

## ФИЗИКА МАГНИТНЫХ ЯВЛЕНИЙ

УДК 537.611.3

### КОЛИЧЕСТВЕННЫЙ АНАЛИЗ ДОМЕННОЙ СТРУКТУРЫ И МИКРОМАГНИТНЫЕ ПАРАМЕТРЫ ГЕТЕРОГЕННЫХ МАГНЕТИКОВ

Ю. М. Смирнов, П. А. Зезюлина, А. В. Зубкова,  
Е. М. Семенова, Ю. Г. Пастушенков

Тверской государственный университет  
кафедра магнетизма

Анализируется возможность применения различных методов определения поверхностной плотности энергии и толщины доменных границ, критерия однодоменного состояния и других микромагнитных параметров к магнитотвердым материалам, находящимся в различном структурном состоянии. Показана необходимость и возможность коррекции традиционных схем анализа при переходе от монокристаллических материалов к микрокристаллическим.

**Ключевые слова:** микромагнитные параметры, магнитотвердые материалы, наноструктура, магнитная доменная структура

**Введение.** Разработка новых методов получения постоянных магнитов на основе сплавов Nd-Fe-B и R-Co связана со значительными модификациями их микроструктуры и необходимости детального изучения их микромагнитного состояния.

На основе данных, которые доступны из анализа магнитной доменной структуры в размагниченном состоянии, можно получить следующую информацию о магнетике: тип анизотропии материала, поверхностную плотность энергии доменных границ (ДГ)  $\gamma$ ; толщину доменных границ  $\delta$ ; критический размер однодоменного состояния  $D_c$ ; обменный параметр  $A$  [1]. При этом схемы исследования материалов с различной природой коэрцитивности должны быть различными [2].

В данной работе анализируются методы количественного анализа микромагнитных параметров материалов, коэрцитивная сила которых обусловлена задержкой образования и роста доменов обратного знака. Объектами исследования выбраны магниты типа Nd-Fe-B следующих составов:  $Nd_{15}Fe_{77}B_8$ ,  $Nd_{13,5}Dy_{1,5}Fe_{77}B_8$ ,  $Nd_{20}Fe_{73,5}B_{6,5}+1,48$  вес.%  $Al_2O_3$ ,  $Nd_{15,2}Fe_{78,3}Ga_{0,4}B_{6,1}$ ,  $Nd_{16}Fe_{56}B_{28}$  и  $Pr_{16}Fe_{57}B_{30}$ .

**Полученные результаты и их обсуждение.** Доменная структура (ДС) в термически размагниченном состоянии на призматических

(содержащих ось текстуры) и базисной (перпендикулярной оси текстуры) плоскостях шлифованных и полированных образцов постоянных магнитов  $\text{Nd}_{15}\text{Fe}_{77}\text{B}_8$ ,  $\text{Nd}_{15,2}\text{Fe}_{78,3}\text{Ga}_{0,4}\text{B}_{6,1}$ ,  $\text{Nd}_{13,5}\text{Dy}_{1,5}\text{Fe}_{77}\text{B}_8$ ,  $\text{Nd}_{16}\text{Fe}_{56}\text{B}_{28}$  в виде кубиков размером  $3 \times 3 \times 3 \text{ мм}^3$  показана на рис. 1. Для выявления ДС использован полярный эффект Керра.

