu xạ tia X chụp trên máy Simen D5000 cho mẫu bột của hợp kim ban đầu dùng để chế tạo nam châm thiêu kết. Sự trùng hợp vị trí của các đỉnh thực nghiệm và các vạch lý thuyết chứng minh pha của hợp kim có thành phần Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B.



Hình 1. Giản đồ nhiễu xạ tia X chụp kiểu mẫu bột của hợp kim ban đầu

Từ hợp kim ban đầu này đã tiến hành khâu nghiền bột với các chế độ khác nhau: nghiền mịn cơ học từ 3-6

giờ trong dung môi chống ô xy hoá, nghiền mịn theo phương pháp hành tinh; sau chu trình thiêu kết, mẫu được ủ 1,0 giờ tại nhiệt độ 650°C. Bảng 1 trình bày một số mẫu tiêu biểu.

Để nghiên cứu hình thái học bằng hiển vi kim tương và hiển vi điện tử quét, cũng như xác định thành phần hoá học của các hạt và biên hạt của các mẫu nam châm thiêu kết bằng phân tích EDX đã tiến hành quy trình xử lý mẫu như sau:

- Các mẫu được cắt bằng tia lửa điện theo hình khối chữ nhật kích thước 8x8x7mm hoặc 8x8x9mm, mặt cắt để khảo sát vuông góc chiều từ trường ép mẫu. Trường hợp cá biệt chọn mặt cắt để khảo sát đối chứng song song từ trường ép mẫu.
- Mẫu được đóng rắn trong epôxy, được mài thô, rồi mài bóng bằng bột kim cương có kích thước hạt đến 1µm sau đó ăn mòn tẩm thực bằng dung dịch 3% Nital trong thời gian 3 phút.

Bảng 1. Ký hiệu các mẫu xử lý trên kính hiển vi kim tương và hiển vi điện tử

Tên mẫu	Ký hiệu chung	Đặc điểm của mẫu
Mẫu số 1	D <sub>3</sub>	nghiên cơ học 3,0 h
Mẫu số 2	D <sub>6</sub>	nghiên cơ học 6,0 h
Mẫu số 3	D30	nghiên hành tinh 30'
Mẫu số 4	D60	nghiên hành tinh 60'
Mẫu số 5	D30u	mẫu D30 có ủ 650°C
Mẫu số 6	D60u	mẫu D60 có ủ 650°C
Mẫu số 7	D30d	mẫu D30 dọc chiều từ trường ép

Các mẫu được khảo sát trên kính hiển vi kim tương AXIOVERT 405 theo chế độ bình thường và chế độ có độ tương phản cao (DIC), ảnh độ phóng đại từ 100-500 lần.

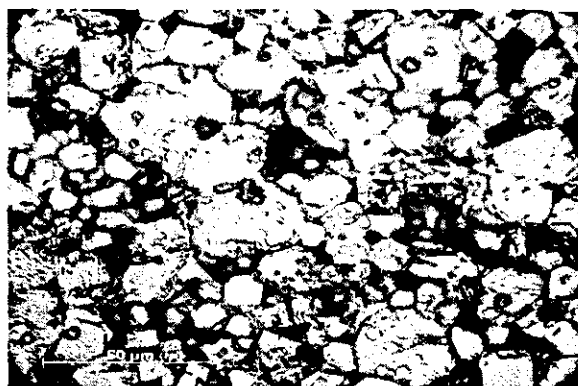
Ảnh hình thái học cũng được chụp trên kính hiển vi điện tử quét có độ phân giải cao (FESEM) với năng lượng 25KeV, ảnh có độ phóng đại 1000 lần.

Đồng thời cũng tiến hành phân tích EDX đối với một số vị trí đặc trưng trên bề mặt mẫu.

