

纳米晶永磁中面缺陷对畴壁钉扎机理的研究*

荣传兵 张宏伟 张 健 张绍英 沈保根

(中国科学院物理研究所与凝聚态物理中心磁学国家重点实验室,北京 100080)

(2002 年 7 月 10 日收到,2002 年 8 月 16 日收到修改稿)

畴壁钉扎模型的矫顽力可以表示为 $H_c = \alpha_k^{\text{pin}} 2K_1 / \mu_0 M_s - N_{\text{eff}} M_s$, 计算了微结构参数 α_k^{pin} 随面缺陷内磁性参数 A' 和 K_1' 的变化情况. 结果表明 α_k^{pin} 可以在很宽的范围里取值. 结合纳米单相 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 磁体, 研究了晶粒边界的磁性参数和晶界厚度对 α_k^{pin} 的影响, 当 $A'/A = 0.5$, $K_1'/K_1 = 0.1$, 以及晶界厚度 $r_0 = 3.32\text{nm}$ 时, α_k^{pin} 最大. 同时研究了纳米复相 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ 磁体的 α_k^{pin} 随 $\alpha\text{-Fe}$ 晶粒尺寸 r_0 的变化情况, 当 $r_0 = 7\text{nm}$ 时, α_k^{pin} 最大.

关键词: 面缺陷, 矫顽力, 钉扎机理, 纳米晶

PACC: 7530K, 7540M

1. 引言

矫顽力是磁性材料应用的重要指标, 因此对于矫顽力的研究非常必要. 微磁学认为, 一致转动决定的矫顽力可表示为^[1]

$$H_c = 2K_1 / \mu_0 M_s - N M_s, \quad (1)$$

其中 H_c 是内禀矫顽力, M_s 是自发磁化强度, K_1 是磁晶各向异性常数, N 是退磁因子. 但是无论 Sm-Co 磁体还是 NdFeB 磁体, 它们的实际矫顽力都要比 (1) 式得到的矫顽力低得多. 研究表明^[2], 矫顽力可以用下面的经验式来表示:

$$H_c = \alpha 2K_1 / \mu_0 M_s - N_{\text{eff}} M_s, \quad (2)$$

其中 α 是反映缺陷处各向异性 and 交换作用的微结构参数, N_{eff} 是有效退磁因子. 众所周知, 晶粒边界、堆垛层错、反相边界和相边界等平面缺陷, 由于它们的磁性参数与基体不同, 使得它们既可对畴壁有很强的钉扎作用, 又可以是形核中心. 由于钉扎模型和形核模型的矫顽力都可以用 (2) 式表示^[3], 所以根据 (2) 式判断矫顽力是畴壁钉扎还是反磁化畴形核一直存在着争论.

以钉扎模型为例, 对于窄平面缺陷, 即 $r_0 < \delta_B$ ($r_0 = \pi \sqrt{A/K_1}$ 是缺陷层), 假设缺陷由距离为 d 的 n 个原子层组成, 根据微磁学理论和 Heisenberg 模

型^[4], 矫顽力可以表示为

$$H_c = \frac{1}{3\sqrt{3}} \frac{2K_1}{\mu_0 M_s} \frac{\pi d}{\delta_B} \sum_i^n \left(\frac{A}{A^{i,i+1}} - \frac{K_1'}{K_1} \right) - N_{\text{eff}} M_s, \quad (3)$$

其中 $A^{i,i+1}$ 是第 i 和 $i+1$ 层之间的局部交换常数, K_1' 是第 i 层的局部各向异性常数, A, K_1 是基体的磁性参数. 假设面缺陷内相邻原子层具有相同的交换常数 A' , 以及每原子层具有相同各向异性常数 K_1' , 可以得到窄平面缺陷 ($r_0 < \delta_B$) 对畴壁钉扎所得到的 α_k^{pin} 值为^[2]

$$\alpha_{K_1}^{\text{pin}} = \frac{1}{3\sqrt{3}} \frac{\pi r_0}{\delta_B} \left(\frac{A}{A'} - \frac{K_1'}{K_1} \right). \quad (4)$$

