

晶粒取向、相互作用与钕铁硼磁体的矫顽力^{*}

高汝伟^① 李 卫^② 张建成^① 吴良学^① 喻晓军^②

(^①山东大学物理系, 济南 250100, ^②钢铁研究总院新材料研究所, 北京 100081)

摘要 钕铁硼磁体的矫顽力由单个晶粒的矫顽力和晶粒之间的相互作用决定. 单个晶粒的矫顽力及其相互作用与晶粒的取向有关. 采用“ $\tan\theta$ ”型 Gaussian 分布函数表示烧结钕铁硼磁体的晶粒取向. 按照不同的矫顽力机制, 单个晶粒的矫顽力及其角度关系有不同的表达式. 晶粒相互作用可分为长程静磁相互作用和近邻晶粒的交换耦合相互作用. 烧结磁体的晶粒尺寸较大, 且晶粒界面被非磁性层间隔, 交换作用影响很小, 静磁相互作用影响较大, 使晶粒混乱取向磁体的矫顽力大于晶粒理想取向磁体的矫顽力. 综合考虑单个晶粒的矫顽力和晶粒之间的相互作用的影响, 按照发动场理论计算的矫顽力值与烧结钕铁硼磁体的实验结果符合较好.

关键词 烧结钕铁硼磁体 晶粒取向 交换耦合相互作用 长程静磁相互作用 矫顽力

矫顽力是决定永磁材料硬磁性能的一个重要参数. 关于 NdFeB 磁体的矫顽力机制, 存在不同的理论模型和观点, 但普遍认为可以采用下面的经验公式描述 NdFeB 磁体的矫顽力^[1~3]

$$H_c = \alpha \frac{2K_1}{J_s} - N_{\text{eff}} M_s, \quad (1)$$

式中 $2K_1/J_s$ 是硬磁性 Nd₂Fe₁₄B 晶粒的各向异性场, α 表示晶粒表面缺陷对矫顽力的减小系数, N_{eff} 是有效退磁因子, 包括晶粒的自退磁效应和晶粒之间的静磁相互作用的退磁效应.

不同的矫顽力理论对(1)式中的系数有不同的解释. Kronmüller 等人^[1] 坚持成核机制控制烧结 NdFeB 磁体的矫顽力, 认为晶粒表面软磁性区的反磁化核一旦形成, 整个晶粒立刻反磁化, 成核场决定矫顽力. 公式(1)中的 α 可表示为^[1]

$$\alpha_n = \frac{\delta_B}{\pi r_0} = \frac{1}{r_0} \sqrt{\frac{A_1}{K_1 + K_2}}, \quad (2)$$

式中 r_0 , δ_B 和 A_1 分别表示硬磁性晶粒边界软磁性区的等效厚度、畴壁厚度和单位长度的交换能.

Givord 等人^[2] 也认为晶粒边界处反磁化畴的成核场决定钕铁硼磁体的矫顽力. 与

Kronmüller 等人的观点不同, Givord 认为晶粒边界处的磁晶各向异性不比晶粒内部小, 反磁化核是在晶粒边界处一个小体积(激活体积)内热激活产生的. 矫顽力可以表示为^[3]

$$H_c = \alpha \frac{\gamma}{J_v^{1/3}} - N_{\text{eff}} M_s - 25 S_v, \quad (3)$$

式中 v , S_v 和 γ 分别是激活体积, 磁粘滞系数和 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 晶粒的畴壁能密度, N_{eff} 与 (1) 式有相同的意义.

Gao 等人^[4, 5] 提出了发动场理论解释钕铁硼磁体的矫顽力. 这个理论采用“ $\tan \theta$ ”型 Gaussian 函数表示磁体晶粒的取向分布. 晶粒易磁化(c)轴与磁体织构(r)轴夹角为 θ 的晶粒的分布几率可以表示为

$$P(\theta) = \frac{1}{\sigma} \sqrt{\frac{2}{\pi}} \exp\left[-\left(\frac{\tan^2 \theta}{2\sigma^2}\right)\right], \quad (4)$$

