

УДК 539.231:669.859:537.622

Е.Н. Каблов¹, О.Г. Оспенникова¹, В.П. Пискорский¹, Д.В. Королев¹,
А.И. Дмитриев², Р.Б. Моргунов^{1,2}, Е.А. Сульянова¹

ЭКСПРЕСС-МЕТОД АТТЕСТАЦИИ ВРЕМЕННОЙ СТАБИЛЬНОСТИ МАГНИТОВ (NdDySm)(FeCo)B

DOI: 10.18577/2071-9140-2015-0-S2-35-41

Предложен новый метод ускоренной аттестации временной стабильности магнитов в перемагничивающем магнитном поле. Измерены временные зависимости намагниченности спеченных магнитов (Nd_{0,62}Dy_{0,33}Sm_{0,05})_{16,2}(Fe_{0,77}Co_{0,23})_{78,1}B_{5,7} в широком интервале температур и магнитных полей, которые спрямлялись в полулогарифмических координатах. Исследованы температурные и полевые зависимости магнитной вязкости. Установлено, что характер этих зависимостей определяется механизмом смещения доменных стенок в условиях сильного пиннинга. Оценены значение порогового магнитного поля отрыва доменной стенки от дефекта в отсутствие термической активации (~48 кЭ), а также работа, которую нужно совершить для единичного депиннинга (~33·10⁻¹² эрг).

Ключевые слова: магнитный материал, временная стабильность, коэрцитивная сила, легирование.

New method of the rapid certification of the temporal stability of magnets in remagnetizing magnetic field is proposed. The temporal dependencies of the magnetic susceptibility of sintered magnets (NdDySm)(FeCo)B were measured within a wide interval of temperatures and values of magnetic fields which were straightened in semi-logarithmic coordinates. The temperature and polar dependencies of the magnetic viscosity were investigated. It has been revealed that the type of these dependencies is determined by the way of shifting of domain walls under strong pinning. The value of the threshold of magnetic field at which detachment of a domain wall from a defect is occurred, is estimated to be ~48 kE in the absence of thermal activation. The work of single depinning is determined to be ~33·10⁻¹² erg.

Keywords: magnetic material, temporal stability, coercivity, alloying.

¹Федеральное государственное унитарное предприятие «Всероссийский научно-исследовательский институт авиационных материалов» Государственный научный центр Российской Федерации [Federal state unitary enterprise «All-Russian scientific research institute of aviation materials» State research center of the Russian Federation] E-mail: admin@viam.ru

²Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт проблем химической физики РАН [Federal State Budgetary Science establishment Institute of Problems of Chemical Physics, Russian Academy of Sciences] E-mail: director@icp.ac.ru

Введение

Редкоземельные магниты типа Nd₂Fe₁₄B имеют наибольшие по сравнению с другими видами магнитов значения остаточной магнитной индукции и максимального энергетического произведения. Существенным их недостатком является высокая чувствительность этих параметров к температуре. Температурный коэффициент остаточной магнитной индукции (ТКИ) у данного вида магнитов наибольший по сравнению с другими видами магнитов. Ранее установлено [1], что введение в сплав (NdDy)(FeCo)B небольших добавок (1–3%) примеси самария существенно улучшает термостабильность этих магнитов, позволяя использовать их в динамически настраиваемых гироскопах, применяемых в самолетах, ракетах и торпедах [2–6].

Как показано в работах [7, 8], небольшие добавки примеси самария в сплав (NdDy)(FeCo)B приводят к радикальному изменению магнитной анизотропии и обменных взаимодействий в образ-

цах. Легирование самарием, создающее конкуренцию анизотропии «легкая ось» и «легкая плоскость», приводит к смене основного механизма магнитного гистерезиса при понижении температуры [9]. Приблизиться к пониманию причин переключения механизма магнитного гистерезиса позволит исследование магнитной вязкости. Кроме того, изучение магнитной вязкости позволит поднять исследования временной стабильности сплавов (NdDy)(FeCo)B с небольшими добавками примеси самария на новый технологический уровень.