如果面缺陷比畴壁厚, 即 $r_0 > \delta_B$, 其矫顽力由下式决定^[2]:

$$H_c = \frac{1}{2\mu_0 M_s} \frac{d\gamma}{dz} \Big|_{\text{max}} - N_{\text{eff}} M_s, \quad (5)$$

其中 $d\gamma/dz|_{\text{max}}$ 是畴壁能 $\gamma = 4\sqrt{AK_1(z)}$ 斜率的最大值. 文献 2 根据

$$K_1(z) = K_1(\infty) - \frac{\Delta K}{\text{ch}^2(z/r_0)}, \quad (6)$$

其中 $K_1(\infty)$ 是基体的 K_1 值, K_1' 是面缺陷中各向异性常数最低值, $\Delta K = K_1 - K_1'$, 对于 $\Delta K = 0.9K_1$, 可以得到厚平面缺陷 ($r_0 > \delta_B$) 对畴壁钉扎的矫顽力为^[2]

* 国家重点基础研究项目(批准号: G1998061303)和国家自然科学基金(批准号: 59971063)资助的课题.

$$H_c = \frac{2K_1(\infty)}{\mu_0 M_s} \left(\frac{2\delta_B}{2\pi r_0} \right) - N_{\text{eff}} M_s, \quad (7)$$

因此微结构参数为

$$\alpha_{k(2)}^{\text{pin}} = \frac{2\delta_B}{2\pi r_0}. \quad (8)$$

由(4)式可知,窄平面缺陷的 α_k^{pin} 与 r_0/δ_B 成正比,而由(8)式可知,厚平面缺陷的 α_k^{pin} 与 r_0/δ_B 成反比.为了确定面缺陷对畴壁钉扎所能获得的最大矫顽力,即确定 $\delta_B/r_0 \approx 1$ 时 $\alpha_{k(1)}^{\text{pin}}$ 和 $\alpha_{k(2)}^{\text{pin}}$ 的交点, Kronmüller 等人^[2]研究认为对于钉扎机理, $\alpha_k^{\text{pin}}(T)$ 的最大值为 0.3,但是 Liu 等人^[5]认为并没有这一限制.

最近几年,纳米晶永磁材料的研究是磁学研究的重点之一^[6-12].但是,在纳米晶永磁的矫顽力机理研究上进展不大^[8].例如,一些研究者认为纳米永磁的反磁化机理为形核模型^[9],而关于钉扎机理的观点也多有报道^[10].我们过去的工作则表明,矫顽力是介于二者之间的‘inhomogeneous pinning of nucleated type’^[11,12].鉴于这种现状,弄清面缺陷所决定钉扎机理的矫顽力大小很有必要.实验上单相纳米晶磁体晶粒边界非均匀区的宽度为 3—5nm, $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ 纳米复相磁体中所希望的 $\alpha\text{-Fe}$ 应介于硬磁相之间且为几个纳米宽.因此,本文把这种非均匀区和 $\alpha\text{-Fe}$ 相看作为平面缺陷,研究了这两种平面缺陷的钉扎作用,并且讨论了这两种面缺陷的厚度对 α_k^{pin} 的影响.同时,也检验了钉扎机理是否有 $\alpha_k^{\text{pin}}(T) \leq 0.3$ 这一限制.

2. 结果与讨论

采用文献[13]的假设,即

$$K_1(z) = K_1(\infty) - \frac{\Delta K}{\text{ch}^2(2z/r_0)}. \quad (9)$$

由于文献中面缺陷的厚度为 $2r_0$,而我们采用的面缺陷厚度为 r_0 ,所以(9)与(6)式有所不同.将(9)式以及 $\gamma = 4\sqrt{AK_1(z)}$ 代入(5)式,可以得到厚平面缺陷($r_0 > \delta_B$)对畴壁钉扎的矫顽力为

$$H_c = \frac{2K_1(\infty)}{\mu_0 M_s} \left(\frac{\delta_B}{\pi r_0} \right) \frac{\chi(1-p)}{\sqrt{y+p}} \frac{\sqrt{y}}{y+1} - N_{\text{eff}} M_s, \quad (10)$$

其中 $p = K'_1/K_1(\infty)$, $y = \frac{1}{4}[\sqrt{p^2 + 8p} - p]$, 令 $C =$

$\frac{\chi(1-p)\sqrt{y}}{\sqrt{y+p}y+1}$, 因此微结构参数为

$$\alpha_{k(2)}^{\text{pin}} = \frac{C\delta_B}{\pi r_0}. \quad (11)$$

因为(7)和(8)式是建立在 $\Delta K = 0.9K_1$ 的假设上,所以我们推导的(10)和(11)式更具普遍性.