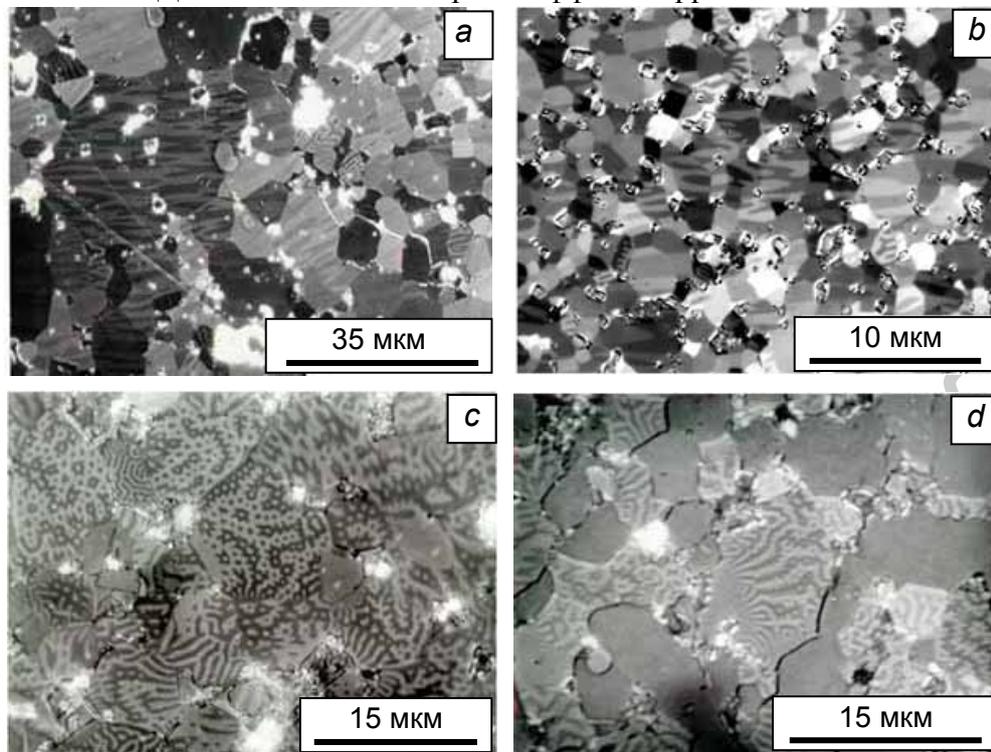


Рис. 1. Доменная структура на призматической (*a*, *b*) и базисной (*c*, *d*) плоскостях термически размагниченных образцов спечённых порошковых магнитов  $\text{Nd}_{15}\text{Fe}_{77}\text{B}_8$  (*a*),  $\text{Nd}_{15,2}\text{Fe}_{78,3}\text{Ga}_{0,4}\text{B}_{6,1}$  (*b*),  $\text{Nd}_{13,5}\text{Dy}_{1,5}\text{Fe}_{77}\text{B}_8$  (*c*),  $\text{Nd}_{16}\text{Fe}_{56}\text{B}_{28}$  (*d*)

Как видно из рис. 1, *a* и *b*, ДС в отдельных зернах на призматических плоскостях порошковых магнитов  $\text{Nd}_{15}\text{Fe}_{77}\text{B}_8$  имеет вид полос, пересекающих зерна в направлении их осей легкого намагничивания. По границам достаточно крупных зёрен обнаруживаются дополнительные замыкающие домены в виде клиньев. Эта структура типична для всех высокоанизотропных одноосных магнетиков, таких, как  $\text{RCO}_5$ ,  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ ,  $\text{RFe}_{11}\text{Ti}$ . Отличие ДС порошковых магнитов от ДС массивных монокристаллов или монокристаллических частиц обусловлено изменениями эффективного значения размагничивающего фактора зёрен  $N_z$  в магните (компактном ансамбле зёрен) по сравнению с изолированными кристаллитами. Имеется ряд модельных представлений, в которых значения размагничивающего поля монокристаллических частиц в ансамбле

связываются с параметрами частиц и средним расстоянием между ними. Для развития этих представлений необходимы дополнительные экспериментальные данные [3].

Важной проблемой является оценка  $N_3$  для постоянных магнитов, что даст возможность при сопоставлении с данными для монокристаллов проводить количественные оценки влияния магнитостатического взаимодействия зёрен на процесс перемагничивания. Теоретический анализ этих эффектов достаточно сложен, и поэтому проводится редко, что приводит к некорректности описания гистерезисных процессов [4].