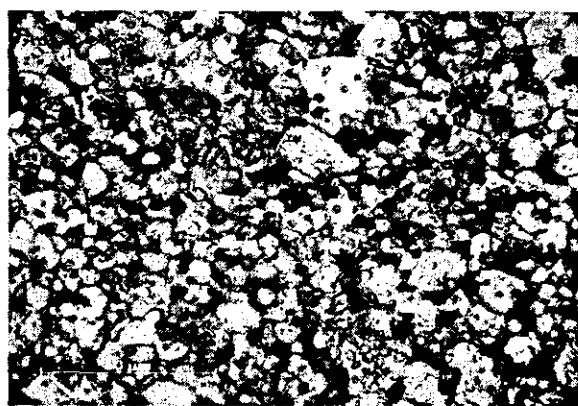
### KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

#### 1. Nghiên cứu hình thái học trên ảnh hiển vi kim tương và ảnh hiển vi điện tử quét.

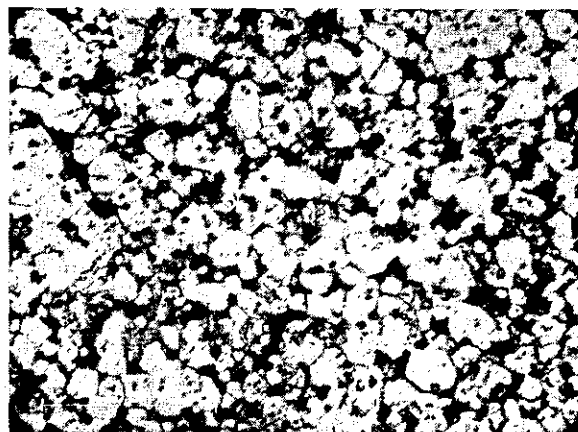
Các ảnh hiển vi kim tương và hiển vi điện tử quét tiêu biểu được trình bày trên các hình 2-4,6,7. Trên các ảnh xuất hiện các vùng có màu đen trắng khác nhau (vùng thẫm màu, vùng tối đen và vùng sáng trắng) tương ứng với các pha khác nhau. Ngoài ra ảnh cho phép nhận rõ hình dạng các hạt, các vùng lỗ trống và vùng



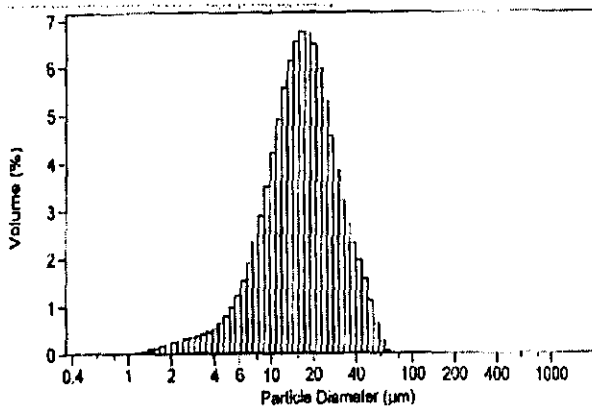
Hình 2. Ảnh kim tương mẫu số 1 ,DIC,500X



Hình 3. Ảnh kim tương mẫu số 2 ,DIC,500X



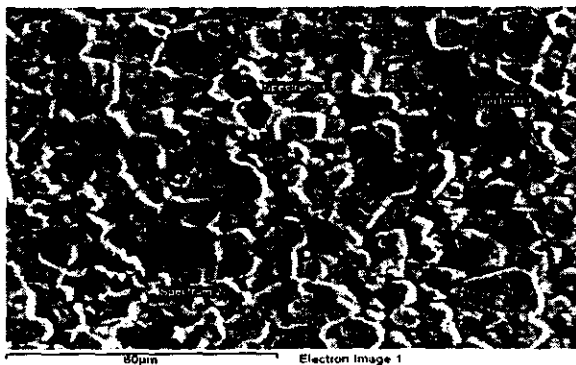
Hình 4. Ảnh kim tương mẫu số 4 ,DIC,500X  
đệm xen giữa các hạt. Đối với ảnh màu hiển vi kim tương các vùng khác nhau có màu sắc tương ứng là màu trắng, màu xanh và màu đen .



