

## ZEISS Sigma 300

EBSD als Methode zur Bestimmung des Ausrichtungsgrads von Fe-Nd-B-Sintermagneten

# ZEISS Sigma 300

## EBSD als Methode zur Bestimmung des Ausrichtungsgrads von Fe-Nd-B-Sintermagneten

Autoren: Tvrtko Grubesa, Dr. Timo Bernthaler,  
Prof. Dr. Dagmar Goll, Prof. Dr. Gerhard Schneider

*Hochschule Aalen, Institut für Materialforschung,  
Deutschland*

Datum: Dezember 2016

**Rotoren elektrischer Generatoren werden mit Permanentmagneten ausgestattet. Hierfür verwendet man gesinterte Magnete auf Seltenerdmetall-Basis, die zu den stärksten Permanentmagnetwerkstoffen gehören, die momentan verfügbar sind. Aufgrund des hohen Produktionsvolumens ist der ressourcenschonende Einsatz von Seltenerdmetallen deshalb von großer Bedeutung. Ein optimiertes Herstellungsverfahren sollte auf die verbesserte Ausrichtung der hartmagnetischen Körner abzielen. Mit EBSD am ZEISS Sigma erhält man effizient Informationen über lokale Orientierungsverteilungen und kann quantitative Aussagen über die Qualität des Prozesses treffen.**

### Einleitung

Gesinterte Permanentmagnete auf Fe-Nd-B-Basis stellen mit einem hohen maximalen Energieprodukt  $(BH)_{\max} = 450 \text{ kJ/m}^3$  derzeit die stärksten Permanentmagnetwerkstoffe dar.

Aufgrund dieser herausragenden Eigenschaften werden sie auf Rotoren von elektrischen Generatoren und Motoren unterschiedlicher Größenordnung eingesetzt, um für eine effiziente Energiewandlung zu sorgen. Der ressourcenschonende Einsatz von Seltenerdmetallen wie Neodym ist bei der Herstellung von Sintermagneten wegen des hohen Produktionsvolumens (geschätzter Stand 2020: 17 Mrd. US\$) [1] von großer Bedeutung und erfordert genaue Kenntnis des Prozesses und Kontrolle des erreichten Ergebnisses.

Die ausgezeichneten extrinsischen Eigenschaften sind zum einen durch die intrinsischen Eigenschaften der eingesetzten Hartmagnetphase  $\text{Fe}_{14}\text{Nd}_2\text{B}$  zu erklären. Zum anderen hängen die extrinsischen Eigenschaften empfindlich von der Mikrostruktur ab, die bei der Herstellung gezielt eingestellt wird. Die Verteilung und genaue Zusammensetzung von Korngrenzenphasen, sowie das Vorhandensein von nicht-magnetischen Bestandteilen und Verunreinigungen wie Oxiden spielen eine wichtige Rolle bei der Optimierung der

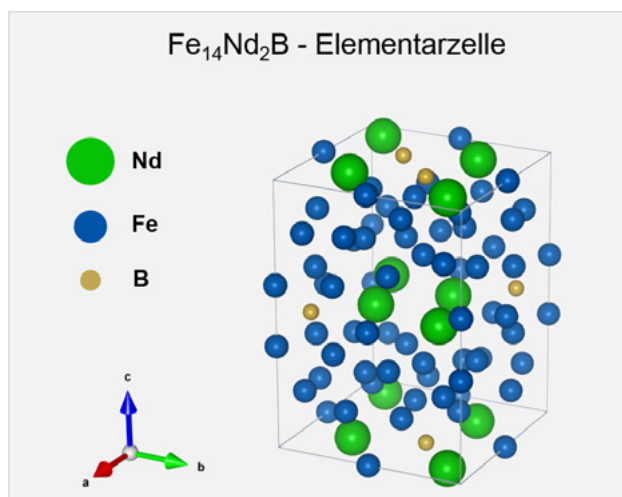
Mikrostruktur für den dauerhaften Einsatz solcher Magnete unter erhöhten Umgebungstemperaturen von bis zu 230 °C.

