

纳米晶永磁 $\text{Pr}_8\text{Fe}_{87}\text{B}_5$ 反磁化机理研究^{*}

张宏伟 荣传兵 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 6 月 20 日收到 2002 年 7 月 19 日收到修改稿)

用熔体快淬法制备了 $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ 纳米复合永磁样品. 测量了样品的起始磁化、反磁化过程、矫顽力和剩磁与外场的关系, 以及样品的磁粘滞性. 经分析认为材料的矫顽力主要由非均匀的钉扎机理决定, 但由于交换硬化的软磁相的可逆转动使得这种反磁化机理不同于单相永磁材料的钉扎行为. 磁粘滞性表明热激活主要源于硬磁相的不可逆磁化行为.

关键词: 纳米复合永磁, 矫顽力, 剩磁, 磁粘滞

PACC: 7560E, 7550V

1. 引 言

自从理论上预言纳米复合稀土永磁材料可以具有超过 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 的最大磁能积 $(BH)_{\text{max}}$ 以来^[1], 高性能的纳米复合永磁材料成为磁学及磁性材料研究的重点和热点之一. 这类材料是由纳米晶硬磁相(如 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$, $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N/C}$, CoPt 等)与纳米晶软磁相(如 $\alpha\text{-Fe}$, FeCo 等)通过结晶相关而复合生成^[2]. 它在利用了硬磁相的高矫顽力和软磁相的高饱和磁化强度的基础上, 通过晶间交换耦合作用使复合磁体表现出单一硬磁相的磁化行为和显著的剩磁增强效应. 尽管这方面的研究取得了进展^[3-10], 但是实验上 $(BH)_{\text{max}}$ 最大值与理论上的预期值相差甚远^[3, 7]. 从实验角度看, 关键的问题是这种材料的反磁化机理尚未探清^[4], 初步的实验结论仅是: 矫顽力机理既为非单纯钉扎型, 又为非单纯形核型^[5]. 此外, 模拟计算尚未能明确指导实验^[8-10].

众所周知, 磁体的剩磁 J_r 决定 $(BH)_{\text{max}}$ 的最大值, 而矫顽力 H_c 是获得这一最大值的必要保证. 在理想方形度的情况下, 矫顽力值应不小于剩磁值的 $1/2$, 实际经验表明通常要求矫顽力应与剩磁值相接近, 即 $\mu_0 H_c \approx J_r$. 以目前实验上最大 $(BH)_{\text{max}}$ 值的样品为例, 即各向同性的 $(8-9) \text{ at}\%$ 稀土含量的 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ 型复合磁体, 其 $J_r = 1.1-1.2 \text{ T}$, 其所

期望的 $(BH)_{\text{max}} = 240-290 \text{ kJ/m}^3$, 而实际值约为 180 kJ/m^3 , 突出的问题是样品的实际矫顽力 $\mu_0 H_c \approx 0.6 \text{ T}$, 这一值离所希望的 1.0 T 以上还相差较大. 虽然进一步提高剩磁值是必要和可行的, 但矫顽力已明显是制约 $(BH)_{\text{max}}$ 提高的关键. 因此, 要提高实际样品的 $(BH)_{\text{max}}$, 首要问题是弄清纳米复合永磁材料的反磁化机理, 进而提高矫顽力. 本文基于这一思路, 研究了纳米复合 $\text{Pr}_8\text{Fe}_{87}\text{B}_5$ 材料的反磁化机理.

2. 实验方法

采用熔体快淬法制备了纳米复合 $\text{Pr}_8\text{Fe}_{87}\text{B}_5$ 条带样品. 在室温下, 利用 SQUID 开展了磁性测量, 其中所用最大外场为 6.5 T . 测量用样品的形状为长约 5 mm 、宽约 1.5 mm . 为减小退磁效应, 测量方向选择为条带样品的长轴方向.

3. 结果与讨论

图 1 给出样品在最大外场 $\mu_0 H = 6.5 \text{ T}$ 下的磁滞回线. 样品的内禀矫顽力 $\mu_{0i} H_c = 0.55 \text{ T}$, 饱和剩磁 $J_r^{\text{max}} = 1.15 \text{ T}$.

图 2 为样品的起始磁化曲线和相应的至零场的回复曲线. 在 $H_i/H_c < 0.56$ 时, 其相应的剩磁值很小, 表现出很强的可逆性. 当 $H_i/H_c > 0.56$ 时, 这种

^{*} 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.