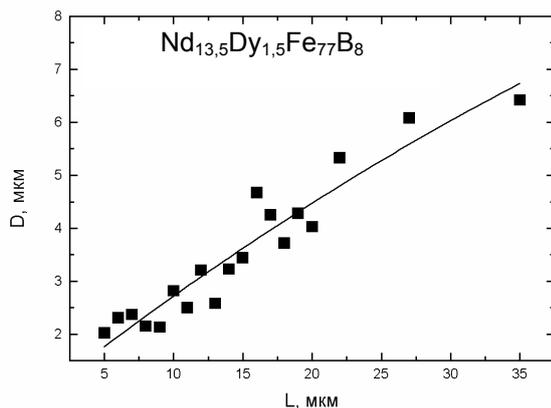
Ширина доменов  $D$  и степень совершенства текстуры магнитов в данной работе определялись по микрофотографиям ДС на призматических плоскостях. Статистическая обработка результатов измерений, выполненная для 400 зёрен на каждом образце, показала, что средний размер зёрен магнита  $Nd_{15}Fe_{77}B_8$  составляет 10,2 мкм,  $Nd_{13,5}Dy_{1,5}Fe_{77}B_8$  – 10,8 мкм,  $Nd_{15,2}Fe_{78,3}Ga_{0,4}B_{6,1}$  – 3,5 мкм,  $Nd_{16}Fe_{56}B_{28}$  – 10,3 мкм. При определении степени совершенства текстуры локальные направления осей легкого намагничивания (ОЛН) определялись по средней ориентации ДГ в каждом зерне. Средние значения отклонений ОЛН зёрен от оси текстуры составили 10,7° и 7,8° соответственно для магнитов  $Nd_{15}Fe_{77}B_8$  и  $Nd_{13,5}Dy_{1,5}Fe_{77}B_8$ , и 5,5° для магнита  $Nd_{15,2}Fe_{78,3}Ga_{0,4}B_{6,1}$ .

Анализ ДС на плоскостях, параллельных оси текстуры, показывает, что в термически размагниченном состоянии в формировании ДС порошковых магнитов проявляются кооперативные эффекты [5]. В отдельных группах зёрен (но не во всех случаях) домены «прорастают» через 3 – 4 зерна. Этот эффект связан с различным строением межзеренных границ, и как следствие, различной степенью магнитной изоляции зёрен. Отсюда степень магнитостатического взаимодействия зёрен может быть оценена с помощью количественного анализа ДС.

Для определения поверхностной плотности энергии 180-градусных доменных границ в фазе  $Nd_2Fe_{14}B$  использовались микрофотографии ДС как на призматических, так и на базисных плоскостях образцов постоянных магнитов  $Nd_{15}Fe_{77}B_8$  и  $Nd_{13,5}Dy_{1,5}Fe_{77}B_8$ . Применялись методы Киттеля [6] и Боденбергера-Хуберта [7]. По результатам измерений ширины доменов  $D$  и размера зёрен  $L$  на призматических плоскостях строились зависимости средней ширины доменов  $D = f(L)$  от размера зерна для всех указанных выше материалов. Пример такой зависимости показан на рис. 2.

Полученные экспериментальные зависимости  $D = f(L)$  анализировались в рамках соотношения

$$D = \alpha L^{2/3} \quad (1)$$



Р и с . 2. Зависимость ширины доменов  $D$  от размера зерен  $L$  на призматической плоскости порошкового постоянного магнита  $\text{Nd}_{13,5}\text{Dy}_{1,5}\text{Fe}_{77}\text{B}_8$

Вычисленные таким образом значения  $\alpha$ , соответствующие измерению  $D$  и  $L$  в мкм, приведены в табл. 1.