В настоящее время алгоритм испытаний временной стабильности сплавов основан на измерении магнитного момента образца, хранящегося долгие годы в «нулевом» магнитном поле. Эта методика не может считаться удовлетворительной, так как требует больших временных затрат. Ее модификация, основанная на повышении температуры, также является неприемлемой, поскольку без специальных исследований не ясно, каков закон изменения вязкости при изменении

температуры и можно ли относить этот закон ко всему временному и температурному интервалам испытаний. Кроме того, длительность экспериментов и в этом случае составляет десятки, а то и сотни тысяч часов, что является технологически неприемлемым. Можно предположить, что ускорить перемагничивание можно, если не только повышать температуру, но и одновременно прикладывать размагничивающее поле. Тогда длительность эксперимента составляет несколько часов, давая те же результаты, что и в традиционных методиках за гораздо более короткое время.

В данной работе исследованы временные зависимости намагниченности в сплавах типа $(\text{Nd}_{0,62}\text{Dy}_{0,33}\text{Sm}_{0,05})_{16,2}(\text{Fe}_{0,77}\text{Co}_{0,23})_{78,1}\text{B}_{5,7}$ в фиксированных постоянных магнитных полях в широком диапазоне температур. Цель работы – установление влияния температуры и магнитного поля на релаксационную магнитную динамику, а также механизма магнитного гистерезиса в спеченных постоянных магнитах $(\text{NdDy})(\text{FeCo})\text{B}$, легированных самарием.

Материалы и методы

Образцы из сплава типа $(\text{Nd}_{0,62}\text{Dy}_{0,33}\text{Sm}_{0,05})_{16,2}(\text{Fe}_{0,77}\text{Co}_{0,23})_{78,1}\text{B}_{5,7}$ получены путем спекания монокристаллических частиц сплава в высоковакуумной печи. Методика их приготовления и результаты химического и фазового анализа приведены в работах [10, 11]. Исследование неоднородности материалов и локального химического состава фаз проводили методом микрорентгено-спектрального анализа с помощью анализатора JCMA-733 (фирма Jeol). Образцы состояли из двух фаз – $(\text{NdDySm})_2(\text{FeCo})_{14}\text{B}$ и $(\text{NdDySm})_2(\text{FeCo})_2\text{B}$, доли которых составляли 85 и 15% соответственно.

Для образцов, имеющих форму пластины размером $0,5 \times 2 \times 4$ мм, с помощью магнитометра MPMS 5XL Quantum Design при различных температурах (120–350 К) получены петли магнитного гистерезиса в интервале напряженностей магнитного поля $H = -50 \div +50$ кЭ. Получены также временные зависимости намагниченности $M(t)$ в различных магнитных полях ($H = 1-17$ кЭ) и при различных температурах (120–350 К).

Результаты и обсуждение

Магнитный гистерезис

На рис. 1 представлены петли магнитного гистерезиса образца при различных температурах. Форма петель близка к прямоугольной. Угловой коэффициент касательной, проведенной к размагничивающему участку петли, соответствует магнитной восприимчивости $\chi = dM/dH$. Намагниченность насыщения в интервале температур 120–350 К почти не зависит от температуры и составляет $M_s = 105$ эме/г (размерность дана в международной системе единиц – NBS U.S.). Уменьшение температуры ведет к резкому увеличению

коэрцитивной силы H_{cl} – от 4,5 (при 350 К) до 28 кЭ (при 120 К). Статические магнитные свойства в виде температурных и полевых зависимостей намагниченности этих образцов подробно обсуждались ранее в работах [7, 8].

Временные зависимости намагниченности

На рис. 2 представлена схема переключения внешнего магнитного поля в экспериментах по измерению зависимостей $M(t)$. После выдержки образца в магнитном поле напряженностью $H = 50$ кЭ в течение времени $t_1 = 300$ с включали поле, направленное против вектора намагниченности образца (время развертки поля составляло ~ 90 с). После установки отрицательного магнитного поля происходила запись временной зависимости намагниченности образца – длительность $t_2 + t_3$ измерения зависимостей $M(t)$ составляла 5200 с. Выполнено более десяти циклов перемагничивания, в каждом из которых регистрировалась временная зависимость. На рис. 2 показано схематическое изображение изменения магнитного момента образца (измерения выполнены при температурах 120–350 К).

