

Nd₂Fe₁₄B 单晶磁畴结构随厚度的变化

罗 阳 计齐根 张 宁

(冶金工业部钢铁研究总院)

孙 大 亮

(山 东 大 学)

1988 年 3 月 28 日收到

观察了 Nd₂Fe₁₄B 单晶磁畴结构随试样厚度的变化。发现试样厚度存在某个临界值 L_0 ，小于此值时，在垂直于 c 轴表面上的畴纹呈迷宫形。大于此值时，迷宫形条状畴在加宽的同时，其表面出现按一定间隔分布的斑点，此即与基畴反向的锥形畴底部。随试样厚度的进一步增加，基畴宽度和锥形反向畴尺寸也随之增大，后者的数目也增多，甚至出现多重锥形畴结构。本文着重讨论了锥形畴的形成机制，并估算了锥形畴形成所对应的临界厚度 L_0 。此外，根据实验结果，计算了 Nd₂Fe₁₄B 相的畴壁能。

一、引 言

Nd₂Fe₁₄B 四方相的易磁化轴平行于 c 轴，它具有很强的单轴各向异性 ($K_1 = 4.5 \text{ MJ/m}^3$)^[1]。畴区为平行 c 轴的片状区域，相邻畴区内自发磁化方向相差 180° ，与立方晶系不同，在与 c 轴垂直的晶体表面不出现横向磁通闭合畴，故除样品表面的退磁能及源于磁晶各向异性能的畴壁能外，并不存在磁弹性能^[2]。根据经典理论^[3]，在以 c 轴为法线的单位表面积下，平行片层状畴的退磁能可写为

$$E_d = 1.71 M_s^2 D,$$

式中 M_s 为 Nd₂Fe₁₄B 相的饱和磁化强度； D 为畴宽。则畴壁能为

$$E_r = \gamma L/D,$$

式中 γ 为单位面积的畴壁能； L 为晶粒沿 c 轴方向的尺寸，对单晶而言，即为试样厚度。体系的总自由能为

$$E = 1.71 M_s^2 D + \gamma L/D.$$

由自由能最小原理，即取 $\partial E/\partial d = 0$ ，可得平衡时试样厚度与畴宽的关系式为

$$D = [\gamma L / (1.71 M_s^2)]^{1/2}. \quad (1)$$

实际畴区虽然彼此平行，但远非平直的片层，而是彼此蜿蜒交错。在以 c 轴为法线的端面，畴纹呈迷宫形。Kaczer 等人^[4]的工作表明，迷宫畴与平直片层畴具有相等的平均畴宽和相同的能量，所以上述处理对迷宫畴仍然成立。本文旨在讨论锥形畴的形成及对应的临界厚度。

二、实验方法

试样取自悬浮熔炼拉制的 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 单晶。材质均匀纯净,晶内缺陷少,易于磨光供磁畴观察。由于是单晶,试样厚度就是晶粒厚度,符合理论模型的要求。所用单晶为直径 4 mm 的圆柱体,其 c 轴沿柱体轴向,厚度为 1.76 mm。试样每次减薄并抛光后置于 Ortho-Plan-Pol 型金相显微镜上,借 Kerr 效应观察相应的磁畴形貌,并拍摄记录。用称重法测定试样相应的厚度。根据不同厚度试样的畴纹照片,用线切割法进行多次测量,取平均值以确定畴的平均宽度。

三、结果与讨论

1. 畴结构随试样厚度的变化

试样表面垂直 c 轴,厚度 l 各不相同的一组畴纹照片示于图 1(见图版 I)。图 1(a)与 (b) 分别对应于 $L = 20 \mu\text{m}$ 和 $L = 30 \mu\text{m}$, 不难看出,两者均属迷宫形畴,所不同者唯畴宽¹⁾: 较厚的试样其畴宽亦较大。 L 的进一步增大,如图 1(c) 中 ($L = 40 \mu\text{m}$), 除畴宽增大外,形貌也发生了变化: 在主畴中出现了一定密度的圆斑,它们是与主畴磁化方向相反的锥状畴的底部。显然,此种锥形的反向畴的形成能有效地缩小基畴的自由端面,从而降低表面退磁能,与此同时,相应的畴壁能增加不大。此种锥形畴的产生对应于试样的某临界厚度 L_0 。锥形畴的几何特性使畴壁能的增加小于退磁能的减小。体系的总自由能遂得以降低。

图 1(d) 对应于 $L = 50 \mu\text{m}$, 与图 1(c) 相比,则畴宽更大,锥形畴密度和尺寸均增加。图 1(e) 和 (f) 分别对应于 $L = 220 \mu\text{m}$ 和 $800 \mu\text{m}$ 。畴结构变化的趋势与前述的相同,但由于畴宽大为增加,为降低退磁能,锥形畴的数目和尺寸随之增加外,在大的锥形畴中又出现次生的反向畴,即所谓的多重锥形畴结构。总之,随着 L 的进一步增大,将出现第二、三级或更高一级次生反向畴。这些反向畴级级相套,形成复杂的花斑畴。值得注意的是,反向畴始终是锥形的。