式中 σ 是表示晶粒取向分布程度的分布系数, 其数值由归一化条件

$$\int_0^{\pi/2} P(\theta) d(\tan \theta) = 1, \quad (5)$$

和剩磁比 (6) 式确定^[4]

$$\frac{J_r}{J_s} = \int_0^{\pi/2} P(\theta) \cos \theta d(\tan \theta). \quad (6)$$

发动场理论认为^[4]: 晶粒边界处反磁化核的尺寸很小, 仅具有畴壁的数量级, 它必须长成大畴并且从晶粒边界向内部不可逆地移动畴壁, 才能使整个晶粒反磁化. 在反磁化核长大的过程中, 伴随着体积和表面积的增加, 所需要的能量用扩张场 H_e 表示. 反磁化核长大的过程是靠不可逆移动核与晶粒其他部分界面(畴壁)实现的, 这需要克服由于畴壁能密度变化造成的阻力, 用临界场 H_0 表示所需要的能量. 使晶粒反磁化所需要的发动场应是扩张场 H_e 和临界场 H_0 的和, 考虑到退磁场的作用, 发动场可表示为^[4]

$$H_s = \frac{1}{2J_s} \frac{\gamma}{r_0} \left(1 + \frac{\pi}{2}\right) - N_{\text{eff}} M_s. \quad (7)$$

(7) 式可以用 (1) 式的形式表示, 其中参数 α 可表示为^[4]

$$\alpha_s = \frac{(1 + \pi/2)}{2r_0} \sqrt{\frac{A_1}{K_1}} \left[1 + \frac{K_1 + K_2}{\sqrt{K_1 K_2}} \arcsin \sqrt{\frac{K_2}{K_1 + K_2}}\right]. \quad (8)$$

磁体的矫顽力应该由成核场 H_n 和发动场 H_s 中较大的一个确定, 对比 α_n 与 α_s 可知, $H_s > H_n$, 所以钕铁硼磁体的矫顽力应该由发动场确定.

在以前关于钕铁硼磁体矫顽力的讨论中, 没有涉及晶粒之间的相互作用. 本文中我们综合考虑单个晶粒的矫顽力以及晶粒之间的相互作用对磁体矫顽力的影响, 把不同矫顽力机制的理论值与实验结果进行比较, 以确定最符合钕铁硼磁体的矫顽力机制.

1 晶粒矫顽力的角度关系

如果沿磁体的织构轴方向施加磁化场, 则晶粒易轴与施加磁场的夹角就等于晶粒易轴与磁体织构轴的夹角 θ . 以 $\theta = 0^\circ$ 时晶粒的矫顽力 $H_c(0)$ 为标准, θ 为任意值时晶粒的矫顽力 $H_c(\theta)$ 与 $H_c(0)$ 之比 $H_c(\theta)/H_c(0)$ 称为晶粒的约化矫顽力 $g(\theta)$. 按照不同的矫顽力机制,

$g(\theta)$ 有不同的表示形式. 按照 Krommüller 等人的成核机制, $g(\theta)$ 可表示为^[1, 3]

$$g_n(\theta) = \frac{1}{(\sin^{2/3}\theta + \cos^{2/3}\theta)^{3/2}} \times \left[1 + \frac{2K_2}{K_1} \times \frac{\tan^{2/3}\theta}{1 + \tan^{2/3}\theta} \right]. \quad (9)$$

$g_n(\theta)$ 相当于 Krommüller 的成核机制矫顽力公式中的 α_0 ^[1, 3].

按照 Givord 等人的热激活理论或矫顽力的钉扎机制, 晶粒的约化矫顽力 $g(\theta)$ 应满足^[2, 3]

$$g_p(\theta) = 1/\cos\theta, \quad (10)$$

按照矫顽力的发动场理论, 考虑到扩张场 H_e 和临界场 H_0 在发动场中所占的比例及其随磁场方向的变化规律, 得出晶粒的约化矫顽力 $g(\theta)$ ^[4, 5]

$$g_s(\theta) = c_1 + c_2/\cos\theta, \quad (11)$$

式中 c_1 和 c_2 为由 H_0 和 H_e 的比例确定的系数, 满足关系 $c_1 + c_2 = 1$. 根据计算 $c_1 \approx 0.6$, $c_2 \approx 0.4$ ^[4].