На рис. 3 показана временная зависимость $\Delta M(t)$ при температуре 300 К в магнитном поле напряженностью $H = 10$ кЭ, направленном против вектора намагниченности образца, в линейной и логарифмической временных шкалах. Вид временной зависимости изменения намагниченности образца зависит от временного интервала. Сразу после переключения магнитного поля в течение времени $t_2 = 100$ с зависимость $\Delta M(t)$ близка к линейной. Показана также аппроксимация зависимости $\Delta M(t)$ на временном интервале t_2 линейной функцией (рис. 3). По истечении времени t_2 величина $\Delta M(t)$ в интервале времени $t_3 = 5100$ с изменялась по закону:

$$\Delta M(t) \sim S \ln t. \quad (1)$$

Видно, что зависимость $\Delta M(t)$ спрямляется в полулогарифмических координатах. Сплошными линиями показаны аппроксимации, полученные с помощью выражения (1). Тангенс угла наклона зависимости $\Delta M(t)$ в полулогарифмических координатах (рис. 3) соответствует магнитной вязкости $S = dM/d(\ln t)$. Далее при обсуждении магнитной вязкости образца будет рассмотрен только временной интервал t_3 .

Зависимость магнитной вязкости от напряженности магнитного поля

На рис. 4 показаны зависимости $\Delta M(t)$ в полулогарифмических координатах в различных магнитных полях при температуре 300 К и их аппроксимации функцией (1). Видно, что угол наклона прямых, а значит, и магнитная вязкость являются немонотонными функциями напряженности магнитного поля. На рис. 5, а показана зависимость $S(H)$, которая имеет максимум вблизи

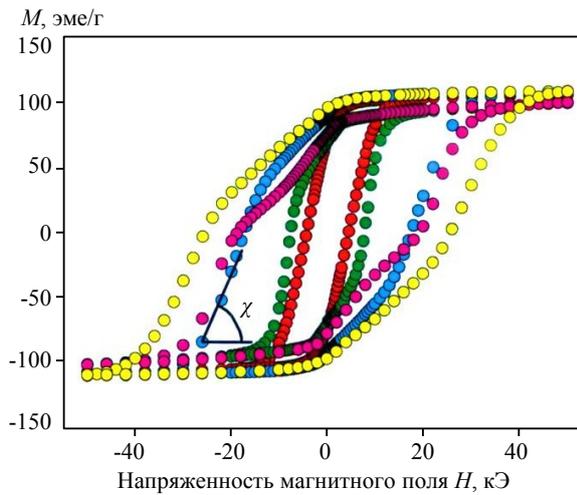


Рис. 1. Петли магнитного гистерезиса образца при температурах 120 (●), 150 (●), 200 (●), 300 (●), 350 К (●) (χ – магнитная восприимчивость)

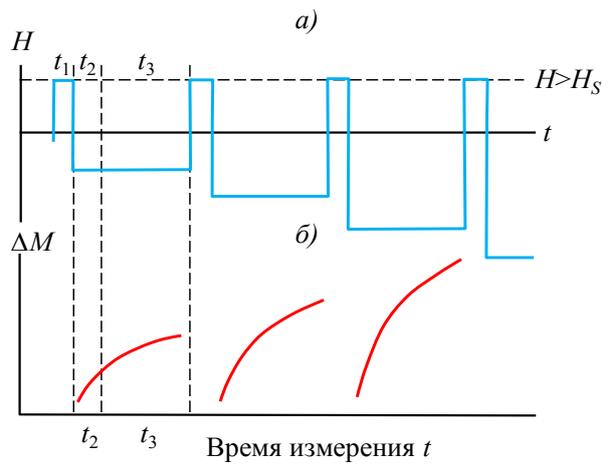


Рис. 2. Схема переключения внешнего магнитного поля в экспериментах по измерению временных зависимостей намагниченности (а), а также схематическое изображение изменения намагниченности образца (б). Отмечены промежутки времени: $t_1=300$ с – длительность экспозиции образцов в магнитном поле напряженностью $H=50$ кЭ (превышающем поле насыщения H_S); $t_2+t_3=5200$ с – длительность измерения временных зависимостей намагниченности образца