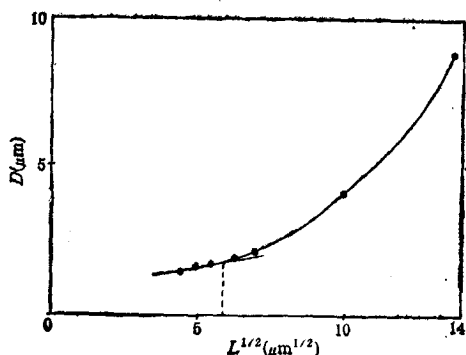


图 2

畴纹随试样厚度的上述变化可借 $D-L^{1/2}$ 关系曲线来描述。根据照片实测的 $D-L^{1/2}$ 关系曲线示于图 2。不难看出,当 $L < 40 \mu\text{m}$ 时, D 与 $L^{1/2}$ 基本上为线性关系,即公式(1)成立,一旦 $L > 40 \mu\text{m}$, 由于锥形反向畴的出现,描述简单平片畴的公式不再适用, D 与 $L^{1/2}$ 的关系将偏离线性。值得指出的是,由 $D-L^{1/2}$ 曲线偏离线性所处理得的 L_0 值与直接畴纹观察所得的基本相符,即 $L = 35 \mu\text{m}$ 。

1) 试样镶在塑料上,当厚度减至 $30 \mu\text{m}$ 以下时,试样薄片与基底的结合有局部脱离,故厚度略异,因此在局部畴厚处出现极细反向畴斑,但整体仍是迷宫畴。

2. 畴壁能的计算

由(1)式可导出畴壁能的计算公式

$$\gamma = 1.71 M_s^2 D' / L.$$

已知 Nd₂Fe₁₄B 单晶的 $4\pi M_s = 16.2 \text{ kg}^{[5]}$. 根据迷宫畴照片(图 1(a) 与 (b)), 借横向切割畴时的多次测量结果即可确定相应厚度 L 下的畴宽 D , 所得结果列于表 1 中. 所得的 γ 值为 30 mJ/m^2 , 与佐川等^[6]报道的完全一致.

表 1 Nd₂Fe₁₄B 畴壁能的实测结果

	图 1(a)	图 1(b)	平均值
$D(\mu\text{m})$	1.5	1.7	
$L(\mu\text{m})$	20	30	
$\gamma(\text{mJ/m}^2)$	31.99	27.37	30

3. 锥形畴的形成与临界厚度 L_c

1) 反向畴的几何特性 单轴各向异性晶体表面上形成的反向畴, 其几何特征取决于系统的自由能趋于极小值的要求, 即借畴壁能最小限度的增加以换取端面漏散磁通最大限度的减少. 由此不难理解, 反向畴在端面呈圆形——等轮廓线可包围最大面积的图形. 此锥形反向畴的顶角 θ 应是常值. 为定量估算锥形畴的有关能量项, 需要测定 θ 值. 为此取小块 Nd₂Fe₁₄B 单晶, 平行 c 轴取磨面, 在晶界处摄取畴纹如图 3(a) (见图版 II) 所示. 锥形畴嵌入条状主畴的端面. 锥形畴的大小随主畴宽度略有变化, 但其几何形状保持一致, 顶角 θ 的实测值约在 $6-8^\circ$ 之间. 锥底直径约为该处主畴宽的 $1/3$. 若设 x 为锥底半径, 则 $x/D_0 \approx 1/4$, D_0 为主畴平均宽度 (见图 3(b) (见图版 II) 畴结构示意图).

2) 体系的自由能 此时体系的退磁能可表为

$$E_d = E_{d_1} + E_{d_2}$$

式中 E_{d_1} 为主畴间通过漏散磁通相互作用而产生的退磁能 (单位表面积); E_{d_2} 为反向畴锥底与周围相同面积的主畴间通过漏散磁通相互作用而产生的退磁能 (单位表面积). 主畴面积应扣除反向畴及与之作用的相应部分, 则

$$E_{d_1} = 1.71 M_s^2 D \left(1 - \frac{\pi x^2}{D^2}\right) \left(1 - \frac{\pi x^2}{D^2}\right),$$

式中 $\pi x^2/D^2$ 为单位表面积下锥形畴的面积; $(1 - \pi x^2/D^2)$ 为主畴面积减小的比例分数.

为简化 E_{d_1} 的计算, 将每条主畴内反向畴锥底的总面积等价成与条状主畴平行的狭小细条. 则有

$$E_{d_1} = 1.71 M_s^2 D',$$

式中 D' 为单位表面积下虚拟条状反向畴的等价宽度. $D' = \pi x^2/D$, 则

$$E_{d_1} = 1.71 M_s^2 \frac{\pi x^2}{D} \cdot \frac{\pi x^2}{D^2},$$

式中 $\pi x^2/D^2$ 为锥形畴表面积的比例分数.