Hình 5. Phân bố kích thước hạt của bột NdFeB (xác định bằng tán xạ Laser qua dung dịch chứa bột)



Hình 6. Ảnh FESEM mẫu số 1; 25KeV;1000X,



Hình 7. Ảnh FESEM mẫu số 5; 25KeV;1000X

Quan sát ảnh cho phép đánh giá kích thước các hạt sau quá trình thiêu kết. Mẫu số 1 có nhiều hạt to (cỡ 20-40µm), mẫu số 6 có nhiều hạt có kích thước nhỏ (cỡ 5-10µm). Điều đó phù hợp với điều kiện nghiền mẫu: mẫu số 1 chỉ nghiền cơ học 3 giờ, mẫu số 6 có nghiền mịn hành tinh. Khi mẫu có các hạt kích thước lớn thì trong cùng điều kiện lực ép và chu trình thiêu kết như nhau, mẫu sẽ có nhiều lỗ trống, tỷ trọng mẫu nhỏ. Đã lựa chọn quy trình nghiền mẫu thích hợp để tạo các hạt có kích thước nằm trong khoảng 5 đến 30µm.

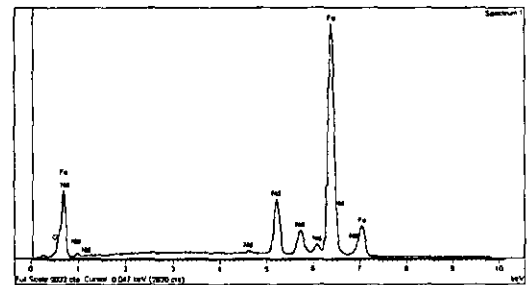
Sự đánh giá kích thước hạt bằng nghiên cứu hình thái học hoàn toàn phù hợp với kết quả xác định kích thước hạt trình bày trên hình số 5.

Phân tích ảnh kim tương mẫu số 7 được cắt song song với chiều từ trường ép dị hướng không cho thấy sự khác biệt nào về mặt hình thái học đối với các ảnh chụp mẫu cắt vuông góc chiều từ trường. Điều này chứng tỏ dị hướng hình học của các hạt là rất nhỏ và hầu như không đóng góp vào phẩm chất từ của nam châm.

## 2. Nghiên cứu thành phần hoá học bằng EDX

Kết quả phân tích phổ EDX (xem h.8) của các vùng sẫm màu (điểm 1 của mẫu 5 trên h.7) cho thấy thành phần trọng lượng nguyên tố Nd và Fe là 27,24% và 72,46% tương đương 12,56% và 86,22 at%. Nếu như không tính đến tỷ phần nguyên tử B (do nhẹ nên không thể hiện trong phổ EDX) có thể ngoại suy tỷ phần các nguyên tử Fe/Nd gần bằng 7 tương ứng pha 2-14-1 của nam châm Nd-Fe-B. Phân tích phổ EDX điểm 1 (sẫm màu) của mẫu 1 trên h.6 cũng cho kết quả tương tự.

Element	Weight%	Atomic%
O K	0.30	1.22
Fe K	72.46	86.22
Nd L	27.24	12.56
Totals	100.00	



Hình 8. Phổ EDX mẫu 5 điểm 1 (hình dưới) và định lượng các thành phần nguyên tố (bảng phía trên)

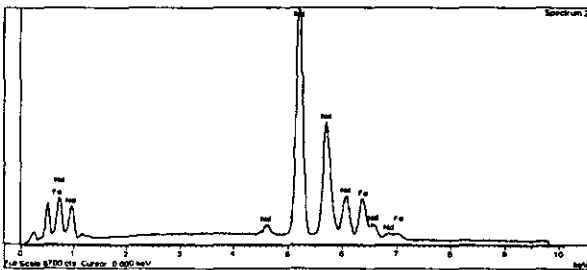
Tuy nhiên trên phổ EDX quan sát thấy đỉnh của Ô xy. Sự tồn tại của Ô xy với hàm lượng 1,22% thành phần nguyên tử là một trong các nguyên nhân hạn chế tích năng lượng  $(BH)_{max}$  của các mẫu nam châm chế tạo được.