Die Ausrichtung der Körner der hartmagnetischen  $\text{Fe}_{14}\text{Nd}_2\text{B}$ -Phase ist bei der Herstellung ein entscheidender Schritt: die Körner werden dabei in einem von außen angelegten Magnetfeld entsprechend ihrer magnetischen Vorzugsrichtung parallel zum Magnetfeld ausgerichtet. Die erreichbare Remanenzpolarisation  $J_r$  des gefertigten Magneten und somit auch das maximale Energieprodukt  $(BH)_{\max}$  hängen dabei direkt vom Anteil der ideal ausgerichteten Körner ab. Neben lichtmikroskopischen Methoden zur qualitativen Beurteilung der Kornorientierung [2], ermöglichen Untersuchungen der Elektronenrückstrahlbeugungen (electron backscatter diffraction, EBSD) am Rasterelektronenmikroskop eine Bestimmung der Abweichungen von der idealen einachsigen Textur, welche von den  $\text{Fe}_{14}\text{Nd}_2\text{B}$ -Körnern gebildet wird. Diese Textureigenschaften werden in lokalen Bereichen gemessen. Sie können auf Basis eines Rechenmodells verwendet werden, um auf den Ausrichtungsgrad als quantitatives Maß für die anisotrope Kornorientierung zu schließen.

## Grundlagen zu Fe-Nd-B-Sintermagneten

### Anisotropie der hartmagnetischen $\text{Fe}_{14}\text{Nd}_2\text{B}$ -Phase

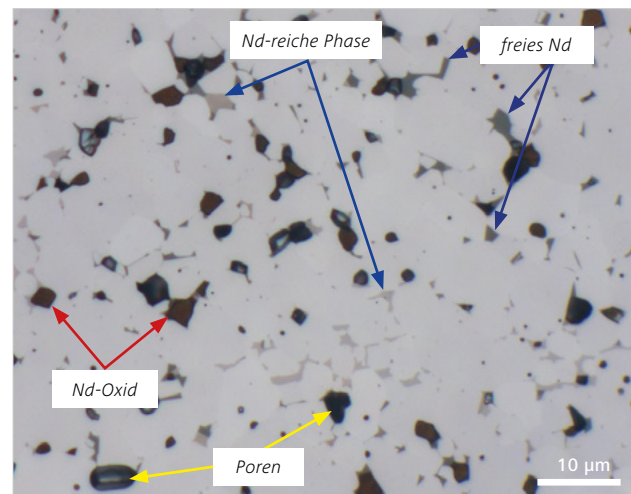
Das Materialsystem  $\text{Fe}_{14}\text{RE}_2\text{B}$  (RE = Element aus der Lanthanoid-Reihe) erreicht mit RE= Nd die höchste Sättigungspolarisation ( $J_s=1,6$  T). Die Elementarzelle von  $\text{Fe}_{14}\text{RE}_2\text{B}$  besteht aus 68 Atomen und besitzt tetragonale Kristallsymmetrie (Raumgruppe P42/mnm) mit den Gitterkonstanten  $a=b=0,88$  nm und  $c=1,22$  nm. Die Orientierung der magnetischen Momente nimmt im Grundzustand die energetisch günstigste Raumrichtung ein, wodurch die c-Achse der tetragonalen Elementarzelle die magnetische Vorzugsrichtung bildet. Dies führt zu einer besonders hohen magnetokristallinen Anisotropie (magnetokristalline Anisotropiekonstante  $K_1 = 4,3$  MJ/m<sup>3</sup>) in dieser Richtung, wodurch das hohe Koerzitivfeld der  $\text{Fe}_{14}\text{RE}_2\text{B}$ -Phase zu Stande kommt [3].



**Abbildung 1** Elementarzelle von  $\text{Fe}_{14}\text{Nd}_2\text{B}$  [4]. Vorzugsrichtung der Magnetisierbarkeit in Richtung der c-Achse.

