

ФИЗИКА МАГНИТНЫХ ЯВЛЕНИЙ

УДК 537.6

ВЛИЯНИЕ МИКРОСТРУКТУРЫ НА МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА ПОСТОЯННЫХ МАГНИТОВ $R_2M_{14}B$

Е. М. Семенова¹, Б. Н. Викторов¹, А. И. Иванова¹, А. А. Лукин²

¹*Тверской государственной университет, Тверь, Россия*

²*ОАО «Спецмагнит», Москва, Россия*

Определены параметры микроструктуры, магнитной доменной структуры и элементный состав фаз постоянных магнитов типа $R_2M_{14}B$ ($R = Nd, Pr, Gd, Dy, Tb$; $M = Fe, Co, Al, Cu$). Установлена корреляция между гистерезисными характеристиками и микроструктурой магнитов.

Ключевые слова: *постоянные магниты, микроструктура, магнитная доменная структура, магнитные свойства*

1. Введение. Соединения $R_2Fe_{14}B$ (R – редкоземельный элемент) служат основой для получения постоянных магнитов (ПМ) с экстремально высокими значениями энергетического произведения. При комнатной температуре теоретический предел $(BH)_{max}$ высокоанизотропного интерметаллида $Nd_2Fe_{14}B$ составляет $64 \text{ МГс}\cdot\text{Э}$, что является абсолютным рекордом среди известных магнетиков [1, 2]. Однако относительно невысокая температура Кюри основной фазы этого соединения ограничивает верхний температурный интервал применения магнитов рассматриваемого типа значениями порядка 200°C . Достичь оптимального сочетания гистерезисных свойств и их температурной стабильности возможно только путём легирования базового сплава [3, 4]. В настоящее время этот метод является обычной практикой. В настоящей работе рассматриваются ПМ, в которых в качестве элементов замещения неодима выступают атомы тяжелых редкоземельных металлов Pr, Gd, Dy и Tb , а атомы железа частично замещаются атомами Co, Al и Cu . Легирующие добавки призваны повысить основные эксплуатационные характеристики ПМ данного типа. Основной задачей настоящего исследования является установление корреляции между реальной микроструктурой материала и его гистерезисными параметрами.

2. Методика эксперимента. Выплавка исходных сплавов осуществлялась в вакуумной индукционной печи из чистых шихтовых материалов в среде особоочистого аргона с последующей разливкой в медную щелевую водоохлаждаемую изложницу. Далее следовало гидридное диспергирование до фракции менее 300 мкм, с последующим размолотом в изопропиловом спирте в вибрационной шаровой мельнице до средней фракции 3...4 мкм. Влажное прессование при давлении 500 кг/см² производилось в поперечном магнитном поле 10 кЭ. После обезгаживания в течение четырех часов производилось спекание при $T = 1100^{\circ}\text{C}$ в течение 2-х часов. Термообработки выполнялись в вакууме по следующим режимам: 1) 900°C в течение 2-х часов с последующей закалкой (ПМ1), и 2) 900°C в течение 2-х часов с последующим медленным (6 часов) охлаждением до 500°C (1...2 часа), а затем охлаждение до комнатной температуры (ПМ2).

Металлографические шлифы приготавливались на базисной плоскости спеченных магнитов. Исследование микроструктуры и фазового состава поверхности шлифов выполнялось методами оптической и растровой электронной микроскопии (РЭМ). В работе использовались оптические металлографические микроскопы фирмы Carl Zeiss Neophot 30 и Axiovert 200MAT. Оценка параметров микроструктуры порошковых магнитов производилась при помощи специализированной программы AxioVision Grains. На растровом электронном микроскопе JEOL JSM-6610LV были выполнены исследования не только микроструктуры, но и элементного фазового состава ПМ. Для анализа микро- и наноструктуры поверхности применялся также сканирующий зондовый микроскоп Solver P47 (NT MDT). Для выявления магнитной доменной структуры (ДС) на поверхности магнитов использовался полярный эффект Керра. Анализ ДС производился по методу Боденбергера-Хуберта [5].