Т а б л и ц а 1. Параметры ДС исследованных постоянных магнитов

| Состав   | $W_{\max}$ , мкм | $\gamma$ , эрг/см <sup>2</sup> | $L_{\text{кр}}$ , мкм | $\alpha$ , мкм <sup>1/3</sup> | $\beta$ |
|--|------------------|--------------------------------|-----------------------|-------------------------------|---------|
| $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  | 0,55             | 23                             | 80                    | 0,202                         | -       |
| $\text{Nd}_{15}\text{Fe}_{77}\text{B}_8$   | 0,56             | 23                             | 4                     | 0,527                         | 4       |
| $\text{Nd}_{16}\text{Fe}_{56}\text{B}_{28}$  | 0,6              | 25                             | 8                     | 0,303                         | 2       |
| $\text{Nd}_{20}\text{Fe}_{73,5}\text{B}_{6,5+1,48}$<br>вес.% $\text{Al}_2\text{O}_3$ | 0,63             | 26                             | 8                     | 0,317                         | 2       |

Дополнительно на плоскостях, перпендикулярных оси текстуры порошковых постоянных магнитов  $\text{Nd}_{15}\text{Fe}_{77}\text{B}_8$  и  $\text{Nd}_{16}\text{Fe}_{56}\text{B}_{28}$ , выполнены измерения расстояния между доменными границами  $W_i$ , которые, как показано в работе [7], для монокристаллических материалов однозначно связаны с поверхностной плотностью энергии ДГ. Наш анализ показал, что характер кривых  $W = f(L)$  в магнитах качественно не меняется по сравнению с аналогичной кривой для монокристаллических образцов (рис. 3). Для текстурованных образцов на кривых  $W = f(L)$  также наблюдается насыщение. Значения ширины доменов  $W_{\max}$ , соответствующие насыщению, показаны в табл. 1. Это подтверждает возможность использования данного метода для оценки  $\gamma$  на порошковых магнитах. Проблема оценки толщины зерен  $L$  ( $L$  не измеряется при наблюдении ДС на базисной плоскости) в этом случае была решена сопоставлением кривых  $W(L)$  монокристаллов и значений  $W$ , полученных на текстурованных образцах.

На зависимостях  $W(L)$  для поликристаллов выявляются два характерных участка (рис. 3). На первом участке, в так называемой киттелевской области, когда  $L < L_{\text{cr}}$  выполняется закон  $W \sim L^{1/2}$ . Здесь

$L_{cr}$  – толщина зерна, при которой появляются замыкающие домены. Во второй области ( $L > L_{cr}$ ) появляющиеся замыкающие клинообразные домены существенным образом сказываются на среднем расстоянии между ДГ, вследствие чего на кривой  $W(L)$  наблюдается насыщение.

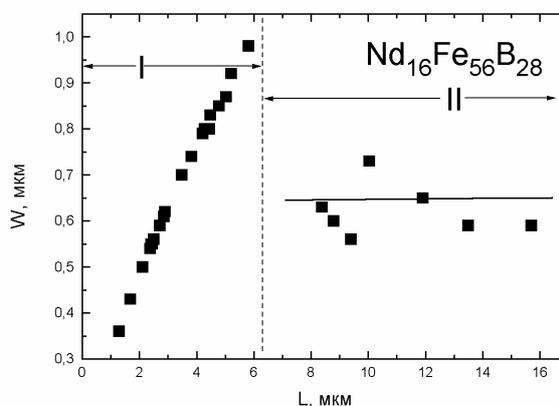


Рис. 3. Зависимости ширины доменов  $W$  от размера зерен  $L$  на базисной плоскости порошкового постоянного магнита  $Nd_{16}Fe_{56}B_{28}$

В модели Боденбергера-Хуберта [7] значение  $W_{max}$  на кривых  $W(L)$  связано с энергией ДГ соотношением

$$W_{max} = \beta 4\pi\gamma / M_S^2 \quad (2)$$

где экспериментально найденное значение  $\beta = 0,31$ . Использование в этом соотношении значения  $4\pi M_S = 16$  кГс дает  $\gamma \approx 24$  эрг/см<sup>2</sup> для всех исследованных образцов.