为了研究面缺陷对畴壁的钉扎作用,设厚度为 r_0 的面缺陷把晶体分为三个区域,如图 1(a)所示, I 和 III 为均匀的基体区,交换常数和各向异性常数分别为 A 和 K_1 , II 为厚 r_0 的面缺陷,交换常数和各向异性常数如图 1(b)或(c)所示.其中图 1(b)是根据 $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 基体中析出 SmCo_5 的实验数据而假定的^[14].

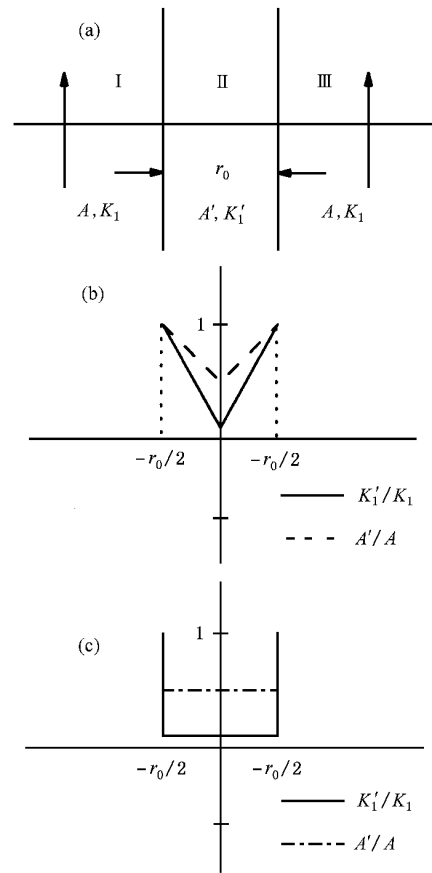


图 1 面缺陷将晶体分成三个区域示意图(a),缺陷区的磁性参数线性变化示意图(b)和缺陷区的磁性参数为恒定值示意图(c)

2.1. 单相 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 磁体晶粒边界对矫顽力的影响

理想磁体的晶粒边界只有一个原子层的过渡区域,但是实际的 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 磁体的晶粒边界有 3—5nm 的过渡区域,由于晶粒边界内的磁性参数并不是恒

定值^[14]，所以假设晶界内 $[-r_0/2, 0]$ 区域交换常数和各向异性常数线性下降，而 $[0, r_0/2]$ 区域则相应地线性升高(如图 1(b))。晶界对畴壁钉扎获得的最大矫顽力必须由(3)和(10)式确定。由于Nd₂Fe₁₄B磁体畴壁厚度 $\delta_B = \pi \sqrt{A/K_1} \approx 4.2\text{nm}$ (其中 $K_1 = 4.3 \times 10^6 \text{J/m}^3$, $A = 7.7 \times 10^{-12} \text{J/m}$)，而原子层厚度 $d \approx 0.2\text{nm}$ ，假设 $\delta_B = 20d$ ，则 $r_0 = nd$ 是晶界的厚度，则

$S = \frac{1}{20} \sum_i^n \left(\frac{A}{A^{i,i+1}} - \frac{K_1^i}{K_1} \right)$ 可根据晶界内每个原子层之间的 $A^{i,i+1}$ 和原子层的 K_1^i 求得。比较(3)与(10)式，即 $\frac{2K_1}{\mu_0 M_s} \frac{1}{3\sqrt{3}} \frac{\pi r_0}{\delta_B} \times S = \frac{2K_1}{\mu_0 M_s} \left(\frac{\delta_B}{\pi r_0} \right) \times C$ ，可以得到

$$\frac{r_0}{\delta_B} \Big|_{\alpha_k^{\text{pin}} = \max} = \frac{\sqrt[4]{27}}{\pi} \sqrt{\frac{C}{S}}, \quad (12)$$

$$\alpha_k^{\text{pin}} \Big|_{\max} = \frac{1}{\sqrt[4]{27}} \sqrt{C \times S}. \quad (13)$$