Измерение магнитных свойств производилось на образцах в форме дисков на гистерографе МН-50. Температурный коэффициент магнитной индукции определялся на кольцевых магнитах с помощью магнитометрической установки с применением датчиков Холла, а также на образцах в виде пластин в составе магнитной цепи, моделирующей работу электронного прибора.

3. Результаты и их обсуждение. Основные гистерезисные характеристики полученных постоянных магнитов приведены в таблице 1, в которой представлены значения магнитной индукции B_r , коэрцитивной силы по намагниченности H_{cl} , коэрцитивной силы по индукции H_{cB} , максимального энергетического произведения $(BH)_{max}$, обратимого температурного коэффициента индукции α в диапазоне температур 20...100°C. На рис. 1 приведены результаты измерений, выполненные на гистериографе. Видно, что применение отжига при 900°C с последующим медленным охлаждением до 500°C приводит к увеличению коэрцитивной силы постоянного магнита по намагниченности ПМ на 5 кЭ. Коэрцитивная сила является структурно-чувствительной характеристикой ПМ и обусловлена его реальной микро- и наноструктурой, изучению которых посвящена следующая часть работы.

Таблица 1. Основные характеристики полученных магнитов

Характеристик а	ПМ1	ПМ2
B_r	9,3 кГс	9,3 кЭ
H_{cl}	16,2 кЭ	20,5 кЭ
H_{cB}	9 кЭ	9 кЭ
$(BH)_{max}$	21 МГс Э	21 МГс Э
α	$\ll 0,025 \text{ \% / C}$	$\ll 0,025 \text{ \% / C}$

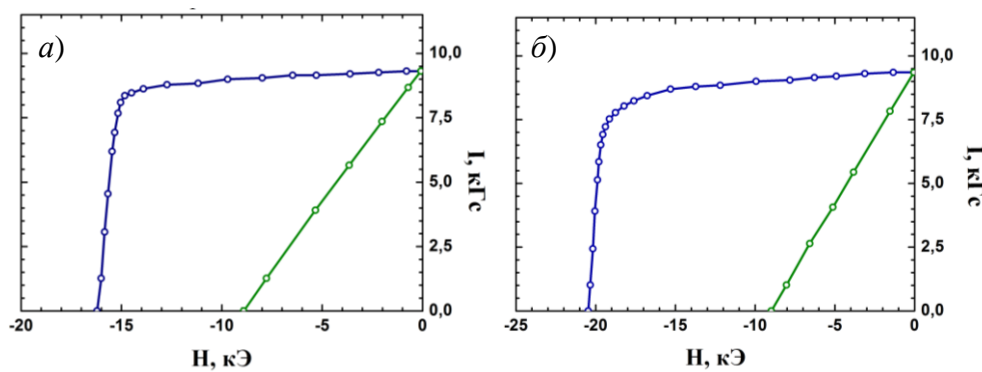
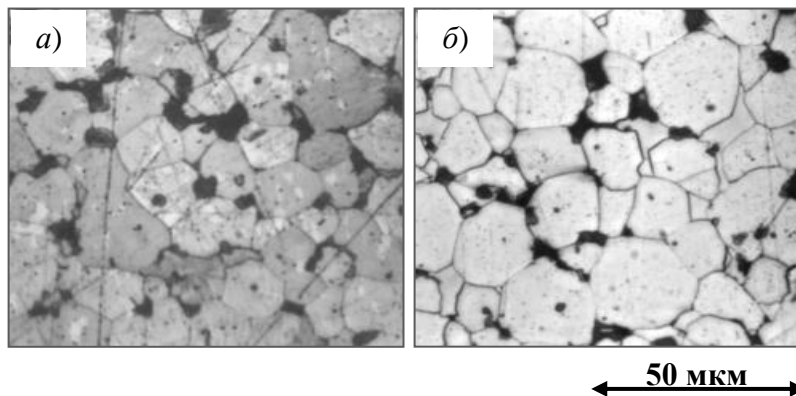