Следует отметить, что для получения этого результата при наблюдениях ДС необходимо использовать предельно возможные увеличения ( $\sim 2000$ ). В противном случае остаются неучтёнными замыкающие домены диаметром  $\sim 0,5$  мкм, что приводит к существенному завышению энергии доменных границ.

Связь ширины доменов  $D$  в объеме монокристаллов высокоанизотропных одноосных магнетиков в виде пластин с их толщиной  $L$  в методе Киттеля [6] описывается на основе соотношения (1), в котором коэффициент  $\alpha$  вычисляется как

$$\alpha = A\gamma^{1/3} (1/M_S^2 + 2\pi/K_1)^{1/3} \quad (3)$$

где  $A = 0,377$ . Подстановка в (3) значения  $K_1 = 4,5 \cdot 10^7$  эрг/см<sup>3</sup> дает значения  $\gamma$  от 63 эрг/см<sup>2</sup> для магнита  $Nd_{16}Fe_{56}B_{28}$  до 361 эрг/см<sup>2</sup> для  $Nd_{15}Fe_{77}B_8$ . Несовпадение этих данных с результатами измерений на монокристаллах связано с магнитостатическим взаимодействием зерен в порошковых магнитах.

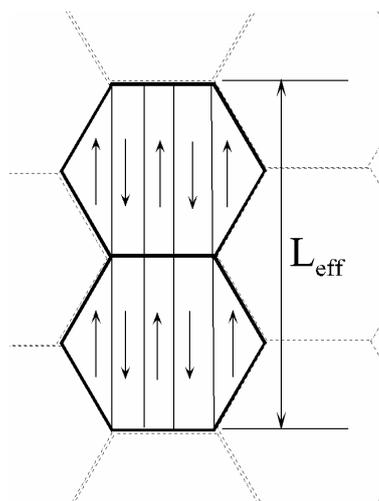


Рис. 4. Кооперативная ДС и эффективный размер зерен  $L_{\text{eff}}$  в порошковых магнитах

Это взаимодействие приводит к «прорастанию» ДГ через несколько зерен (схематически показано на рис. 4). Согласование в расположении ДГ в соседних зернах тем больше, чем выше степень магнитостатического и обменного взаимодействий на их границах. Принципиальное различие в структуре межзеренных прослоек материалов  $\text{Nd}_{15}\text{Fe}_{77}\text{B}_8$ ,  $\text{Nd}_{20}\text{Fe}_{73,5}\text{B}_{6,5} + 1,48 \text{ вес.}\% \text{Al}_2\text{O}_3$  и модельных образцов  $\text{Nd}_{16}\text{Fe}_{56}\text{B}_{28}$  позволяет проследить эти различия по характеру ДС.

Учёт эффекта взаимной связи доменов в соседних зёрнах может быть учтён введением коэффициента  $L_{\text{eff}} = \beta L$  (рис. 4), где  $\beta = (\alpha/0,202 \text{ мкм}^{1/3})^{3/2}$ . Значения коэффициента  $\beta$ , приведенные в таблице 2, дают количественную оценку степени магнитостатического и обменного взаимодействия зерен.

Как видно из таблицы 2, наиболее сильная связь наблюдается в образце  $\text{Nd}_{15}\text{Fe}_{77}\text{B}_8$ . Добавки окиси алюминия в сплав  $\text{Nd}_{20}\text{Fe}_{73,5}\text{B}_{6,5} + 1,48 \text{ вес.}\% \text{Al}_2\text{O}_3$  нарушают обмен на границах зерен. В модельных образцах  $\text{Nd}_{16}\text{Fe}_{56}\text{B}_{28}$  фаза  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  разделена парамагнитными прослойками толщиной порядка 10 мкм, что приводит дополнительно к значительной магнитной изоляции зерен друг от друга. В последнем случае оценки  $\gamma$  на порошковых образцах и монокристаллах должны сближаться между собой, что и имеет место в эксперименте.