2 磁体的矫顽力及其与晶粒取向程度的关系

烧结钕铁硼磁体由大量的具有 μ_m 尺寸的晶粒构成, 磁体的矫顽力与每个晶粒的矫顽力及晶粒之间的相互作用有关. 晶粒之间的相互作用取决于磁体具体的微结构(晶粒大小、形状、取向及耦合程度等). 本文中, 我们假定除了晶粒取向程度不同外, 磁体的其他微结构参数都是相同的. 这样我们可以从比较晶粒取向程度对磁体矫顽力的影响研究钕铁硼磁体的矫顽力机制.

对于由大量单轴各向异性晶粒构成的磁体, 在不同的磁化状态, 晶粒磁矩的取向分布是不同的. 在饱和磁化状态, 所有的晶粒磁矩完全在施加的外磁场方向取向. 在去掉外场后的剩磁状态, 各晶粒磁矩在各向异性场的影响下转回各自的易磁化方向, 分布在以外场方向为对称轴的半球内. 在矫顽力状态, 在反方向外场的作用下部分晶粒的磁矩翻转方向, 另一部分晶粒磁矩仍然保持原来的取向, 两部分不同取向的磁矩在外磁场方向的投影互相抵消. 假设各晶粒磁矩相等, 处于临界翻转状态的磁矩与磁体织构轴(即施加的外场方向)的夹角为 θ_0 , 则 θ_0 应该由下式确定

$$\int_0^{\theta_0} P(\theta) \cos\theta d(\tan\theta) = \int_{\theta_0}^{\pi/2} P(\theta) \cos\theta d(\tan\theta). \quad (12)$$

比较(12)式和(6)式, 可以得出处于矫顽力临界翻转状态晶粒的偏离角 θ_0 应由下式确定

$$\int_0^{\theta_0} P(\theta) \cos\theta d(\tan\theta) = \frac{1}{2} \frac{J_r}{J_s}. \quad (13)$$

具有取向系数 σ 的磁体的矫顽力可以用磁体内处于临界翻转状态(具有临界偏离角 θ_0) 的晶粒的矫顽力表示. 下面我们研究在两种不同条件下具有不同晶粒取向磁体的矫顽力: 一种情况是忽略晶粒之间的相互作用; 另一种情况是考虑晶粒之间的相互作用.

2.1 忽略晶粒之间相互作用时磁体的矫顽力

如果忽略晶粒之间的相互作用, 磁体可以看作是由彼此孤立的晶粒构成的. 这样, 晶粒磁矩翻转不受磁体内其他晶粒磁状态的影响. 我们用处于临界偏离角 θ_0 的晶粒的矫顽力表示具有取向系数 σ 的磁体的矫顽力 $H_c(\sigma)$. 磁化的约化矫顽力 $h'(\sigma) = H_c(\sigma)/H_c(0)$, 可以用具有临界偏离角 θ_0 的晶粒的约化矫顽力表示, 即

$$h'(\sigma) = g(\theta_0), \quad (14)$$

式中 $g(\theta_0)$ 根据不同的矫顽力机制有不同的表示形式, 按照 Kronmüller 的成核机制、Givord 的热激活理论或钉扎机制及发动场理论, $g(\theta_0)$ 应分别由 $g_n(\theta_0)$, $g_p(\theta_0)$ 及 $g_s(\theta_0)$ 表示.

