

05,01

Влияние примеси самария на релаксацию намагниченности сплава (NdDy)(FeCo)B

© А.И. Дмитриев¹, В.В. Кучеряев², Е.И. Куницына¹, Р.А. Валеев², Р.Б. Моргунов^{1,2},
В.П. Пискорский², О.Г. Оспенникова², Е.Н. Каблов²

¹ Институт проблем химической физики РАН,
Черноголовка, Россия

² Всероссийский институт авиационных материалов,
Москва, Россия

E-mail: morgunov2005@yandex.ru

(Поступила в Редакцию 20 января 2016 г.)

Обнаружено, что небольшие добавки Sm ($\sim 1-3$ at.%) в несколько раз замедляют релаксацию намагниченности в магнитном поле в сплаве (NdDy)(FeCo)B. Эффективное „замораживание“ спонтанной релаксации магнитного момента связано с существенным увеличением потенциальных барьеров для движения доменных стенок при введении ионов Sm, обладающих иной симметрией одноионной анизотропии, чем ионы Nd и Dy. Полученные результаты могут быть использованы для стабилизации свойств жестких магнитов.

Работа поддержана грантом РФФИ (проект № 16-07-00863а).

1. Введение

Процессы релаксации намагниченности длительное время привлекают внимание специалистов ввиду проявления все новых фундаментальных принципов формирования магнитных свойств материалов. На этом пути было обнаружено туннелирование намагниченности в высокоспиновых нанокластерах [1], туннелирование доменных стенок [2], особенности спектров магнитного шума [3], статистические закономерности элементарных событий перемагничивания [4]. Все эти явления, как и классическое перемагничивание сплавов путем термоактивационного преодоления барьеров доменными стенками, определяются высотой потенциальных барьеров, разделяющих состояния намагниченности с различной энергией. Известно, например, что в высокоспиновых молекулярных кластерах высота барьера определяется величиной одноионной магнитной анизотропии ионов, входящих в состав кластера [1]. Высота барьера для движения доменной стенки пропорциональна кристаллической анизотропии и определяется спин-орбитальным взаимодействием. Для ионов одинаковой симметрии часто характерно аддитивное сложение их вкладов в результирующую кристаллическую анизотропию. Однако до сих пор не до конца ясно, что происходит при совмещении нескольких различных ионов, отличающихся симметрией одноионной анизотропии в составе одного и того же соединения. Как показано в настоящей работе, ионы с разной симметрией поля анизотропии создают существенные изменения в рельефе потенциальных барьеров доменных стенок, значительно меняя динамику спонтанной релаксации намагниченности.

Релаксация намагниченности в промышленных магнитах и управление ею с помощью добавок примеси в магнитотвердых сплавах являются другой важной проблемой, на решение которой направлена наша ра-

бота. Известно, что качество магнита определяется не только запасаемой магнитной энергией, коэрцитивной силой и намагниченностью насыщения, формируемыми на момент его изготовления. Решающее значение имеют длительность сохранения этих характеристик и стабильность магнита при рабочей температуре. Обычно испытания временной стабильности постоянных магнитов производят в течение 10^4-10^5 h, определяя относительное уменьшение намагниченности за это время [5]. Недостатком данной методики являются не только колоссальные затраты времени, но и необходимость повышения температуры и получения температурной зависимости динамики релаксации намагниченности. При этом полученные выводы *a priori* обобщаются на все другие температуры в предположении, что вариации температуры не меняют физических механизмов релаксации. В действительности же, поскольку динамика релаксации намагниченности определяется не только высотой энергетических барьеров для движения доменных стенок, но и спектром термических флуктуаций, в общем случае изменение температуры может сложным образом влиять на параметры „старения“ магнитов. В настоящей работе нами использован метод размагничивания образцов в магнитном поле, обратном исходной намагниченности [6]. Это позволяет не только сократить время эксперимента на несколько порядков величины, но и сохранять температуру, требуемую условиями эксплуатации магнита. Ранее нами было показано, что в спеченных постоянных магнитах $(Nd_{1-x}Sm_xDy)(FeCo)B$ в широком диапазоне температур $T = 36-350$ К применима модель формирования гистерезиса, обусловленного зародышеобразованием обратной магнитной фазы, а при высоких температурах $T = 150-350$ К перемагничивание обусловлено смещением доменных границ, задерживаемых препятствиями, полуширина которых меньше толщины доменной границы [7]. Отметим, что физические аспекты