Описанная методика позволяет количественно оценить эффект магнитостатического взаимодействия зерен и экспериментально оценивать эффекты варьирования химического состава магнитов с целью повышения их эксплуатационных характеристик.

В наноструктурных материалах для описания их микромагнитного состояния необходимо дополнительно ввести новый параметр – обменную длину [8]:

$$l_{ex} = \sqrt{\frac{A}{\mu_0 M_s^2}} \quad (4)$$

где  $A$  – обменный параметр,  $\mu_0$  – магнитная постоянная,  $M_s$  – намагниченность насыщения.

Обменная длина – это длина, ниже которой атомные обменные взаимодействия доминируют над магнитными дипольными взаимодействиями. Обменная длина, в частности, определяет толщину магнитно-мягких пленок, ниже которой границы Нееля являются энергетически более благоприятными чем границы Блоха, и размер зерен магнитов с двумя фазами, ниже которого петли гистерезиса выглядят так, как у однофазных магнитов.

Этот дополнительный параметр является принципиально важным, так как с ним связан переход от традиционно рассматриваемой когерентной моды перемагничивания [8-11] к неоднородному (некогерентному) вращению. Как видно из выражения (4), эта характеристика не зависит от анизотропии и, в магнитотвердых материалах, намного меньше, чем критический размер однодоменного состояния  $R_{sd}$  (см. табл. 2).

Т а б л и ц а 2. Микромагнитные параметры основных магнитно-твердых материалов при комнатной температуре (значения для Fe и Ni определены как для одноосных материалов) [8-10]

| Материал                           | $\mu_0 M_s$ ,<br>Т | $A$ ,<br>пДж/м | $K_1$ ,<br>МДж/м <sup>3</sup> | $\delta$ ,<br>нм | $\gamma$ ,<br>мДж/м <sup>2</sup> | $l_{ex}$ ,<br>(нм) | $R_{sd}$ ,<br>(нм) |
|------------------------------------|--------------------|----------------|-------------------------------|------------------|----------------------------------|--------------------|--------------------|
| Fe                                 | 2.15               | 8.3            | 0.05                          | 40               | 2.6                              | 1.5                | 6                  |
| Co                                 | 1.76               | 10.3           | 0.53                          | 14               | 9.3                              | 2.0                | 34                 |
| Ni                                 | 0.61               | 3.4            | -0.005                        | 82               | 0.5                              | 3.4                | 16                 |
| BaFe <sub>12</sub> O <sub>19</sub> | 0.47               | 6.1            | 0.33                          | 14               | 5.7                              | 5.9                | 290                |
| SmCo <sub>5</sub>                  | 1.07               | 22.0           | 17                            | 3.6              | 77                               | 4.9                | 764                |
| Nd <sub>2</sub> Fe <sub>14</sub> B | 1.61               | 7.7            | 4.9                           | 3.9              | 25                               | 1.9                | 107                |

В случае наноструктурных материалов применение рассмотренных методов к анализу ДС становится невозможным, так как они в своей основе содержат относительную оценку энергии магнитокристаллической анизотропии и энергии полей рассеяния.

Поэтому изучение микромагнитных характеристик наноструктурных материалов требует других схем анализа, связанных с детальным учётом их структурного состояния.

**Выводы.** Модели ДС, разработанные для монокристаллических образцов конкретной геометрии, применены для исследования текстурованных порошковых магнитных материалов. Подтверждена возможность применения для этих целей метода Боденбергера-Хуберта. Продемонстрированы различия в анализе материалов с задержкой образования и роста доменов обратного знака, материалов с задержкой смещения доменных границ и материалов с комплексным механизмом магнитного гистерезиса. Предложен метод анализа ДС материалов, находящихся в различном структурном состоянии, исходным пунктом которого является оценка энергии доменных границ на монокристаллических образцах и последующее использование полученного значения  $\gamma$  для корректировки результатов вычислений. При этом необходимо учитывать уровень магнитной анизотропии и особенности структурного состояния исследуемых материалов.