2.2 考虑晶粒相互作用时磁体的矫顽力

钕铁硼磁体内的晶粒相互作用大体可分两类: 一类是长程静磁相互作用或偶极相互作用, 另一类是近邻晶粒的交换耦合相互作用. 两种相互作用都使磁体的矫顽力下降, 但具体的作用影响程度取决于磁体的微结构. 对于由较大的不规则晶粒、特别是理想取向晶粒构成的磁体, 静磁相互作用使磁体矫顽力下降作用比较明显^[6,7]. 当晶粒尺寸较小、晶粒之间直接耦合较多且混乱取向时, 交换耦合相互作用的影响较大. 交换耦合相互作用使晶粒有效各向异性减小、磁矩取向集中、剩磁增强、矫顽力下降^[7,8]. 对于烧结钕铁硼磁体, 由于晶粒尺寸较大 ($\sim \mu\text{m}$ 数量级), 并且晶粒之间多数被非磁性相间隔, 所以晶粒之间的交换耦合相互作用比较弱, 对磁体矫顽力的影响较小, 而长程静磁相互作用对磁体矫顽力的影响较大^[5,7]. 由混乱取向晶粒构成的烧结钕铁硼磁体没有明显的剩磁增强效应证实了上述结论^[4]. 下面我们只考虑长程静磁相互作用对烧结钕铁硼磁体矫顽力的影响. Fidler 等人^[9]指出: 静磁相互作用使由理想取向晶粒构成的磁体的矫顽力比孤立晶粒的矫顽力下降 20%. Schrefl 等人^[6]的研究表明: 静磁相互作用使双晶粒系统的矫顽力比单个晶粒的矫顽力下降 10%.

文献[7]指出: 长程静磁相互作用对矫顽力的影响可以归类于退磁场项 $-N_{\text{eff}}M_s$, 其中有效退磁因子 N_{eff} 应当包括晶粒的自退磁作用和晶粒之间的静磁相互作用. 当所有晶粒平行取向时 ($\sigma \sim 0$), M_s 为磁体的饱和磁化强度. 当晶粒非平行取向时, M_s 应为各晶粒磁矩的平均值 $M_s \cos \bar{\theta}$, 这里 $\bar{\theta}$ 是晶粒的平均偏离角. 对晶粒完全混乱取向的磁体, $M_s \cos \bar{\theta}$ 应等于 $\frac{1}{2}M_s$. 我们采用 Fidler 的研究结果, 即静磁相互作用使由理想取向晶粒构成的磁体的矫顽力比孤立晶粒的矫顽力下降 20%. $H_c(\text{理想取向})(\sigma=0) = 0.8H_c(\text{孤立})$. 对晶粒完全混乱取向的磁体, 有效磁化强度下降约 1/2, 静磁相互作用使矫顽力的减小效应也应该下降 1/2. 因此静磁相互作用使由完全混乱取向晶粒构成的磁体的矫顽力比孤立晶粒的矫顽力下降约 10% ($20\% \times 1/2$). 即 $H_c(\text{混乱取向})(\sigma=3.05) = 0.9H_c(\text{孤立})$. 取晶粒理想取向磁体的矫顽力 $H_c(\text{理想取向})(\sigma=0)$ 为标准, 静磁相互作用使完全混乱取向晶粒构成的磁体的矫顽力 $H_c(\text{混乱取向})(\sigma=3.05)$ 相对增强为

$$\eta(3.05) = \frac{H_c(3.05)}{H_c(0)} = \frac{0.9H_c(\text{isol.})}{0.8H_c(\text{isol.})} = 1.125. \quad (15)$$

设静磁相互作用使不同晶粒取向磁体的矫顽力随取向系数 σ 线性增加, 即

$$\eta(\sigma) = \frac{H_c(\sigma)}{H_c(0)} = 1 + \frac{0.125}{3.05}\sigma = 1 + 0.014\sigma. \quad (16)$$

综合考虑到每个晶粒的不同取向及晶粒之间静磁相互作用的影响, 具有取向系数 σ 磁体的约化矫顽力应该用下式表示

$$h(\sigma) = \frac{H_c(\sigma)}{H_c(0)} = h'(\sigma)\eta(\sigma) = g(\theta_0)\eta(\sigma). \quad (17)$$

式中 $g(\theta_0)$ 是具有临界偏离角 θ_0 的晶粒的约化矫顽力.

3 理论与实验的比较

我们采用文献[4] 给出的烧结Nd₁₅Fe_{78.2}B_{6.8}的实验结果, 在磁粉压型时施加不同强度的取向磁场以得到不同取向程度的磁体, 其他工艺过程完全相同, 这样除了晶粒取向程度不同外, 磁体的其他微结构参数相同. 我们可以仅研究晶粒取向度对磁体矫顽力的影响. 表 1 给出了实验结果, 其中磁化的约化矫顽力 $h_{\text{exp}}(\sigma)$ 是根据 $h(\sigma)=H_{\text{c}}(\sigma)/H_{\text{c}}(0)$ 计算的. 资料表明: 随晶粒取向程度的减弱, 磁体的矫顽力单调上升, 即约化矫顽力 $h_{\text{exp}}(\sigma)$ 随取向系数 σ 的增大而增加.