### Herstellung und resultierende Eigenschaften von Fe-Nd-B-Sintermagneten

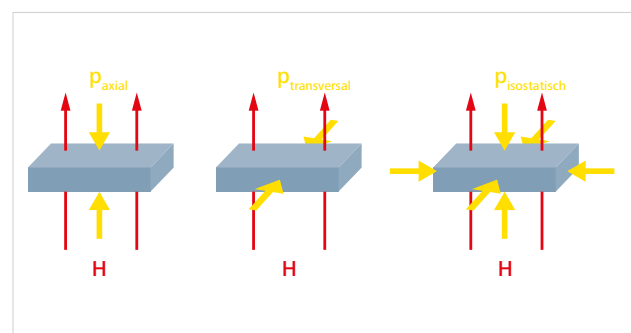
Beim Sinterverfahren wird eine Ausgangslegierung nach der Wasserstoffversprödung zu feinem Pulver gemahlen. Das Pulver wird im Magnetfeld gepresst und der Grünling anschließend bei ca. 1000 °C unter Schutzgas versintert sowie bei Temperaturen von 550 bis 600 °C ausgelagert. Der Wärmebehandlung kommt eine wichtige Rolle zu, da sich dabei metastabile Gefügebestandteile unter signifikanter Erhöhung der Koerzitivfeldstärke des Magneten in thermodynamisch stabile Phasen umwandeln [5]. Das resultierende Gefüge besteht aus der hartmagnetischen Phase und einem komplexen Aufbau der Korngrenzen, die herstellungsbedingt Oxide, binäre und ternäre Nd-Verbindungen sowie Poren enthalten.



**Abbildung 2** Gefügestruktur eines gesinterten und wärmebehandelten Fe-Nd-B-Magneten (Hellfeld-Aufnahme, Vergrößerung: 1000x).

Beim Pressen des Grünkörpers können verschiedene Pressmethoden zum Einsatz kommen, die sich bezüglich Anordnung von Feldrichtung  $H$  zu Pressrichtung  $p$  unterscheiden (s. Abb. 3). Dabei wird die materialintrinsic magnetokristalline Anisotropie ausgenutzt, um durch das Ausrichten und Pressen im externen Magnetfeld eine kristallographische Vorzugsrichtung zu erreichen. Aufgrund der starken einachsigen magnetokristallinen Anisotropie in Richtung der kristallographischen c-Achse wird im fertigen Magneten idealerweise eine einachsige Textur erwartet, bei der die Körner mit ihrer c-Achse genau parallel entlang der Feldrichtung ausgerichtet sind.

In der industriellen Fertigung stehen dafür die axiale, transversale und isostatische Pressung zur Verfügung. Mechanische Einflüsse beim Pressen der Grünkörper sowie Inhomogenitäten des ausrichtenden Magnetfelds beeinträchtigen eine ideale Ausrichtung.



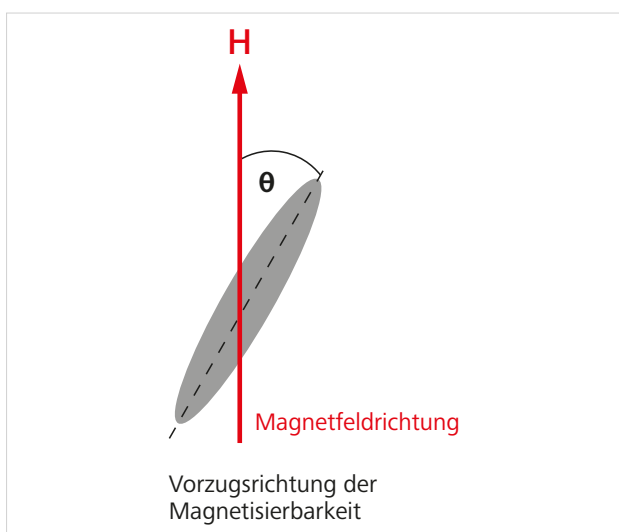
**Abbildung 3** Geometrische Anordnung von Pressrichtung und Magnetfeldrichtung im Fall der axialen, transversalen und isostatischen Pressung.