由于 C 和 S 与晶界内的交换常数 A' 和各向异性常数 K_1' 有关，因此 $\frac{r_0}{\delta_B} \Big|_{\alpha_k^{\text{pin}} = \max}$ 和 $\alpha_k^{\text{pin}} \Big|_{\max}$ 也是 A' 和 A_1' 的函数。图2和图3分别示出它们的关系。从图2和图3可以看出 α_k^{pin} 可以在很宽的范围里取值，并没有0.3这一极限。因此微结构参数 $\alpha_k^{\text{pin}} \leq 0.3$ 不能作为决定矫顽力机理的有效判据。这与文献[5]的结论基本一致，但在数值上有所不同。这主要是我们根据实验采用了面缺陷内参数连续变化的情况(即(3)式)，而文献[5]则假定面缺陷内参数不变(即(5)式)。

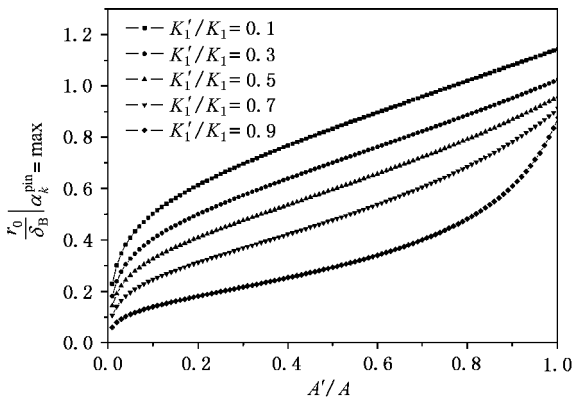


图2 $\frac{r_0}{\delta_B} \Big|_{\alpha_k^{\text{pin}} = \max}$ 与 A'/A 和 K_1'/K_1 之间的关系图

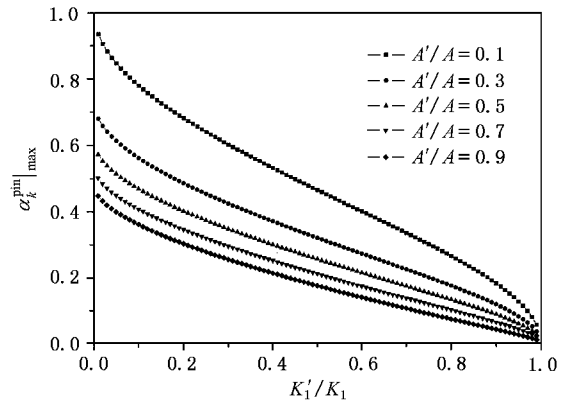


图3 $\alpha_k^{\text{pin}} \Big|_{\max}$ 与 A'/A 和 K_1'/K_1 之间的关系图

由(12)式和图2可知，晶界的磁性参数一定时， $\frac{r_0}{\delta_B} \Big|_{\alpha_k^{\text{pin}} = \max}$ 就可确定，因此当 $\frac{r_0}{\delta_B} < \frac{r_0}{\delta_B} \Big|_{\alpha_k^{\text{pin}} = \max}$ 时，矫顽力由(3)式决定，反之，由(10)式决定。由于实际纳米单相Nd₂Fe₁₄B磁体的晶界厚度约为3—5nm，因此对于不同的晶界磁性参数，我们考察了 $3\text{nm} \leq r_0 \leq 5\text{nm}$ 范围内微结构参数 α_k^{pin} 随 r_0 的变化情况，如图4所示。从图4可以看出，对于 $A'/A = 0.5$, $K_1'/K_1 = 0.1$ ，当 $r_0 = 3.32\text{nm}$ 时 α_k^{pin} 最大，而对于 $A'/A = 0.9$, $K_1'/K_1 = 0.1$ ，则当 $r_0 = 4.32\text{nm}$ 时 α_k^{pin} 最大。