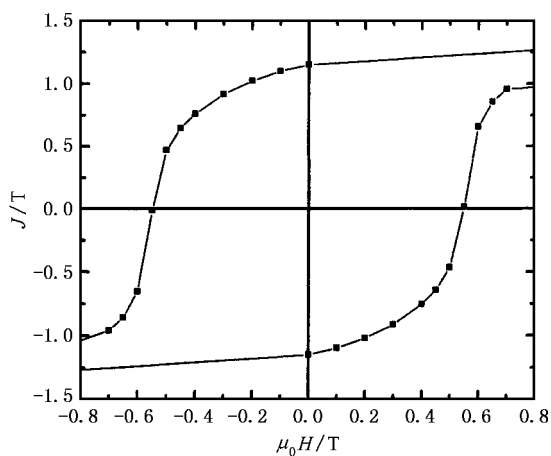


图1 最大外场 $\mu_0 H = 6.5 \text{ T}$ 下的磁滞回线

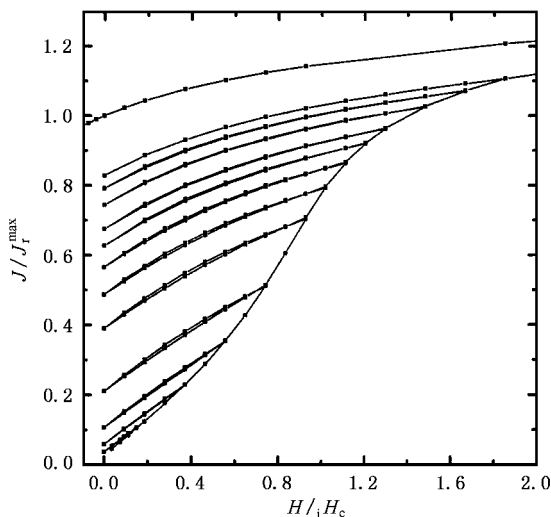


图2 样品的起始磁化曲线和相应的至零场的回复曲线

剩磁值开始增大,说明磁化过程中不可逆行为开始表现显著.当 $H/H_c = 1.11$ 时,即外场 $H > H_c$,其剩磁 $J_r/J_r^{\max} = 0.56$,即剩磁值尚不足饱和剩磁值的 60%.对于矫顽力的形核模型,起始磁化曲线应具有较高的磁导率,同时剩磁值应很快增大到其饱和值.因此,可以排除本样品的反磁化机理是属于形核模型的可能.根据纳米晶永磁“interaction domain”包含多个晶粒的事实^[5,11],结合起始磁化曲线的形状,我们认为磁体的矫顽力机理主要以钉扎为主,但又不同于传统的钉扎模型.首先,传统钉扎模型的起始磁化曲线应具有很小的磁导率,本文的样品则表现出较大的磁导率,这是由于具有交换硬化的软磁相磁矩非均匀转动所致^[6],并且这种转动是可逆的(或者称弹性的).其次,软磁相磁矩的可逆转动使得样品

的内禀矫顽力小于硬磁相不可逆磁化所需的平均外场,即样品的矫顽力小于硬磁相的矫顽力(假定硬磁相的贡献可以分离出来),这点可由 $H/H_c = 1.02$ 时其相应的剩磁 $J_r/J_r^{\max} = 0.48$ (不足 50%) 加以说明.最后,这种钉扎是非均匀的,如在 $H/H_c = 1.67$ 时其相应的剩磁值尚不足饱和剩磁值的 80%.

图3为样品的退磁曲线和退磁过程中的回复曲线.当 $H/H_c = 0.56$ 时,回复曲线上的剩磁 $J_r/J_r^{\max} \approx 1.0$,即近乎完全可逆,这与图2结果一致.在矫顽力附近及大于矫顽力处表现的反磁化行为也均与上面的分析一致.有趣的是,在矫顽力附近回复曲线不闭合,关于这一点文献^[12]给出了一种可能的解释,有待继续深入研究.