Для наноструктурных материалов необходима дальнейшая разработка специальных методов количественного анализа доменной структуры, учитывающих специфику их микромагнитного состояния.

Работа поддержана грантами РФФИ № 09-02-01274, АВЦП Минобрнауки РФ, ФЦП «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России на 2009-2013 годы».

### **Список литературы**

1. Hubert A., Schäfer R. Magnetic Domains. The Analysis of Magnetic Microstructures. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg. 1998. P.696.
2. Kronmüller H. Recent developments in high-tech magnetic materials // J. Magn. Mater. 1995. V. 140-144. P. 25–28.
3. Кондорский Е.И. Природа высокой коэрцитивной силы мелкодисперсных ферромагнетиков и теория однодоменной структуры // Изв. АН СССР. Серия физическая. 1952. Т. XVI. №4. С. 398–411.
4. Пастушенков Ю.Г. Трансформация доменной структуры в области спин-переориентационных фазовых переходов и в процессе перемагничивания редкоземельных тетрагональных магнетиков на основе железа. Докт. дисс. Тверь, 2000. 383 с.
5. Власова Н.И., Кандаурова Г.С., Оноприенко Л.Г., Щеголева Н.Н. Кооперативные доменные структуры в высокоанизотропных сплавах с двойниковой микроструктурой // УФН. 1992. Т.162, №5. С.161–197.
6. Kittel Ch. Theory of structure of ferromagnetic domains in films and small particles // Phys. Rev. 1946. V. 70, №11. P.965–971.
7. Bodenberger R., Hubert A. Zur Bestimmung der Blochwandenergie von einachsigem Ferromagneten // Phys. Stat. Sol. (a). 1977. Bd. 44. S .K7–K11.

8. Handbook of Advanced Magnetic Materials. V.1. Ed. Yi Liu, D.J. Sellmyer, D. Shindo. Tsinghua University Press, Springer, 2006. 378 p.
9. Rare-earth Iron Permanent Magnets. Ed. J.M.D. Coey. Clarendon Press. Oxford. 1996. 522 p.
10. Handbook of Magnetism and Advanced Magnetic Materials. Ed. Kronmüller H. and Parkin S. Wiley. 2006.
11. Stoner E.C., Wohlfarth E.P. A mechanism of magnetic hysteresis in heterogeneous alloys // Phil. Trans. Roy. Soc. (London). 1948. V.240-A. P.599-642.

### **QUANTITATIVE DOMAIN STRUCTURE ANALYSIS AND MICROMAGNETIC PARAMETERS OF HETEROGENEOUS MAGNETS**

**Yu. M. Smirnov, P. A. Zezulina, A. V. Zubkova,  
E. M. Semenova, Yu. G. Pastushenkov**

Tver State University  
*Chair of magnetism*

The applicability of different methods of estimation of the surface energy and domain wall thickness, criterion of single domain state and other micromagnetic parameters to the case of magnetically hard materials in different structural states is analyzed. The necessity and possibility of traditional analytical schemes modification for the transition from mono- to microcrystalline materials is shown.

**Keywords:** *micromagnetic parameters, hard magnetic materials, nanostructure, magnetic domain structure*

*Об авторах:*

СМИРНОВ Юрий Мстиславович – доктор технических наук, профессор, заведующий кафедрой прикладной физики ТвГУ, *e-mail:* yu.smirnoff@tversu.ru;

ЗЕЗЮЛИНА Полина Александровна – аспирант кафедры магнетизма ТвГУ;

ЗУБКОВА Анна Викторовна – аспирант кафедры магнетизма ТвГУ;

СЕМЕНОВА Елена Михайловна – кандидат физ.-мат. наук, доцент кафедры магнетизма ТвГУ, *e-mail:* semenova\_e\_m@mail.ru;

ПАСТУШЕНКОВ Юрий Григорьевич – доктор физ.-мат. наук, профессор, заведующий кафедрой магнетизма ТвГУ, *e-mail:* yupast@mail.ru.