Abschließend wird der Magnet im externen Magnetfeld einmalig aufmagnetisiert. Eine verbesserte Ausrichtung der hartmagnetischen Körner steht dabei in direktem Zusammenhang zu einer Steigerung der Remanenzpolarisation des Magneten. Je mehr Kristallite mit ihrer c-Achse in uniaxialer Richtung ausgerichtet sind, desto stärker ist in dieser Richtung das Magnetfeld, das nach dem Aufmagnetisieren vom Magneten ausgeht und als Remanenzpolarisation  $J_r$  bezeichnet wird.

### Bestimmung des Ausrichtungsgrads $\langle \cos \theta \rangle$

Um die Abweichungen von der uniaxialen Texturrichtung zu quantifizieren und eine Aussage über die Orientierungsverteilung der  $\text{Fe}_{14}\text{Nd}_2\text{B}$ -Kristallite zu treffen, wird der Ausrichtungsgrad  $\langle \cos \theta \rangle$  bestimmt [6], [7]. Dieser stellt eine dimensionslose Größe dar, welche die Ausrichtung in einem Wertebereich von 0,5 (isotrop) bis 1 (ideal orientiert) quantifiziert. Die Bestimmung des Ausrichtungsgrads basiert auf den Aussagen des Stoner-Wohlfarth-Modells [8]. Dieses Modell beschreibt die Richtung der Magnetisierung eines ferromagnetischen ellipsoiden Ein-Domänen-Teilchens in einem äußeren Magnetfeld in Abhängigkeit seiner geometrischen Ausrichtung. Der Ausrichtungsgrad wird dabei aus der Orientierungsverteilung der Kristallite berechnet. Darin beschreibt die Orientierungsverteilung wie viele Kristallite mit ihrer Vorzugsrichtung der Magnetisierbarkeit einen bestimmten Orientierungswinkel  $\theta$  mit der idealen Texturachse einnehmen:

$$\langle \cos \theta \rangle = \frac{\int_0^{\pi/2} e^{-\frac{\theta^2}{2\sigma^2}} \sin \theta \cos \theta \, d\theta}{\int_0^{\pi/2} e^{-\frac{\theta^2}{2\sigma^2}} \sin \theta \, d\theta}$$



**Abbildung 4** Modellgrundlage nach Stoner-Wohlfarth [8] zur Berechnung des Ausrichtungsgrads  $\langle \cos \theta \rangle$ .