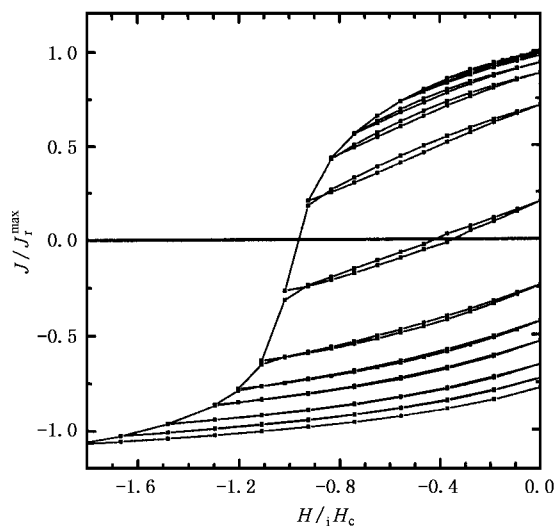


图3 样品的退磁曲线和退磁过程中的回复曲线

图4(a)为逐渐递增外场至 6.5 T 所测量的 $+H$ 和 $-H$ 之间的磁滞回线.图4(b)为从图4(a)得到的矫顽力和剩磁与最大外场 H 的关系.由图4(a)可以看出,在 $H/H_c < 1.48$ 时,小回线表现出严重的非对称性.这在图4(b)中体现为第2象限的矫顽力和剩磁明显大于第4象限的值.这种非对称可由畴壁移动过程中的钉扎效应来解释.我们知道,在最大外场由零增至内禀矫顽力场段,对于形核模型控制的反磁化机理,矫顽力和剩磁应快速增大到其相应最大值.而对于钉扎模型,矫顽力和剩磁应先是数值很小并保持不变,在最大外场接近内禀矫顽力场时才迅速增大^[13].图4(b)中的矫顽力和剩磁与最大外场 H 的关系则再次证实了矫顽力机理主要源于钉扎模型.在 $H/H_c = 1.48$ 时,矫顽力和剩磁均不足它们饱

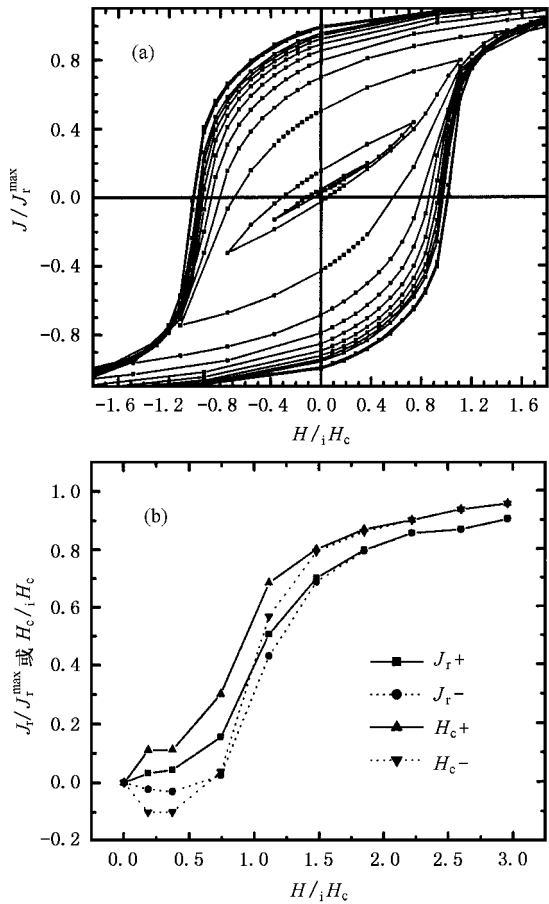


图 4 逐渐递增外场至 6.5T 所测量的磁滞回线(a),由(a)得到的矫顽力和剩磁与最大外场 H 的关系 + 为第 2 象限值, - 为第 4 象限值

和值的 80%,这也说明这种钉扎机理是不同于理想的传统钉扎模型.值得注意的是,在较大外场下剩磁

趋近饱和值的速度要低于矫顽力的情况.这也是钉扎机理的典型特征,同时也说明以剩磁作为材料的技术饱和磁化的判据要优于矫顽力的.

图 5 给出磁粘滞系数 S 与外场 H 的关系.为了比照方便,图 5 也给出相应的退磁曲线.磁粘滞系数 S 的测量方法参见文献[14—16].由图 5 可以看出, S 在高于矫顽力的 $\mu_0 H = 0.57$ T 处出现峰值.纳米复合永磁材料的磁粘滞性主要来源于硬磁相的贡献^[14],因此硬磁相的矫顽力大于材料的矫顽力.根据图 5 的数据计算了在矫顽力附近的热激活体积 $V = 5.1 \times 10^{-25} \text{ m}^3$,这与文献[15]中纳米晶单相 $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 永磁的值相近.热激活体积可解释为不可逆磁化反转所扫过的体积,所以材料中的热激活源于硬磁相的不可逆磁化反转.