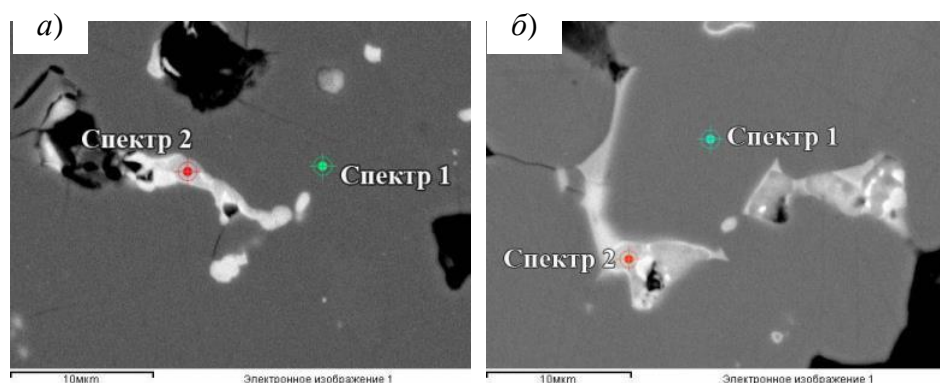
Рис. 1. Полевые зависимости намагниченности и индукции образцов ПМ1 (а) и ПМ2 (б)

Исследование микроструктуры постоянных магнитов выполнялось преимущественно на базисной плоскости. На рис. 2 представлены типичные микроструктуры, полученные после

химического травления поверхности шлифов образцов ПМ1 и ПМ2. Анализ распределения сечения зерен по размеру на поверхности шлифов позволил сделать вывод, что наиболее вероятный средний размер зерен в постоянных магнитах ПМ1 и ПМ2 составляет 23...25 мкм.



Р и с . 2. Микроструктура, выявленная на базисной плоскости постоянных магнитов методом химического травления: а) ПМ1, б) ПМ2



Р и с . 3. Электронное изображение поверхности магнитов ПМ1 (а) и ПМ2 (б)

Исследования методом РЭМ выполнялись на образцах, подвергнутых электрохимическому травлению в насыщенном растворе хромового ангидрида в ортофосфорной кислоте. Такое травление позволяет визуализировать области разного химического состава за счет формирования рельефной поверхности, отражающей микро- и наноструктуру материала. На рис. 3 приведены изображения базисной поверхности магнитов ПМ1 (рис. 3, а) и ПМ2 (рис. 3, б). Визуально микроструктура этих магнитов практически не отличается. Темно-серые области соответствуют матричной, а светлые области – граничной фазе.

Черные области соответствуют пустотам, образовавшимся в процессе механической полировки в области межзеренных границ.

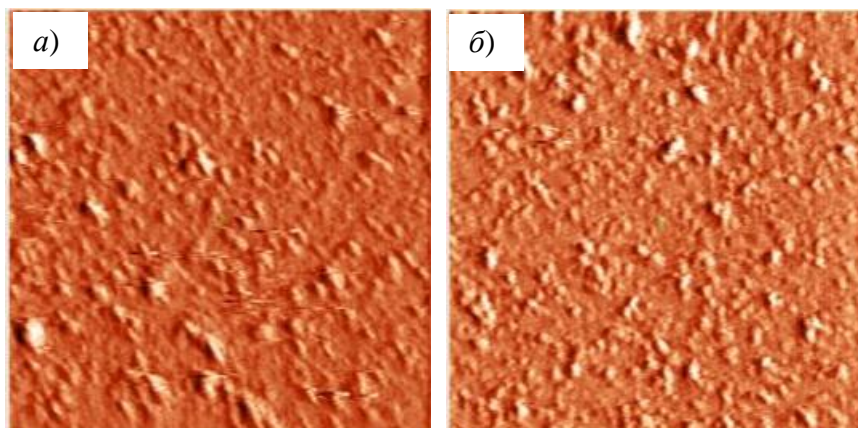
В таблице 2 приведены результаты количественного анализа спектров (в масс. %). Видно, что в граничной фазе присутствует кислород, что указывает на наличие оксидов РЗМ.