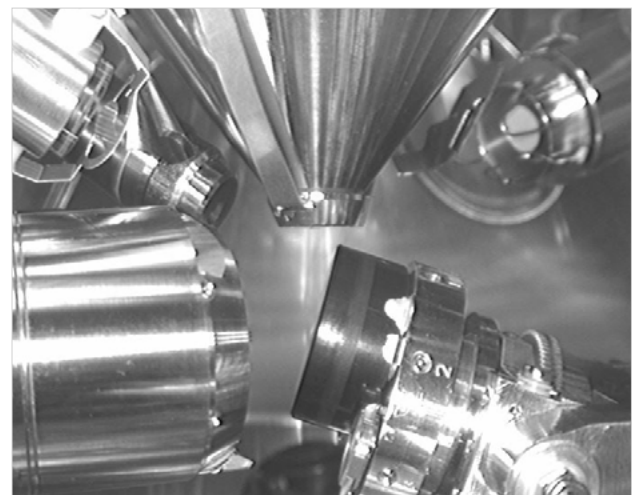
## Experimentelles

### Hardware

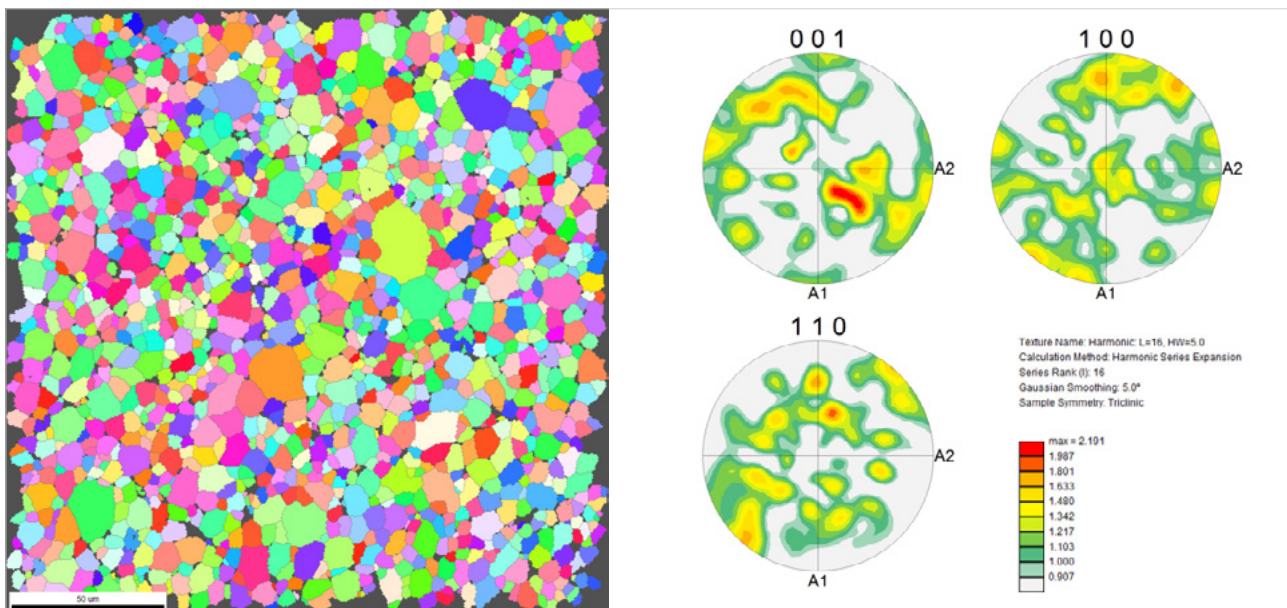
Die Untersuchungen wurden an einem ZEISS Sigma 300VP Feldemissions-Rasterelektronenmikroskop durchgeführt. Das FE-REM ist mit einer Hikari Super EBSD-Kamera und einem EDX-Detektor der Firma EDAX ausgestattet. Die EBSD-Mappings erfolgten mit der EDAX TEAM-Software 4.3, deren Bereinigung und Auswertung mit der OIM-Analysis-Software.

### Probenauswahl

Für die Untersuchung wurden kommerzielle Fe-Nd-B-Sintermagnete der Firma VACUUMSCHMELZE verwendet. Dabei wurden drei Magnete mit identischer Zusammensetzung (2 wt% Dysprosium) untersucht, die sich bezüglich der Pressmethode unterscheiden, und als axial, transversal und isotrop gepresster Typ vorlagen. Zusätzlich wurde ein isotroper Sintermagnet mit davon abweichender Zusammensetzung ausgewählt. Die materialographische Präparation der Proben wurde aufbauend auf einem klassischen mechanischen Schleif- und Polierprozess durchgeführt. Die Endpolitur erfolgte mit einer  $0,05 \mu\text{m}$ -Silica-Suspension, um ein artefakt- und topographiefreies Gefüge einzustellen.



**Abbildung 5** Probenposition im Elektronenmikroskop ZEISS Sigma 300 VP für EBSD-Messung. Kippung der Probe um  $70^\circ$  bezüglich der Horizontalen. EBSD-Kamera links im Bild positioniert unter Azimutwinkel von  $25^\circ$  zur Senkrechten auf Probenfläche.



**Abbildung 6** EBSD-Mapping an einem nicht ausgerichteten Fe-Nd-B-Sintermagneten bestätigt die vorzugsrichtungsfreie Kornausrichtung.