表 1 烧结 Nd₁₅Fe_{78.2}B_{6.8}磁体的剩磁比 J_r/J_s , 矫顽力 $\mu_0H_{\text{c}}(\sigma)$ 及约化矫顽力 $h(\sigma)$ 与取向系数 σ 的关系^[4]

J_r/J_s	0.50	0.57	0.66	0.83	0.98
$\mu_0H_{\text{c}}(\sigma)$ (T)	1.44	1.33	1.29	1.16	1.05
σ	3.05	2.35	1.70	0.83	0.20
$h_{\text{exp}}(\sigma)$	1.41	1.30	1.26	1.14	1.03

表 2 给出了按照不同矫顽力机制计算的具有临界偏离角 θ_0 晶粒的约化矫顽力 $g(\theta_0)$. 忽略晶粒之间的相互作用, $g(\theta_0)$ 等于具有取向系数 σ 磁体的约化矫顽力 $h'(\sigma)$. 其中 $g_{\text{n}}(\theta_0)$ 、 $g_{\text{p}}(\theta_0)$ 和 $g_{\text{s}}(\theta_0)$ 是分别按照成核机制((9)式)、热激活理论或钉扎机制((10)式)及发动场理论((11)式)计算的.

表 2 不同取向磁体(σ)晶粒的临界偏离角 θ_0 和约化矫顽力 $g(\theta_0)$

σ	0.20	0.83	1.70	2.35	3.05
$\theta_0(^{\circ})$	7.8	25.2	38.3	44.2	48.8
$g_{\text{p}}(\theta_0)$	1.009	1.105	1.274	1.396	1.518
$g_{\text{s}}(\theta_0)$	1.004	1.104	1.110	1.158	1.207
$g_{\text{n}}(\theta_0)$	0.762	0.613	0.582	0.583	0.589

表 3 给出了静磁相互作用使磁体矫顽力的相对增强系数 $\eta(\sigma)$ 和取向系数为 σ 磁体约化矫顽力的计算值 $h(\sigma)$. 图 1 显示了按照不同机制磁体约化矫顽力的计算值与烧结Nd₁₅Fe_{77.2}-B_{6.8}磁体实验结果的比较. 表和图的资料表明:

表 3 静磁相互作用对矫顽力的增加系数 $\eta(\sigma)$ 和具有不同取向系数 σ 的约化矫顽力 $h(\sigma)$

σ	0.20	0.83	1.70	2.35	3.05
$\eta(\sigma)$	1.008	1.034	1.070	1.096	1.125
$h_{\text{p}}(\sigma)$	1.02	1.14	1.37	1.53	1.71
$h_{\text{s}}(\sigma)$	1.02	1.14	1.19	1.27	1.36
$h_{\text{n}}(\sigma)$	0.77	0.67	0.62	0.64	0.66

(1) 忽略晶粒相互作用, 按照热激活理论和发动场理论计算磁体的约化矫顽力 $h_{\text{p}}'(\sigma)$ 及 $h_{\text{s}}'(\sigma)$ 随取向系数 σ 的增加而不同程度的增加; 按照成核机制计算的约化矫顽力 $h_{\text{n}}'(\sigma)$ 只有很小的变化(其值大约为 0.6).

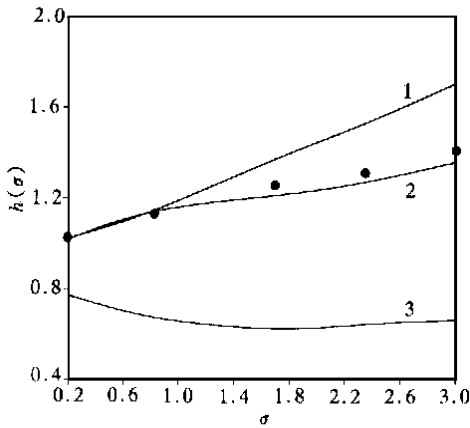


图 1 烧结钕铁硼磁体约化矫顽力的理论值 $h(\sigma)$ 与烧结 $\text{Nd}_{15}\text{Fe}_{77.2}\text{B}_{6.8}$ 实验结果的比较
曲线 1 为热激活理论或钉扎机制, 曲线 2 为发动场理论, 曲线 3 为成核机制。● 为烧结 $\text{Nd}_{15}\text{Fe}_{77.2}\text{B}_{6.8}$ 的实验结果^[4]