Phân tích định lượng EDX vùng sáng (xem h.9) (điểm 2 của mẫu 1) cho thấy tại đây nguyên tố Nd chiếm đến 90,14% trọng lượng và 21,5 at%. Nếu bỏ qua trọng lượng nguyên tố B thì ngoại suy lượng nguyên tử Nd chiếm tới 78,50%, còn nguyên tố Fe chỉ chiếm 21,59%. Như vậy những vùng sáng giàu Nd. Chúng nằm tập trung tại các biên hạt, và phân tán đều đi khắp nơi sau quá trình ủ nhiệt (đối với mẫu số 5 và 6 đã qua ủ 60 phút tại 650°C). Phân tích phổ EDX điểm 2,3 của mẫu 5 trên trên h.7 (điểm sáng màu) cũng cho kết quả tương tự.

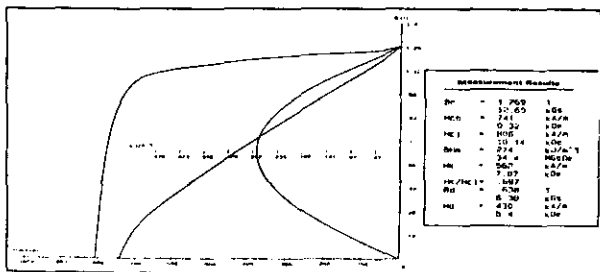
Từ việc nghiên cứu hình thái học và nghiên cứu thành phần hoá học bằng EDX đã tìm được quy trình thiêu kết và ủ nhiệt, chế độ ép mẫu thích hợp để các tích tụ hoà tan đều theo các biên hạt, và giảm thiểu lỗ trống, tăng mật độ mẫu đến 7,4g/cm<sup>3</sup>.

Trên hình số 10 trình bày đường cong khử từ đo được trên máy BH-Graph đối với một mẫu nam châm tiêu biểu có  $(BH)_{max} = 34,4MGOe$ .

Element	Weight%	Atomic%
Fe K	9.59	21.50
Nd L	90.41	78.50
Totals	100.00	



Hình 9. Phổ EDX mẫu số 1, điểm 2 (hình dưới) và định lượng các thành phần nguyên tố (bảng phía trên)



Hình 10. Đường cong khử từ của nam châm thiêu kết đo trên BH-Graph

## KẾT LUẬN

Các kết quả nghiên cứu hình thái học và nghiên cứu thành phần hoá học của các mẫu nam châm bằng EDX đã được sử dụng để hoàn thiện và ổn định quy trình công nghệ chế tạo nam châm thiêu kết Nd-Fe-B quy mô bán công nghiệp với tích năng lượng từ cực đại của các nam châm  $(BH)_{max}$  đạt giá trị ~ 30-35MGOe.

### Lời cảm ơn

Công trình được thực hiện trong khuôn khổ Đề tài NDT Việt nam-Malaysia 2005-2006. Các tác giả xin chân thành cảm ơn các đồng nghiệp Phòng Kim loại quý hiếm và Trung tâm đánh giá chất lượng VL thuộc Viện KHV L đã giúp đỡ thực hiện việc nghiên cứu.

### Tài liệu tham khảo

- [1] H.L.Patel et al. Sintethed Nd-Fe-B magnets, India-Asean Workshop on Nd-Fe-B magnets, Malaysia, August 2000, Preprint, pp.1-33.
- [2] Báo cáo KHK T đề tài "Fabrication of high Performance Nd-Fe-B magnets between AMREC, SIRIM Bhd, Malasia & IMS, VAST, VN", Hanoi, 7/2007
- [3] Z.S.Wronski, L.E.Collins.-Micostructure and mag-netic anisotropy in rapidly solidified NfFeB alloys; "Rare Earths, Preparation & Applications" Edited by R.G.Bautista, The Minerals&Materials Society, NY, 1988.