## EBSD-Mappings zur Bestimmung des Ausrichtungsgrads

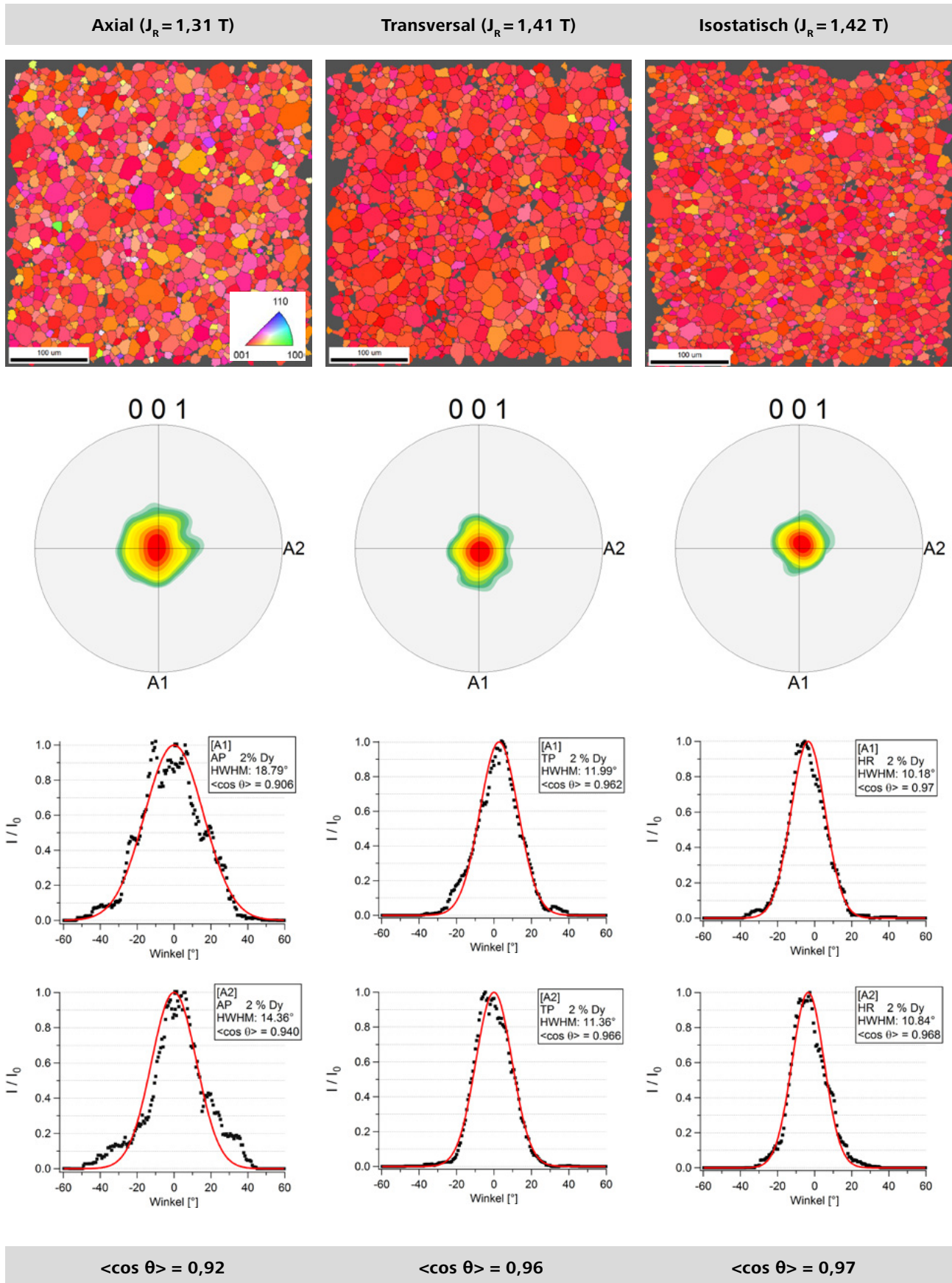
Die Mappings zur Bestimmung des Ausrichtungsgrads wurden auf einer Fläche von  $400\ \mu\text{m} \times 400\ \mu\text{m}$  und einer Schrittweite von  $0,7\ \mu\text{m}$  aufgenommen. Zum einen, um zu gewährleisten, dass eine ausreichende Anzahl an Körnern erfasst wird, sowie zum anderen eine ausreichende Auflösung der einzelnen Körner erreicht wird, deren Korngröße sich zwischen  $5$  und  $25\ \mu\text{m}$  bewegt.