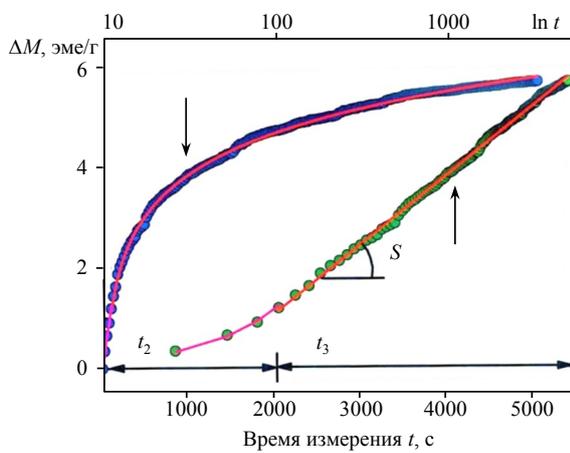


Рис. 3. Временная зависимость изменения магнитного момента $\Delta M(t)$ при температуре 300 К в магнитном поле напряженностью $H=10$ кЭ, направленном против вектора магнитного момента образца (●), а также эта зависимость в полулогарифмических координатах (●)

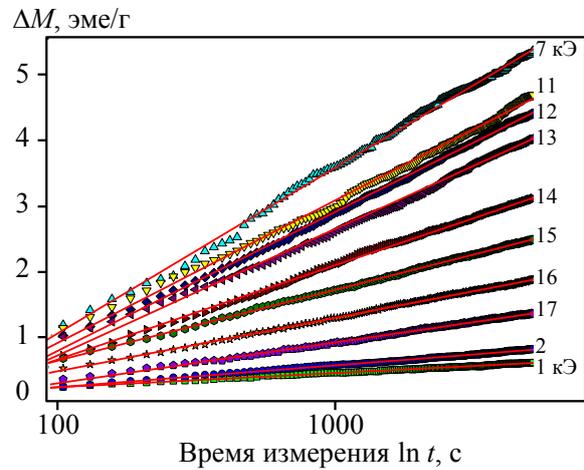


Рис. 4. Временные зависимости изменения магнитного момента $\Delta M(t)$ при температуре 300 К в магнитных полях различной напряженности (сплошные линии – аппроксимация)

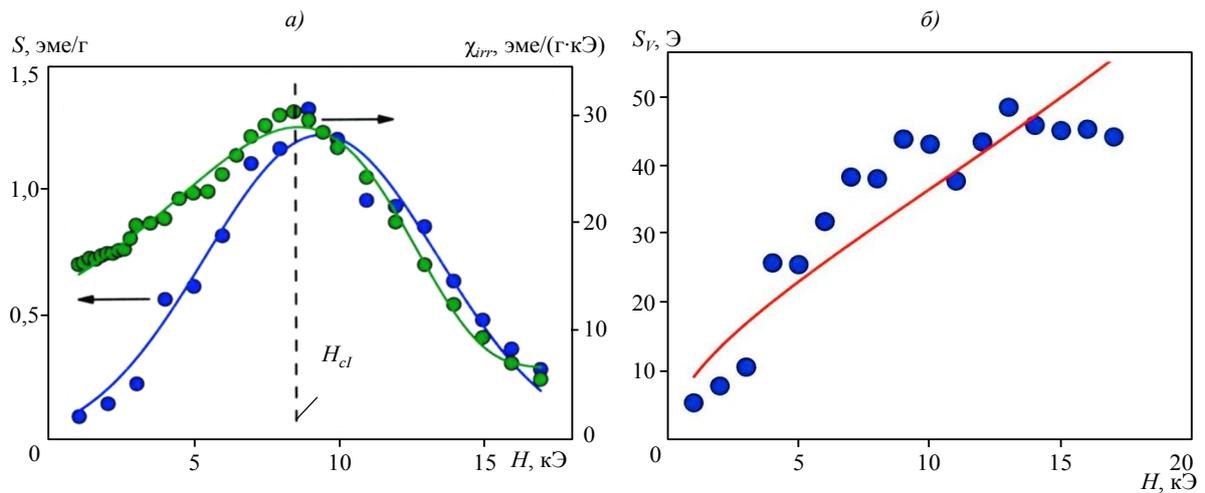


Рис. 5. Зависимости магнитной вязкости S и необратимой магнитной восприимчивости χ_{irr} (а), а также коэффициента пропорциональности S_V (б) от напряженности магнитного поля H при температуре 300 К (H_{cl} – коэрцитивная сила образца; сплошная линия – аппроксимация)

напряженности магнитного поля, равной коэрцитивной силе образца $H_{cl}=8,5$ кЭ при температуре 300 К.

Магнитная вязкость S пропорциональна необратимой магнитной восприимчивости образца χ_{irr} [12]:

$$S=S_V\chi_{irr}, \tag{2}$$

где коэффициент пропорциональности S_V – магнитная вязкость, характеризующая материал и не зависящая от формы образца в отличие от параметров S и χ_{irr} [12].