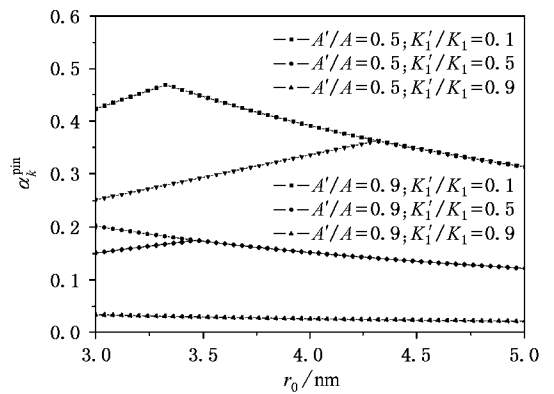


图4 晶界内不同磁性参数时 α_k^{pin} 随晶界厚度 r_0 的变化情况

2.2. 复相Nd₂Fe₁₄B/ α -Fe磁体的矫顽力

复相Nd₂Fe₁₄B/ α -Fe磁体中，通常希望 α -Fe晶粒尺寸为3—10nm，我们可以把它视作为Nd₂Fe₁₄B基体的面缺陷，但是不同于晶界的情况， α -Fe晶粒内的磁性参数恒定不变，如图1(c)所示，即 $K_1^{\alpha\text{-Fe}} = 4.6 \times 10^4 \text{J/m}^3$, $A^{\alpha\text{-Fe}} = 2.5 \times 10^{-11} \text{J/m}$ 。因此用(4)和(11)式

来确定 α_k^{pin} , 类似前面讨论单相 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 的方法, 得到

$$\frac{r_0}{\delta_B} \Big|_{\alpha_k^{\text{pin}} = \max} = \frac{\sqrt[4]{27}}{\pi} \sqrt{\frac{C}{b}}, \quad (14)$$

$$\alpha_k^{\text{pin}} \Big|_{\max} = \frac{1}{\sqrt[4]{27}} \sqrt{C \times b}, \quad (15)$$

其中 $b = \frac{A}{A^{\alpha\text{-Fe}}} - \frac{K_1^{\alpha\text{-Fe}}}{K_1}$, A 和 K_1 是 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 基体的磁性参数. 代入具体参数值, 可得 $\frac{r_0}{\delta_B} \Big|_{\alpha_k^{\text{pin}} = \max} = 1.75$,

$\alpha_k^{\text{pin}} \Big|_{\max} = 0.315$. 图 5 是复相 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ 磁体的 α_k^{pin} 随 $\alpha\text{-Fe}$ 晶粒尺寸 r_0 的变化曲线. 从图 5 可以看

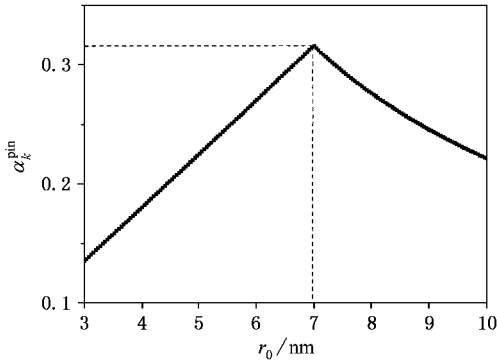


图 5 复相 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ 磁体的 α_k^{pin} 随 $\alpha\text{-Fe}$ 晶粒尺寸 r_0 的变化曲线

出 随 $\alpha\text{-Fe}$ 晶粒尺寸 r_0 的减小, 钉扎机理的矫顽力增加, 这与文献 [6, 8] 的结果一致. 有趣的是, 当 r_0 为 7nm 时, α_k^{pin} 最大, 即矫顽力最大. 随后, 矫顽力随 r_0 的减小而下降.

3. 结 论

1. 计算结果表明, $H_c = \alpha_k^{\text{pin}} 2K_1 / \mu_0 M_s - N_{\text{eff}} M_s$ 中的 α_k^{pin} 参数有较宽的范围, 微结构参数 $\alpha_k^{\text{pin}} \leq 0.3$ 不能作为决定矫顽力机理的有效判据.