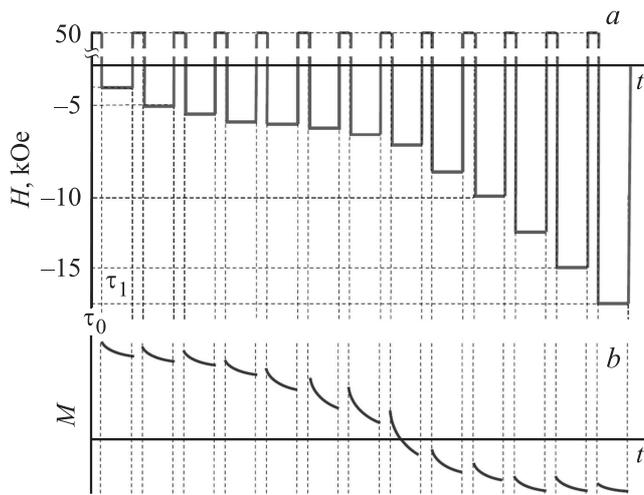


Рис. 1. Схема переключения магнитного поля в магнитометре (а) и отклик намагниченности в виде ее временных зависимостей (b).

временной стабильности редкоземельных магнитов в литературе почти не затрагиваются и исследованы очень слабо (см., например, [8]).

Цель настоящей работы заключалась в поиске таких условий легирования редкоземельных магнитов $(\text{Nd}_{1-x}\text{Sm}_x\text{Dy})(\text{FeCo})\text{B}$, которые существенным образом стабилизировали бы их намагниченность, затормаживая ее самопроизвольную релаксацию, однако при этом не меняли бы основных физических характеристик магнитов.

2. Методика

Образцы $(\text{Nd}_{10.85-x}\text{Sm}_x\text{Dy}_{5.35})(\text{Fe}_{60.14}\text{Co}_{17.96})\text{B}_{5.7}$ (здесь x — атомная доля самария) были получены путем спекания в высоковакуумной печи частиц сплава со средним размером $200\ \mu\text{m}$ [9]. Результаты химического и фазового анализа приведены в [10], а детальное исследование обменного взаимодействия и магнитной анизотропии — в [11]. Исследование неоднородности материалов и локального химического состава фаз проводилось методом микрорентгеноспектрального анализа с помощью анализатора JСМА-733. Образцы состояли из двух фаз: $(\text{NdSmDy})_2(\text{FeCo})_{14}\text{B}$ и $(\text{NdSmDy})_1(\text{FeCo})_4\text{B}$, доли которых составляли 85 и 15% соответственно. Было исследовано два типа образцов с разными концентрациями самария: образец № 1 с $x = 3\ \text{at.}\%$ и образец № 2 с $x = 0.8\ \text{at.}\%$.

Для образцов, имеющих форму пластинки размером $0.5 \times 2 \times 4\ \text{mm}$, с помощью магнитометра MPMS 5XL Quantum Design были получены временные зависимости намагниченности $M(t)$ в различных магнитных полях H при $T = 300\ \text{K}$. На рис. 1 представлена схема переключения внешнего магнитного поля в экспериментах по измерению зависимостей $M(t)$. Сначала образец на-

магничивался до насыщения в магнитном $H = 50\ \text{kOe}$ (превышающем поле насыщения H_S). Время экспозиции образца в магнитном поле составляло 300 с. После выдержки образца в магнитном поле $H = 50\ \text{kOe}$ в течение 300 с включалось поле, направленное против вектора намагниченности образца. Время развертки поля составляло около 90 с. После установки отрицательного магнитного поля происходила запись временной зависимости намагниченности образца. Длительность измерения зависимостей $M(t)$ составляла $\sim 5200\ \text{s}$. На рис. 1, b показано схематическое изображение временных зависимостей намагниченности $M(t)$ образцов.

3. Экспериментальные результаты и обсуждение

На рис. 2 показаны зависимости $\Delta M(t)$ в образцах № 1 (рис. 2, a) и № 2 (рис. 2, b) при температуре $T = 300\ \text{K}$ в различных магнитных полях в логарифми-