Необратимая магнитная восприимчивость определяется выражением [13]:

$$\chi_{irr}=\frac{\chi}{1+N\chi}, \tag{3}$$

где $\chi=dM/dH$ – угловой коэффициент касательной (см. рис. 1), проведенной к размагничивающему участку петли магнитного гистерезиса (сумма обратимой и необратимой составляющих магнитной восприимчивости); N – размагничивающий фактор, оцененный в работе [9] значением 2,1.

На рис. 5, а также показана зависимость $\chi_{irr}(H)$ при температуре 300 К, вычисленная согласно выражению (3), которая имеет максимум, соответствующий коэрцитивной силе образца $H_{cl}=8,5$ кЭ при этой температуре.

Полевая зависимость отношения S к восприимчивости образца χ_{irr} , определяющего согласно выражению (2) магнитную вязкость S_V при фиксированной температуре, представлена на рис. 5, б. Зависимость $S_V(H)$ определяется выражением [9]:

$$S_V=-\frac{k_B T}{\left(\frac{\partial E}{\partial H}\right)_T}, \tag{4}$$

где k_B – постоянная Больцмана; T – температура; E – энергия активации релаксации (энергетический барьер, преодолеваемый доменной стенкой при отрыве от дефекта – депиннинге).

Вид зависимости $S_V(H)$ определяется характером пиннинга доменных стенок. В случае слабого пиннинга энергия активации релаксации определяется выражением [14]:

$$E=31\gamma b^2\left(1-\frac{H}{H_0}\right), \tag{5}$$

где γ – поверхностная плотность энергии доменных стенок; $4b$ – толщина доменной стенки; H_0 – значение порогового магнитного поля отрыва доменной стенки от дефекта при отсутствии термической активации.

В случае сильного пиннинга энергия активации релаксации определяется выражением [14]:

$$E=\frac{4fb}{3}\left[1-\left(\frac{H}{H_0}\right)^{1/2}\right]^{3/2}, \tag{6}$$

где f – сила, необходимая для единичного депиннинга.

Случаи слабого и сильного пиннинга определяются условием: $\beta=3f/(8\pi\gamma b)$ – если $\beta<1$, имеет место слабый пиннинг; если $\beta>1$, имеет место сильный пиннинг.

Подстановка выражения (5) в уравнение (4), если имеет место слабый пиннинг, дает выражение для магнитной вязкости: $S_V=k_B T H_0/31\gamma b^2$, которое предполагает независимость параметров S_V от H , что явно противоречит наблюдаемой экспериментальной зависимости $S_V(H)$ – см. рис. 5, б. Подстановка выражения (6) в уравнение (4), если имеет место сильный пиннинг, дает выражение для магнитной вязкости:

$$S_V = \frac{k_B T}{fb} \frac{(H \cdot H_0)^{1/2}}{\left[1 - \left(\frac{H}{H_0}\right)^{1/2}\right]^{1/2}} \quad (7)$$

На рис. 5, б сплошной линией показана аппроксимация зависимости $S_V(H)$ при температуре 300 К выражением (7). Из аппроксимации определили значение произведения $fb = (33 \pm 4) \cdot 10^{-12}$ эрг, соответствующее работе, которую нужно совершить для единичного депиннинга, а также $H_0 = 48 \pm 2$ кЭ. Полученное значение произведения fb близко к соответствующему значению, полученному ранее в работе для различных магнитов типа $Nd_2Fe_{14}B$ [12].

Температурная зависимость магнитной вязкости

На рис. 6 показаны зависимости $\Delta M(t)$ в полулогарифмических координатах при различных температурах в магнитном поле напряженностью $H=9$ кЭ и их аппроксимации функцией (1). Видно, что угол наклона прямых, а значит, магнитная вязкость является немонотонной функцией температуры. Для определения зависимости $S_V(T)$ получены полевые зависимости необратимой магнитной восприимчивости образца $\chi_{irr}(H)$ при различных температурах (рис. 7) по методике, описанной выше. Затем на каждой из зависимостей выбрано значение χ_{irr} в магнитном поле напряженностью $H=9$ кЭ. Температурные зависимости магнитной вязкости S и необратимой магнитной восприимчивости χ_{irr} в магнитном поле напряженностью $H=9$ кЭ изображены на рис. 8, а. Отношение S к параметру χ_{irr} , определяющее температурную зависимость магнитной вязкости S_V в магнитном