体系的畴壁能可表为

$$E_r = E_{r_1} + E_{r_2}$$

式中 E_{r_1} 为主畴的畴壁能, $E_{r_1} = \gamma L/D$; E_{r_2} 为锥形畴的畴壁能

$$E_{r_2} = \gamma \frac{2x^2}{D^2} \pi \csc\left(\frac{\theta}{2}\right).$$

体系的总自由能 $E = E_d + E_r = E_0 + \Delta E$, 式中 $E_0 = 1.71M_s^2 D + \gamma L/D$, 即为简单条状畴体系的自由能.

考虑到 $x/D \ll 1$, 在 ΔE 的展开式中只保留含 $(x/D)^2$ 的项, 舍去更高次项, 则简单条状畴和出现锥形反向畴两者间的能量差 ΔE 可近似地表为

$$\Delta E = \gamma \frac{2\pi x^2}{D^2} \csc\left(\frac{\theta}{2}\right) - 1.71M_s^2 \frac{2\pi x^2}{D}.$$

下面分别讨论 ΔE 取值的不同情况:

(1) $\Delta E = 0$

则 $E = E_0$, 即两模型处于交接点, 由此可确定临界畴宽 D_0 .

因为 $\Delta E = 0$, 所以 $\gamma \frac{2\pi x^2}{D^2} \csc\left(\frac{\theta}{2}\right) = 1.71M_s^2 \frac{2\pi x^2}{D}$,

$$D_0 = \gamma \csc\left(\frac{\theta}{2}\right) / (1.71M_s^2).$$

取 $\theta = 7^\circ$, $\gamma = 30 \text{ mJ/m}^2$, $M_s = 0.1289 \text{ T}$, 则 $D_0 = 1.7 \mu\text{m}$. 此值与实测的数值相等.

(2) $\Delta E > 0$

则 $E > E_0$, $D < D_0$; 换言之, 在此情况下锥形畴的能量高于简单条状畴的, 因此稳定存在的畴结构是后者而不是前者. 事实确是如此.

(3) $\Delta E < 0$

则 $E < E_0$, $D > D_0$; 在此情况下锥形畴的能量低于简单条状畴的, 因此稳定存在是前者而不是后者. 实际观察亦如此.

四、结 论

1. $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 单晶基面的磁畴结构随晶体厚度的改变而显著不同. 当厚度 $L < L_0$ 时, 基面上的磁纹呈迷宫形, 即简单的条状畴. 此时 $D \propto L^{1/2}$. 一旦 $L > L_0$, 则主畴端面出现彼此间隔一定距离的圆斑反向畴(实为锥形畴的锥底). L 进一步增大, 基畴宽度, 反向畴锥底和数目均相应增加. 当 L 增大到一定程度, 将出现层层相套的多重锥形反向畴.

2. 锥形反向畴的出现, 是以畴壁能最低限度的增值换取退磁能最大限度的降低. 锥形畴的轴与易轴平行. 其磁化方向与基畴的相反. 其顶角约 $6-8^\circ$, 锥底半径为基畴宽度的 $1/4$.

3. 基于简单条状畴模型估算的 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 畴壁能 $\gamma = 30 \text{ mJ/m}^2$. 对应于锥形反向畴出现的临界厚度计算值 $L_0 = 30 \mu\text{m}$, 临界畴宽计算值 $D_0 = 1.7 \mu\text{m}$, 均与实际观测值相符.

- [1] M. Sagawa, S. Fujimura, F. Yamamoto, Y. Matsuura, S. Hirosawa, *J. Appl. Phys.*, **51**(1985), 4094.
- [2] 罗阳、张宁、苏绣锦, 金属学报, **23**(1987), A136.
- [3] C. Kittel, *Rev. Mod. Phys.*, **21**(1949), 541.
- [4] J. Kaczer, *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-6** (1970), 442.
- [5] N. C. Koon, B. N. Das, M. Rubenstein, *J. Appl. Phys.*, **57**(1985), 4091.
- [6] M. Sagawa, S. Fujimura, H. Yamamoto, Y. Matsuura, S. Hirosawa, K. Hiraga, Proc. of 8th Int. Workshop on Rare-Earth Magnets, ed. K. J. Strnat, Dayton, Ohio, USA, Mag. (1985), P. 587.

DOMAIN STRUCTURE VARIATION OF $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ SINGLE CRYSTAL WITH ITS THICKNESS

LUO YANG JI QI-GEN ZHANG NING

(Central Iron and Steel Research Institute, Ministry of Metallurgical Industry, Beijing)

SUN DA-LIANG

(Shandong University, Jinan)

ABSTRACT

Domain structure variation of $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ single crystal with its thickness is studied. A critical thickness L_0 is found, below which the maze domain pattern appears in the basal plane. When $L > L_0$, a set of dot-like domains appears inside the basal domains, they are the bottom of cone-shaped reversal domain. The width of basal domain and both size and number of the cone-shaped reversal domain increase with increasing sample thickness. The multiple layered reversal domains can even form with further thickness increasing. The formation of cone-shaped domain is discussed, the critical thickness value for cone-shaped domain formation is estimated as well. Based on the experimental results, the domain wall energy is also calculated.