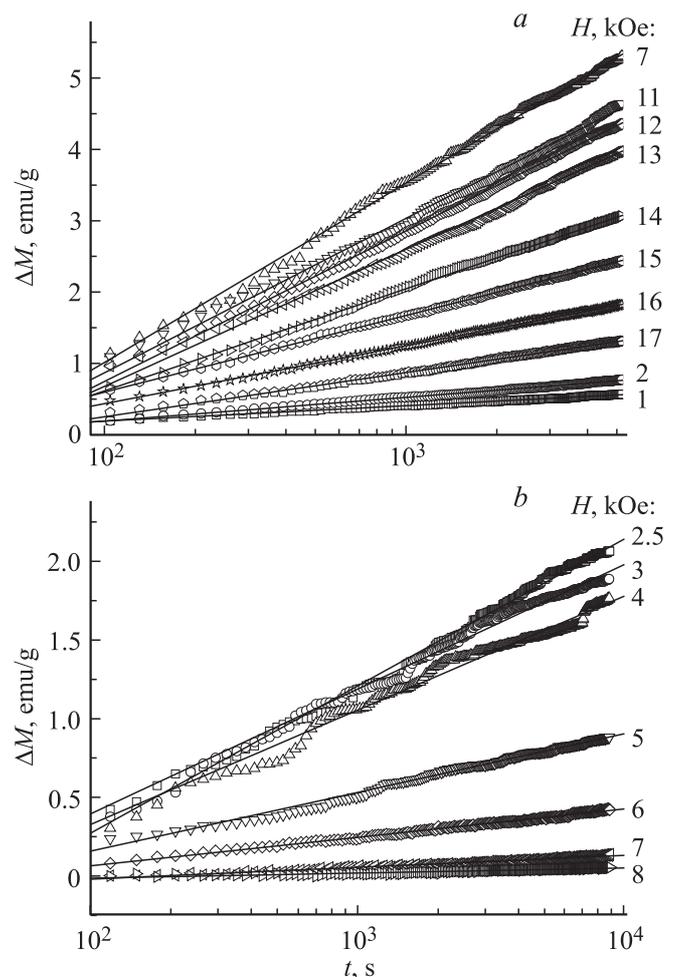


Рис. 2. Временные зависимости изменения магнитного момента $\Delta M(t)$ при температуре $T = 300\ \text{K}$ в различных магнитных полях в полулогарифмических координатах для образцов № 1 (a) и 2 (b). Сплошными линиями показаны аппроксимации.

ческих временных шкалах. Из рис. 2 видно, что зависимости $\Delta M(t)$ спрямляются в полулогарифмических координатах. Сплошными линиями показаны аппроксимации зависимостей $\Delta M(t)$ функцией

$$\Delta M \sim S \ln t. \tag{1}$$

Тангенс угла наклона зависимости $\Delta M(t)$ в полулогарифмических координатах соответствует магнитной вязкости $S = dM/d(\ln t)$. Логарифмическая зависимость намагниченности от времени определяется суперпозицией релаксационных процессов с широким распределением времен релаксации, каждому из которых отвечает элементарный акт отрыва доменной стенки от препятствия (дефекта).

Из рис. 2 видно, что угол наклона прямых, а значит, и магнитная вязкость являются немонотонными функциями напряженности магнитного поля. На рис. 3 показаны зависимости $S(H)$ при $T = 300$ К для образца № 1 (с максимумом при $H = 8.5$ кОе) и для образца № 2 (с максимумом при $H = 2$ кОе). Сравнивая рис. 3 с рис. 4, на котором изображены петли магнитного гистерезиса, можно увидеть, что максимумы на зависимостях $S(H)$ очень близки к коэрцитивным силам этих образцов, равным $H_c = 8.5$ кОе для образца № 1 и $H_c = 2$ кОе для образца № 2.

Для анализа зависимости магнитной вязкости S от напряженности магнитного поля (рис. 3) необходимо учесть, что вязкость пропорциональна необратимой магнитной восприимчивости образца χ_{irr} [12]

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

где коэффициент пропорциональности S_V — приведенная магнитная вязкость, характеризующая материал и не зависящая от формы образца в отличие от 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 (рис. 4), проведенной к участку петли гистерезиса, соответствующему размагничиванию образца (сумма обратимой и необратимой составляющих магнитной восприимчивости), $N = 2.1$ — размагничивающий фактор [7]. На рис. 5 для образцов № 1 и 2 показаны зависимости $\chi(H)$, из которых получались зависимости $\chi_{irr}(H)$ согласно выражению (3). Обе зависимости имеют максимумы в магнитных полях, соответствующих коэрцитивным силам этих образцов.