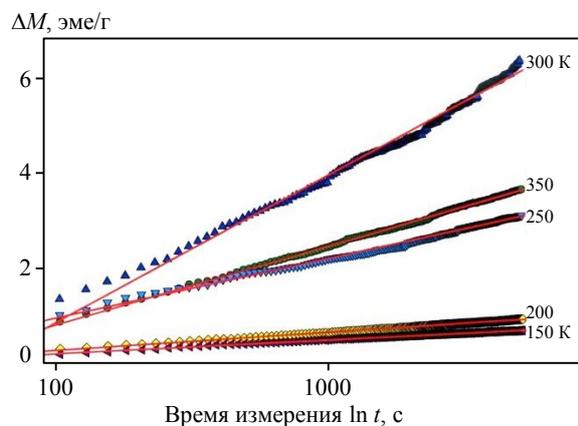


Рис. 6. Временные зависимости изменения магнитного момента $\Delta M(t)$ в магнитном поле напряженностью $H=9$ кЭ при различных температурах (сплошные линии – аппроксимация)

поле напряженностью $H=9$ кЭ, представлено на рис. 8, б. Сплошной линией показана аппроксимация выражением (7). Из аппроксимации определено значение произведения $fb = (25 \pm 4) \cdot 10^{-12}$ эрг, которое оказалось близко к соответствующему значению, полученному ранее при аппроксимации полевой зависимости S_V .

Скачки перемagnetничивания на временных зависимостях намагниченности

На зависимостях $\Delta M(t)$ при температуре 300 К в магнитных полях со значениями, меньшими коэрцитивной силы, наблюдались стохастические скачки δM (рис. 9). При многократном прохождении кривой $\Delta M(t)$ в различных магнитных полях удается различить до четырех скачков. Величина скачка δM составляла 0,05–0,2% от величины намагниченности насыщения M_S , длительность скачков 20–100 с. Средний объем образца δV , вовлеченного в скачок, можно найти из простого соотношения: $\delta V = \delta M m / 2 M_S \rho$, где m и ρ – масса и плотность образца соответственно, что дает значения $(4–16) \cdot 10^{-7}$ см³, близкие к типичным значениям объема перемagnetничивания при скачках Баркгаузена [15]. Однако оцененная в данном случае величина δV на 4–5 порядков выше соответствующего значения $\delta V = 10^{-12}–10^{-10}$ см³, определенного ранее для различных магнитов типа $Nd_2Fe_{14}B$ [16]. С учетом того что время измерения в СКВИД-магнитометре было довольно длительным (~20 с), скорее всего, регистрируемые крупные скачки являются огибающими большого числа более мелких скачков, недоступных для обнаружения в рамках данной методики по причине большого значения постоянной времени измерения. Средняя длительность скачка Баркгаузена

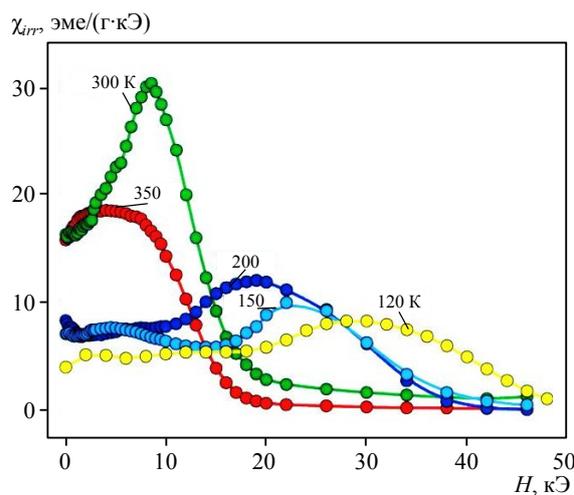


Рис. 7. Зависимости необратимой магнитной восприимчивости χ_{irr} от напряженности магнитного поля H при различных температурах