2. 单相 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 磁体的 $\frac{r_0}{\delta_B} \Big|_{\alpha_k^{\text{pin}} = \max}$ 和 $\alpha_k^{\text{pin}} \Big|_{\max}$ 晶界内磁性参数 A' 和 K_1' 的函数, 对于 $A'/A = 0.5$, $K_1'/K_1 = 0.1$, 当 $r_0 = 3.32\text{nm}$ 时, α_k^{pin} 最大, 即矫顽力最大.

3. 复相 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ 磁体中, 如果将 $\alpha\text{-Fe}$ 晶粒考虑为面缺陷, 可以得到 $\frac{r_0}{\delta_B} \Big|_{\alpha_k^{\text{pin}} = \max} = 1.75$, $\alpha_k^{\text{pin}} \Big|_{\max} = 0.315$, 而且当 $\alpha\text{-Fe}$ 晶粒尺寸为 7nm 时, 矫顽力最大.

- | | |
|---|--|
| [1] Brown W F 1959 <i>J. Appl. Phys.</i> 30 1305 | [8] Hadjipanayis G C 1999 <i>J. Magn. Magn. Mater.</i> 200 373 |
| [2] Kronmüller H, Durst K D and Sagawa M 1988 <i>J. Magn. Magn. Mater.</i> 74 291 | [9] Goll D, Seeger M and Kronmüller H 1998 <i>J. Magn. Magn. Mater.</i> 185 49 |
| [3] Buschow K H J 1991 <i>Rep. Prog. Phys.</i> 54 1123 | [10] Hadjipanayis G C and Kim A 1988 <i>J. Appl. Phys.</i> 63 3310 |
| [4] Hilzinger H R and Kronmüller H 1977 <i>Appl. Phys.</i> 12 253 | [11] Zhang H W, Sun Z G, Zhang S Y, Han B S, Shen B G, Tung I C and Chin T S 1999 <i>Phys. Rev. B</i> 60 64 |
| [5] Liu J H, Luo H L and Wang J 1992 <i>J. Phys. D: Appl. Phys.</i> 25 1238 | [12] Zhang H W, Zhang S Y, Shen B G, Goll D and Kronmüller H 2001 <i>Chin. Phys.</i> 10 1169 |
| [6] Kneller E F and Hawig H 1991 <i>IEEE Trans. Magn.</i> 27 3588 | [13] Kronmüller H 1987 <i>Phys. Stat. Sol. (b)</i> 385 144 |
| [7] Zhang H W, Zhang S Y and Shen B G 1999 <i>Acta Phys. Sin.</i> 48 163 (in Chinese) 张宏伟、张绍英、沈保根 1999 <i>物理学报</i> 48 163] | [14] Goll D, Kleinschroth I, Sigle W and Kronmüller H 2000 <i>Appl. Phys. Lett.</i> 76 1054 |

The study of domain-wall pinning by inhomogeneities in nanocrystalline permanent magnets^{*}

Rong Chuan-Bing Zhang Hong-Wei Zhang Jian Zhang Shao-Ying Shen Bao-Gen

(State Key Laboratory of Magnetism , Institute of Physics and Center for Condensed Matter Physics , Chinese Academy of Sciences , Beijing 100080 , China)

(Received 10 July 2002 ; revised manuscript received 16 August 2002)

Abstract

The coercive force of the domain-wall pinning model can be expressed as $H_c = \alpha_k^{\text{pin}} 2K_1 / \mu_0 M_s - N_{\text{eff}} M_s$. The dependences of the microstructure parameter α_k^{pin} on the exchange and anisotropy constants of inhomogeneities are discussed in this paper. The results show that there is a wide range of the α_k^{pin} values. The effects of magnetic parameter and thickness of $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ grain boundary on the α_k^{pin} are also studied. It was found that α_k^{pin} reaches the maximum where $A'/A = 0.5$, $K'_1/K_1 = 0.1$ and the grain-boundary thickness $r_0 = 3.32\text{nm}$. α_k^{pin} of nanocomposite $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ magnets reaches the maximum when the grain size r_0 is 7nm .

Keywords : inhomogeneities , domain walls pinning , coercive force , nanocrystalline

PACC : 7530K , 7540M

^{*} Project supported by the State Key Program of Basic Research of China (Grant No. G1998061303) and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 59971063).