Далее определялась зависимость от магнитного поля для так называемой приведенной вязкости $S_V = S/\chi_{irr}(H)$. Зависимость $S_V(H)$ определяется выражением [14]

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

где k_B — постоянная Больцмана, T — температура, E — энергия активации релаксации. Вид зависимости

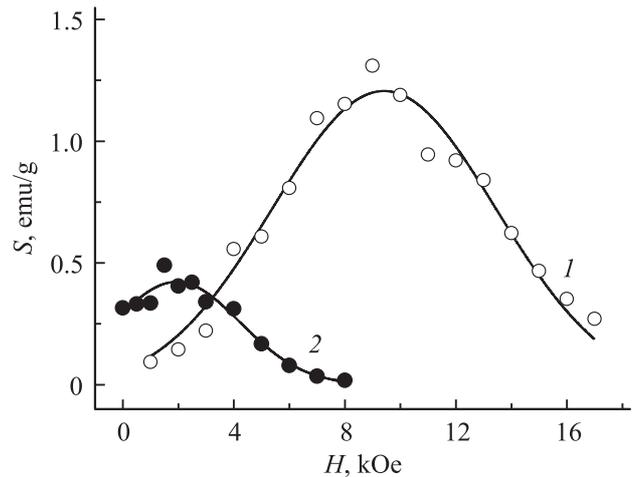


Рис. 3. Зависимости магнитной вязкости S от напряженности магнитного поля H при температуре $T = 300$ К для образцов № 1 и 2. Номера кривых здесь и далее соответствуют номерам образцов.

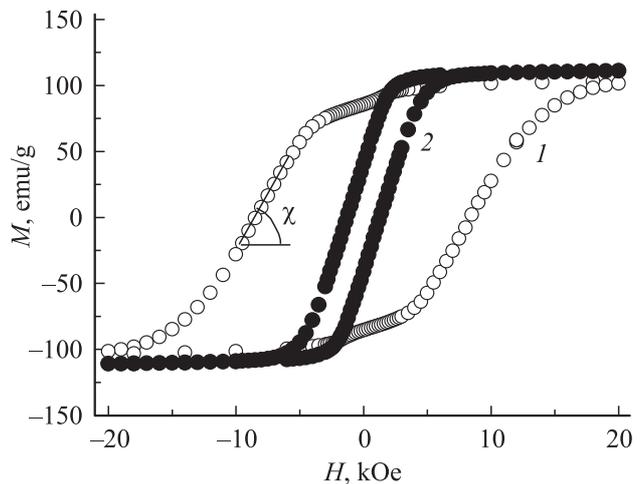


Рис. 4. Петли магнитного гистерезиса образцов № 1 и 2 при температуре $T = 300$ К. Магнитное поле направлено вдоль оси легкого намагничивания.

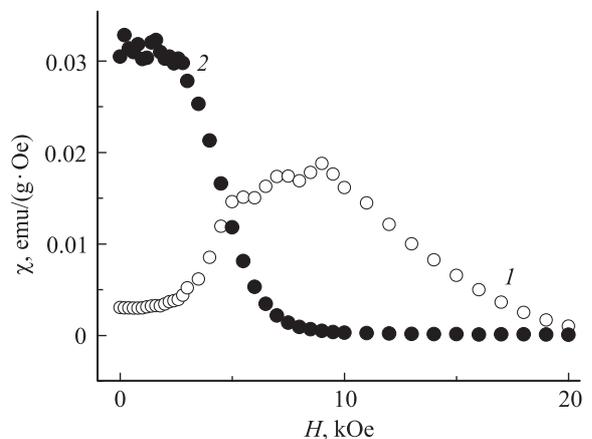


Рис. 5. Зависимости магнитной восприимчивости $\chi = dM/dH$ от напряженности магнитного поля при температуре $T = 300$ К для образцов № 1 и 2.

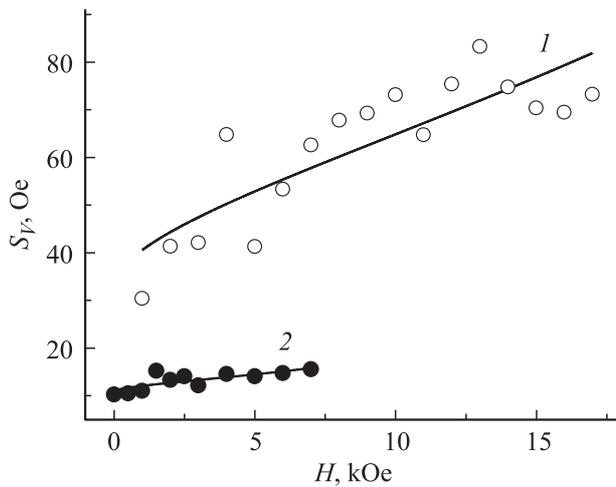


Рис. 6. Зависимости приведенной магнитной вязкости S_V от напряженности магнитного поля для образцов № 1 и 2 при температуре $T = 300$ К. Сплошной линией показана аппроксимация.