Für die Indizierung der EBSD-Pattern wurde darauf verzichtet, die Korngrenzenphasen zu indizieren, da diese bei der gewählten Schrittweite wegen ihrer feinen Verteilung und Größe im sub-Mikrometer Bereich am Detektionslimit liegen. Für die Ausbildung von makroskopischen Texturen, wie sie hier untersucht werden, spielen diese zudem nur eine untergeordnete Rolle. Die Indizierung der  $\text{Fe}_{14}\text{Nd}_2\text{B}$ -Phase wurde mit den in Kapitel 2 genannten Kristallstrukturparametern durchgeführt.

Die Untersuchungen an der nicht ausgerichteten Probe (Abb. 6) zeigt die isotrope Verteilung der Kornorientierungen im Mapping dargestellt in der farblichen Kodierung der inversen Polfiguren. Die aus dem Mapping ermittelten Polfiguren beschreiben die Orientierungsverteilung der (001), (100) und (110) Netzebenen in Bezug auf die Probenrichtungen A1 und A2. Die schwarzen Flächen des Mappings ergeben sich zum einen durch die Poren des Gefüges, zum anderen durch die nicht indizierten Korngrenzenphasen.

Entsprechend der isotropen Orientierungsverteilung der hartmagnetischen Körner zeigt diese Probe einen geringen Wert für die Remanenzpolarisation von  $J_R = 0,74\ \text{T}$ .

Als Grundlage zur Berechnung des Ausrichtungsgrads der ausgerichteten Magnete (Abb. 7) dient eine Orientierungsverteilung in Form einer (001)-Polfigur, deren Halbwertsbreite (HWHM) dem Parameter  $\sigma$  in (1) entspricht. Um diesen zu bestimmen wurde die Polfigur entlang der A1- und A2-Achse geschnitten, die Gauß-Kurve an die Intensitätswerte angepasst und der Ausrichtungsgrad  $\langle \cos \theta \rangle$  gemäß (1) berechnet. Bedingt durch die gewählte Mappinggröße treten lokale Inhomogenitäten zu Tage, was sich in Asymmetrien der Polfigur zeigt. Diese machen es erforderlich, einen Mittelwert aus dem Ausrichtungsgrad für die A1- und A2-Richtung zu bilden, um einen quantitativ korrekten Wert zu erhalten. Aus den Mappings an den axial (AP), transversal (TP) und isostatisch gepressten (HR) Magneten geht hervor, dass die Sintermagnete aus der axialen und transversalen bzw. isostatischen Pressung sich mittels EBSD bezüglich ihres Ausrichtungsgrads sehr gut unterscheiden lassen. Bedingt durch den mechanischen Einfluss auf die Ausrichtung der Körner entlang des Magnetfelds bei der axialen Pressung, wird mit dieser Pressmethode ein Ausrichtungsgrad von  $\langle \cos \theta \rangle = 0,92$  erreicht, wobei die Remanenzpolarisation bei  $1,31\ \text{T}$  liegt.



**Abbildung 7** EBSD-Mapping (IPF) und (001)-Polfigur zu Magneten in axialer, transversaler und isostatischer Pressung. Aus den Schnitten der Polfigur entlang der A2 bzw. A1-Achse wurde der Ausrichtungsgrad  $\langle \cos \theta \rangle$  gemäß (1) berechnet und aus beiden Werten der Mittelwert gebildet.