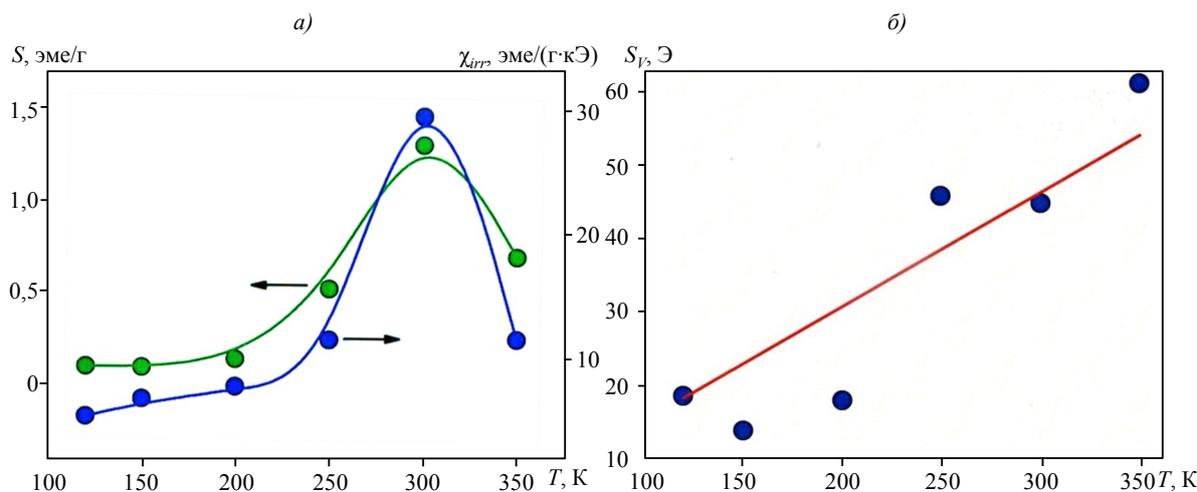


Рис. 8. Зависимости магнитной вязкости S и необратимой магнитной восприимчивости χ_{irr} (а), а также коэффициента пропорциональности $S\gamma$ (б) от температуры в магнитном поле напряженностью $H=9$ кЭ (сплошная линия – аппроксимация)

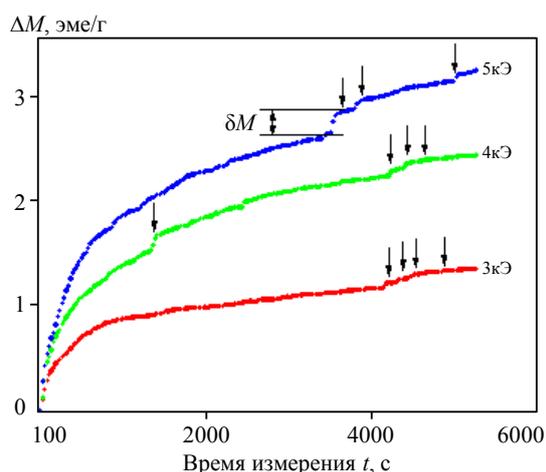


Рис. 9. Временные зависимости изменения магнитного момента $\Delta M(t)$ при температуре 300 К в магнитных полях различной напряженности (стрелками отмечены скачки перемагничивания δM)

составляет $\sim 2 \cdot 10^{-4}$ с [15]. Это означает, что каждый скачок, отмеченный стрелкой на рис. 9, может соответствовать до $5 \cdot 10^5$ отдельным скачкам. С учетом этого объем перемагничивания, приходящийся на отдельный скачок, может оказаться близким к значениям, полученным ранее в работе [16].

Заключение

Изучен новый метод аттестации временной стабильности магнитов, который основан на ускорении процессов перемагничивания в приложенном обратном магнитном поле. Измерены временные зависимости намагниченности $M(t)$ спеченных магнитов $(Nd_{0,62}Dy_{0,33}Sm_{0,05})_{16,2}(Fe_{0,77}Co_{0,23})_{78,1}B_{5,7}$ в широком интервале температур и магнитных полей. Зависимости $M(t)$ спрямляли в полулогарифмических координатах $M(\ln t)$. Угловой

коэффициент прямых $M(\ln t)$ соответствует магнитной вязкости S . Исследованы температурные и полевые зависимости магнитной вязкости $S(T, H)$. Установлено, что характер зависимостей $S(T, H)$ определяется механизмом смещения доменных стенок в условиях сильного пиннинга. Из зависимостей $S(T, H)$ оценены значения порогового магнитного поля отрыва доменной стенки от дефекта в отсутствии термической активации (~ 48 кЭ), а также работа, которую нужно совершить для единичного депиннинга ($\sim 33 \cdot 10^{-12}$ эрг).