В границах зерен магнитов с высокой коэрцитивной силой повышено содержание редкоземельных элементов (Nd и Pr) на 38% и снижено содержание Co и Fe на 80%. Легирование кобальтом приводит к понижению поля анизотропии и ухудшению магнитной изоляции зерен. В связи с этим в магнитах группы ПМ2 реализуется более высокая коэрцитивная сила.

Таблица 2. Результаты количественного микроанализа

Образец	Спектр	O	Fe	Co	Pr	Nd	Gd	Tb	Dy
ПМ1	1		60.75	15.06	5.31	8.40		1.98	8.51
	2	13.31	22.58	5.95	14.64	14.34	3.45		25.73
ПМ2	1		60.54	14.83	5.05	5.50		2.13	11.95
	2	18.60	3.73	1.34	23.87	22.88	3.86		25.73

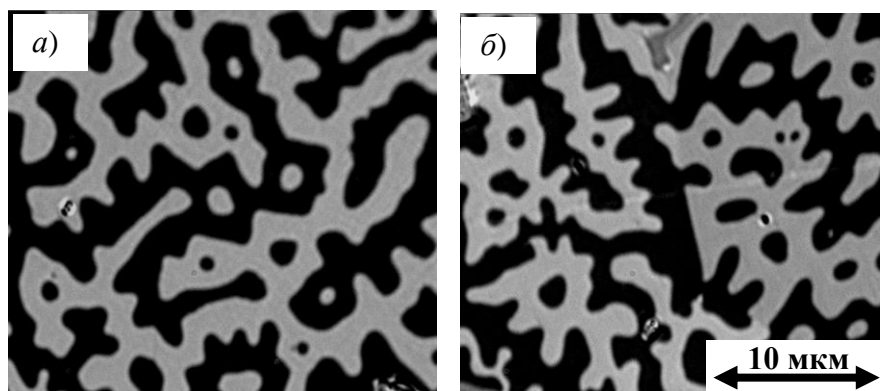
В следующей части работы поверхность образцов была изучена на сканирующем зондовом микроскопе Solver P47. На рис. 4 приведены АСМ-изображения, полученные на базисной плоскости магнитов.



Р и с . 4. АСМ-изображения (500×500 нм) полученные на базисной плоскости постоянных магнитов ПМ1 (а) и ПМ2 (б) после электрохимического травления.

Размер представленных полей зрения составляет 500×500 нм. Обнаружено, что матричная поверхность зерен всех исследованных ПМ содержит регулярные выделения размером $10 \dots 15$ нм, имеющие форму, близкую к сферической. Состав этих областей в нашем эксперименте определить не удалось. Следует отметить, что существенных отличий по наноструктуре основной фазы в образцах ПМ1 и ПМ2 выявлено не было.

ДС образцов на базисной плоскости представлена на рис. 5. Видно, что структура замыкающих доменов имеет конфигурацию типичную для одноосных магнетиков – «звездочки» [5]. Оценка поверхностной плотности энергии доменных границ (ДГ) производилась по методу Боденбергера-Хуберта. Этот метод применяется для анализа магнитной ДС на базисной плоскости магнетиков с магнитокристаллической анизотропией типа «ось легкого намагничивания» [5]. Вычисления показали, что поверхностная плотность энергии ДГ: в образце ПМ1 составляет $40,0$ эрг/см², а в образце ПМ2 – $36,6$ эрг/см².