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

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

где γ — поверхностная плотность энергии доменных стенок, $4b$ — толщина доменной стенки, H_0 — значение порогового магнитного поля отрыва доменной стенки от дефекта в отсутствие термической активации. В случае сильного пиннинга энергия активации релаксации определяется выражением [9]

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

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 (4) в том случае, когда имеет место слабый пиннинг, дает выражение для магнитной вязкости

$$S_V = k_B T H_0 / 31\gamma b^2,$$

которое предсказывает независимость S_V от H , что явно противоречит наблюдаемой экспериментальной зависимости $S_V(H)$ (рис. 6). Подстановка выражения (6) в (4) в случае сильного пиннинга дает выражение для магнитной вязкости

$$S_V = \frac{k_B T}{fb} \frac{(HH_0)^{1/2}}{\left[1 - \left(\frac{H}{H_0}\right)^{1/2}\right]^{1/2}}. \quad (7)$$

На рис. 6 сплошными линиями показаны аппроксимации зависимостей $S(H)$ с помощью выражения (7).

Из аппроксимации для образца № 1 было определено значение произведения $fb = 4 \cdot 10^{-11}$ erg, соответствующее работе, которую нужно совершить для единичного депиннинга. Для образца № 2 было найдено значение $fb = 2 \cdot 10^{-10}$ erg. Эти значения fb близки по порядку величины к полученным ранее для магнитов $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ [12].

4. Заключение

Обнаружено значительное замедление релаксации намагниченности в сплаве (NdDy)(FeCo)B при добавлении небольшого количества примеси Sm ($\sim 1-3$ at.%). Симметрия одноионной анизотропии самария типа „легкая плоскость“ отличается от симметрии одноионной анизотропии Nd и Dy, поэтому ионы самария существенно модифицируют потенциальный профиль для движения доменных стенок, значительно увеличивают работу, которую нужно совершить для единичного открепления доменной стенки. Самарий может быть использован в качестве эффективной добавки для стабилизации свойств постоянных редкоземельных магнитов.

Список литературы

- [1] D. Gatteschi, R. Sessoli. *Angew. Chem. Int. Ed.* **42**, 268 (2003).
- [2] J. Brooke, T.F. Rosenbaum, G. Aeppli. *Nature* **413**, 610 (2001).
- [3] L. Neel. *J. Phys. Radium* **11**, 49 (1950).
- [4] E.P. Wohlforth. *J. Phys. F* **14**, 2155 (1984).
- [5] R.W. Chantrell, A. Lyberatos, E.P. Wohlforth. *J. Phys. F* **16**, L145 (1986).
- [6] L. Wang, J. Ding, Y. Li, Y.P. Feng, X.Z. Wang. *J. Magn. Magn. Mater.* **206**, 127 (1999).
- [7] Е.Н. Каблов, О.Г. Оспенникова, В.П. Пискорский, Д.В. Королев, Е.И. Куницына, А.И. Дмитриев, Р.Б. Моргунов. *ФНТ* **42**, 60 (2016).
- [8] J.F. Herbst. *Rev. Mod. Phys.* **63**, 819 (1991).
- [9] Е.Н. Каблов, В.П. Пискорский, Р.А. Валеев, О.Г. Оспенникова, И.И. Резчикова, Н.С. Моисеева. *Металлы* **4**, 53 (2014).
- [10] Е.Н. Каблов, О.Г. Оспенникова, Д.Е. Каблов, В.П. Пискорский, Е.И. Куницына, А.И. Дмитриев, Р.А. Валеев, Д.В. Королев, И.И. Резчикова, А.Д. Таланцев, Р.В. Моргунов. *J. Appl. Phys.* **117**, 243 903 (2015).
- [11] Е.Н. Каблов, О.Г. Оспенникова, В.П. Пискорский, Р.А. Валеев, Д.В. Королев, И.И. Резчикова, Е.И. Куницына, А.Д. Таланцев, А.И. Дмитриев, Р.Б. Моргунов. *ЖЭТФ* **148**, 493 (2015).
- [12] D. Givord, P. Tenaud, T. Viadieu, G. Hadjipanayis. *J. Appl. Phys.* **61**, 3454 (1987).
- [13] С.К. Mylvaganam, P. Gaunt. *Phil. Mag. B* **44**, 581 (1981).
- [14] P. Gaunt. *Phil. Mag. B* **48**, 261 (1983).