На временных зависимостях намагниченности $M(t)$ при температуре 300 К в магнитных полях со значениями, меньшими коэрцитивной силы, обнаружены стохастические скачки перемагничивания, природа которых может быть обусловлена эффектом Баркгаузена.

ЛИТЕРАТУРА

1. Пискорский В.П. Термостабильные магнитотвердые материалы на основе редкоземельных интерметаллидов с тетрагональной структурой: автореф. дисс. ... докт. техн. наук. М., 2014. 36 с.
2. Каблов Е.Н. Инновационные разработки ФГУП «ВИАМ» ГНЦ РФ по реализации «Стратегических направлений развития материалов и технологий их переработки на период до 2030 года» // *Авиационные материалы и технологии*. 2015. №1 (34). С. 3–33.
3. Каблов Е.Н., Оспенникова О.Г., Вершков А.В. Редкие металлы и редкоземельные элементы – материалы современных и будущих высоких технологий // *Труды ВИАМ*. 2013. №2. Ст. 01 (viam-works.ru).
4. Каблов Е.Н., Сиваков Д.В., Гуляев И.Н. и др. Методы исследования конструкционных композиционных материалов с интегрированной электромеханической системой // *Авиационные материалы и технологии*. 2010. №4. С. 17–20.
5. Каблов Е.Н., Морозов Г.А., Крутиков В.Н., Муравская Н.П. Аттестация стандартных образцов состава сложнолегированных сплавов с применением эталона // *Авиационные материалы и технологии*. 2012. №2. С. 9–11.
6. Чабина Е.Б., Алексеев А.А., Филонова Е.В., Лукина Е.А. Применение методов аналитической микроскопии и рентгеноструктурного анализа для исследования структурно-фазового состояния материалов // *Труды ВИАМ*. 2013. №5. Ст. 06 (viam-works.ru).
7. Каблов Е.Н., Оспенникова О.Г., Пискорский В.П. и др. Аномальное влияние добавок Sm на магнитные свойства интерметаллидов $(Nd_{1-x}Sm_xDy)(FeCo)B$ // *ЖЭТФ*. 2015. Т. 148. №3. С. 493–502.
8. Каблов Е.Н., Оспенникова О.Г., Пискорский В.П. и др. Конкуренция механизмов намагничивания в сплавах $(NdDy)(FeCo)B$, легированных самарием // *Физика низких температур*. 2016. Т. 42. №1. С. 60–66.
9. Kablov E.N., Ospennikova O.G., Kablov D.E. et al. Bifurcation of magnetic anisotropy caused by small addition of Sm in $(Nd_{1-x}Sm_xDy)(FeCo)B$ magnetic alloy // *J. Appl. Phys.* 2015. V. 117. P. 243903.1–243903.5.
10. Каблов Е.Н., Пискорский В.П., Брук Л.А. Постоянные магниты из сплавов Nd–Fe–B /B сб.: *Авиационные материалы. Избранные труды «ВИАМ» 1932–2002: Юбилейный науч.-технич. сб. М.: МИСИС–ВИАМ. 2002. С. 191–197.*
11. Пискорский В.П., Валеев Р.А., Назарова Н.В. и др. Влияние самария на магнитные свойства и фазовый состав материалов Nd–Dy–Fe–Co–B // *Горный информационно-аналитический бюллетень*. 2007. №1. С.185–188.
12. Givord D., Tenaud P., Viadieu T., Hadjipanayis G. Magnetic viscosity in different NdFeB magnets // *J. Appl. Phys.* 1987. V. 61. P. 3454–3456.
13. Mylvaganam C.K., Gaunt P. Domain-wall pinning and nucleation in $SmCo_5$ sintered magnet alloys // *Philos. Mag.* 1981. V. B44. P. 581.
14. Gaunt P. Ferromagnetic domain wall pinning by a random array of inhomogeneities // *Philos. Mag.* 1983. V. B48. P. 261–276.
15. Рудяк В.М. Эффект Баркгаузена // *Успехи физических наук*. 1970. Т. 101. С. 429–462.
16. Thompson P.J., Street R. Magnetic viscosity and Barkhausen noise in NdFeB-type permanent magnets // *J. Magn. Magn. Mater.* 1997. V. 171. P. 153–162.