Р и с . 5. Магнитная доменная структура, выявленная методом полярного эффекта Керра на базисной плоскости постоянных магнитов ПМ1 (а) и ПМ2 (б).

4. Заключение. Анализ микроструктуры постоянных магнитов NdPrGdDyTbFeCoAlCuB, подвергнутых закалке (ПМ1) и медленному охлаждению до 500°C в течение 6 часов (ПМ2) показал, что средний размер зерен составляет 23...25 мкм. Применение режима медленного охлаждения приводит к повышению их коэрцитивной силы H_{cl} на 20%. Методами РЭМ обнаружено, что в границах зерен магнитов с высокой H_{cl} повышено содержание Nd и Pr на 38% и снижено содержание Co и Fe на 80% относительно образцов ПМ1. Таким образом, повышение коэрцитивности обусловлено также улучшением магнитной изоляции зерен, за счет существенно снижения содержания железа и кобальта в граничной фазе. Возможно, обнаруженные в матричной фазе методами АСМ наноразмерные (10...15 нм) сферические выделения являются следствием концентрационных неоднородностей, возникающими из-за напряжений в процессе кристаллизации сплава. Во всех образцах ПМ обнаруженные наноструктуры идентичны. Комплексный анализ результатов магнитных измерений и магнитной доменной структуры указывает на то, что наноструктура в данных образцах, видимо, не оказывает существенного влияния на величину H_{cl} .

Список литературы

1. Sagawa M., Fujimura S., Yamamoto H., Matsuura Y., Hiraga K. Permanent magnet material based on the rare earth-iron-boron tetragonal compounds // IEEE Trans. Magn. 1984. V. MAG-20. №5. P.1584–1589.
2. Herbst J.F. $R_2Fe_{14}B$ materials: Intrinsic properties and technological aspects // Reviews of Modern Physics. 1991. V. 63. № 4. P. 819–898.

3. Пискорский В. П., Валеев Р. А., Терешина И. С., Бронфин М. Б., Чабина Е. Б., Давыдова Е. А., Бузенков А. В. Магнитные свойства и фазовый состав материалов системы Pr – Dy – Fe – Co – B // Перспективные материалы. 2007. № 3. С. 16–19.
4. Лукин А. А. Исследование изменения магнитного состояния магнитов типа NdRFeMB при термомагнитных воздействиях // Перспективные материалы. 2010. № 3. С. 145–150.
5. Пастушенков Ю.Г. Магнитная доменная структура. Количественный анализ микромагнитных параметров: Монография. Тверь: Тверской госуниверситет, 2007. 151 с.

**INFLUENCE OF MICROSTRUCTURE ON THE MAGNETIC
PROPERTIES OF R₂M₁₄B PERMANENT MAGNETS**

E. M. Semenova, B. N. Victorov, A. I. Ivanova, A. A. Lukin

Tver State University, Chair of magnetism

JSC «Spetsmagnit», Moscow, 127238

Microstructure parameters, magnetic domain structure and element composition of R₂M₁₄B (R = Nd, Pr, Gd, Dy, Tb; M = Fe, Co, Al, Cu) permanent magnets were examined. A correlation between the hysteresis parameters and microstructure is established.

Keywords: *permanent magnets, microstructure, magnetic domain structure, magnetic properties*

Об авторах:

СЕМЕНОВА Елена Михайловна – канд. физ.-мат. наук, доцент кафедры магнетизма Тверского государственного университета (ТвГУ); e-mail: Semenova_E_M@mail.ru;

ВИКТОРОВ Борис Николаевич – магистр физики ТвГУ;

ИВАНОВА Александра Ивановна – научный сотрудник кафедры прикладной физики Тверского государственного университета (ТвГУ), e-mail: shur67@yandex.ru;

ЛУКИН Александр Александрович – канд. физ.-мат. наук, ОАО «Спецмагнит», Москва, Россия; e-mail: aleksandrlukin@rambler.ru