作用使烧结钕铁硼磁体的矫顽力随晶粒取向程度的恶化(取向系数 σ 的增大)而逐渐增加。考虑到晶粒之间的相互作用之后, 矫顽力的发动场理论的计算值与各种不同取向烧结钕铁硼磁体的实验结果符合很好。

(2) 静磁相互作用使烧结钕铁硼磁体的矫顽力随取向系数 σ 的增大(晶粒取向程度的恶化)而逐渐增加。

(3) 考虑到晶粒相互作用的影响后, 在晶粒取向较好(取向系数 σ 较小, $\sigma \leq 0.83$ 或 $J_r/J_s \geq 0.83$)时, $h_p(\sigma)$ 与实验结果 $h_{\text{exp}}(\sigma)$ 符合较好; 当晶粒混乱取向(σ 较大 $\sigma > 0.83$, 或 $J_r/J_s < 0.83$)时, 则二者有较大的偏离($h_p(\sigma) > h_{\text{exp}}(\sigma)$)。按照发动场理论计算的 $h_s(\sigma)$ 在各种晶粒取向条件下都与实验值 $h_{\text{exp}}(\sigma)$ 有较好的符合。按照成核理论计算的 $h_n(\sigma)$ 变化很小(大约为 $0.6 \sim 0.7$), 其曲线平缓, 并且与实验值 $h_{\text{exp}}(\sigma)$ 偏离较大。

总结上述讨论, 我们可以得出结论: 钕铁硼磁体的矫顽力应由单个晶粒的矫顽力和晶粒之间的相互作用确定。烧结钕铁硼磁体的长程静磁相互作用较强, 近邻晶粒的交换耦合相互作用较弱。静磁相互

参 考 文 献

- 1 Kronmüller H, Durst K D, Sagawa M. Analysis of the magnetic hardening mechanism in ReFeB permanent magnets. *J Magn Magn Mater*, 1988, 74: 291 ~ 302
- 2 Givord D, Lu Q, Rossignol M F, et al. Experimental approach to coercivity analysis in hard magnetic materials. *J Magn Magn Mater*, 1990, 83: 183 ~ 188
- 3 Kou X C, Kronmüller H, Givord D, et al. Coercivity mechanism of sintered $\text{Pr}_{17}\text{Fe}_{75}\text{B}_8$ and $\text{Pr}_{17}\text{Fe}_{53}\text{B}_{30}$ permanent magnets. *Phys Rev*, 1994, B50: 3849 ~ 3860
- 4 Gao R W, Zhou S Z, Zhang D H, et al. Coercivity and its dependence on orientation magnetic field in NdFeB sintered magnets. *J Appl Phys*, 1995, 78: 1156 ~ 1159
- 5 Gao R W, Zhang D H, Li H, et al. Effects of the degree of grain alignment on the hard magnetic properties in sintered Nd-Fe-B magnets. *Appl Phys A*, 1998, 67: 353 ~ 356
- 6 Schrefl T, Schmidts H F, Fidler J, et al. The role of exchange and dipolar coupling at grain boundaries in hard magnetic materials. *J Magn Magn Mater*, 1993, 124: 251 ~ 261
- 7 Kronmüller H, Fischer R, Hertel R, et al. Micromagnetism and the microstructure in nanocrystalline materials. *J Magn Magn Mater*, 1997, 175: 177 ~ 192
- 8 Fukunaga H, Inoue H. Effect of intergrain exchange interaction on magnetic properties in isotropic Nd-Fe-B magnets. *Jpn J Appl Phys*, 1992, 31: 1347 ~ 1352
- 9 Fidler J, Schrefl T. Overview of Nd-Fe-B magnets and coercivity. *J Appl Phys*, 1996, 79: 5029 ~ 5034