Der Anteil der ideal ausgerichteten Körner ist beim transversal und isostatisch gepressten Magneten höher als beim axial gepressten, wobei für diese Pressungstypen ein Ausrichtungsgrad von  $\langle \cos \theta \rangle = 0,96$  bzw.  $0,97$  erreicht wird. Dieses Ergebnis korrespondiert sehr gut mit den Labormesswerten der Remanenzpolarisation, die bei diesen Magneten 1,41 T bzw. 1,42 T beträgt.

## Zusammenfassung

Die am ZEISS Sigma 300 VP Elektronenmikroskop mit EDAX Hikari Super EBSD-Kamerasystem durchgeführten EBSD-Mappings dienen dazu, den Ausrichtungsgrad von drei unterschiedlich gepressten Magneten identischer Zusammen-

setzung mit den Annahmen des Stoner-Wohlfarth-Modells zu berechnen. Die durchgeführten EBSD-Mappings haben einen hohen Informationsgehalt über lokale Orientierungsverteilungen und machen es möglich auf effiziente Weise in lokalen Bereichen quantitative Aussagen über den Ausrichtungsgrad von Sintermagneten zu treffen. Die Ergebnisse stehen dabei in hoher Übereinstimmung mit den Labormesswerten der Remanenzpolarisation der Proben. Das verwendete Modell zur Berechnung des Ausrichtungsgrads  $\langle \cos \theta \rangle$  hat sich in diesem Zusammenhang bewährt und ermöglicht es darüber hinaus, die mittels EBSD ermittelten Werte mit Messwerten aus anderen Messmethoden wie z.B. XRD-Texturmessungen und magnetometrischen Messungen abzugleichen.

## References:

- [1] S. Constantinides, 51<sup>st</sup> Annual Conference of Metallurgists, Niagara Falls (2000).
- [2] T. Grubesa, R. Löffler, T. Bernthaler, D. Goll, Prof. Dr. Gerhard Schneider  
Hellfeld- und Polarisationslichtmikroskopie an Sintermagneten auf Fe-Nd-B-Basis mittels ZEISS Axio Imager.Z2.m, Zeiss Whitepaper (2016)
- [3] D. Goll, H. Kronmüller, High-performance permanent magnets, *Naturwissenschaften* 87 (2000), 423–438.
- [4] K. Momma and F. Izumi, „VESTA 3 for three-dimensional visualization of crystal, volumetric and morphology data,“ *J. Appl. Crystallogr.*, 44, 1272-1276 (2011).
- [5] D. Goll, S. Schweizer, C. Wegierski, G. Schneider., Towards a better understanding of intergranular phases in Fe-Nd-B sintered magnets, *Phys. Status Solidi RRL* 9-10 (2012), 388–390.
- [6] A. Castro, M. Serna, R. Faria, N. Lima: Comparison of the Kerr effect and X-ray pole figure methods for determining crystallographic texture in PrFeB magnets, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol. 280, 2-3, 273–280 (2004)
- [7] E. A. Périgo, H. Takiishi, C. C. Motta, R. N. Faria, N. B. Lima: Determination of the crystallographic texture of sintered PrFeB magnets based on X-ray diffraction patterns, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol. 320, 14, e40-e42 (2008)
- [8] E.C. Stoner, E.P.A. Wohlfarth, A mechanism of magnetic hysteresis in heterogeneous alloys, *IEEE Trans. Magn.*, Vol. 27, No. 4 (1991).



**Carl Zeiss Microscopy GmbH**  
07745 Jena, Germany  
microscopy@zeiss.com  
www.zeiss.com/sigma



Nicht für therapeutische Zwecke, Behandlungen oder medizinische Diagnosen. Nicht alle Produkte sind in jedem Land erhältlich.  
Nähere Informationen erhalten Sie bei Ihrem ZEISS Vertriebsmitarbeiter.  
DE\_42\_013\_215 | CZ 12-2016 | Design, scope of delivery and technical progress subject to change without notice. | © Carl Zeiss Microscopy GmbH