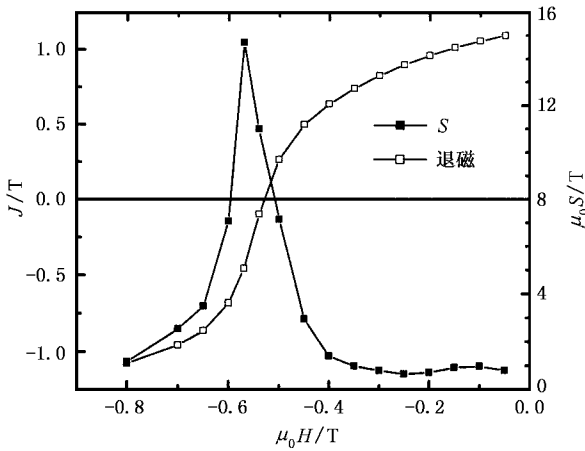


图 5 磁粘滞系数 S 与外场 H 的关系及相应的退磁曲线

[1] Skomski R and Coey J M D 1993 *Phys. Rev. B* **48** 15812

[2] Kneller E F and Hawig R 1991 *IEEE Trans. Magn.* **27** 3588

[3] Goll D, Seeger M and Kronmüller H 1998 *J. Magn. Magn. Mater.* **185** 49

[4] Hadjipanayis G C 1999 *J. Magn. Magn. Mater.* **200** 373

[5] Zhang H W, Sun Z G, Zhang S Y, Shen B G, Tung I C and Chin T S 1999 *Phys. Rev. B* **60** 64

[6] Zhang H W, Li B H, Wang J, Zhang J, Zhang S Y and Shen B G 2000 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **33** 3022

[7] Zhang X Y, Guan Y, Yang L and Zhang J W 2001 *Appl. Phys. Lett.* **79** 2426

[8] Fischer R and Kronmüller H 1998 *J. Magn. Magn. Mater.* **184** 166

[9] Wang X F, Jin H M, Zhao S F and Yan Y 2001 *Chin. Phys.* **10** 555

[10] Griffiths M K, Bishop J E L, Tucker J W and Davies H A 2001 *J. Magn. Magn. Mater.* **234** 331

[11] Zhang H W, Zhang W Y, Yan A R, Sun Z G, Shen B G, Tung I C and Chin T S 2001 *Mater. Sci. & Eng. A* **304-306** 997

[12] Zhang H W, Zhang S Y, Shen B G and Lin C 1999 *J. Appl. Phys.* **85** 4660

[13] Buschow K H J 1991 *Rep. Prog. Phys.* **54** 1123

[14] Zhang H W, Zhang W Y, Yan A R and Shen B G 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** S211 (in Chinese) [张宏伟, 张文勇, 阎阿儒, 沈保根 1999 *物理学报* **48** S211]

[15] Zhang H W, Zhang S Y, Shen B G, Goll D and Kronmüller H 2001 *Chin. Phys.* **10** 1169

[16] Zhang H W, Zhang S Y and Shen B G 2000 *Phys. Rev. B* **62** 8642

Mechanism of magnetization reversal in nanocrystalline $\text{Pr}_8\text{Fe}_{87}\text{B}_5$ ^{*}

Zhang Hong-Wei Rong Chuan-Bing 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 20 June 2002 ; revised manuscript received 19 July 2002)

Abstract

Nanocomposite $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ was prepared by melt spinning. The magnetization reversal has been examined by the initial magnetization curve, recoil curve, minor hysteresis loops, applied field dependence of coercivity and remanence, and thermal activation. Inhomogeneous pinning controls mainly the coercivity in the melt-spun ribbons. Due to the intergrain exchange coupling between soft and hard phases, the magnetization reversal is different from that in traditional permanent magnets. Thermal activation is determined by the irreversible magnetization of the hard phase.

Keywords : nanocomposite permanent magnet, coercivity, remanence, magnetic viscosity

PACC : 7560E, 7550V

^{*} 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).