

上海光源低温波荡器永磁铁在低温下的磁特性研究*

何永周† 周巧根

(中国科学院上海应用物理研究所, 上海 201204)

(2012年8月15日收到; 2012年9月17日收到修改稿)

用综合物性测量系统测试了国产 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ (N50M) 永磁铁在低温下 (10—300 K) 的 $M-H$ 和 $M-T$. 获得了 N50M 剩磁 B_r 和内禀矫顽力 H_{ci} 在低温下的变化图, 对其取向度和三维磁化强度进行了分析研究. 结果表明, N50M 在 80—150 K 发生强烈自旋再取向效应, B_r 在 120—130 K 出现峰值, H_{ci} 随温度下降呈线性增加. 在 130 K, B_r 和 H_{ci} 分别比常温 (300 K) 增加 15.6% 和 220%, 达到 1.65 T 和 3638 kA/m. 在 150—300 K, 随温度下降, N50M 宏观取向度与外磁场均匀性逐步改善, 但在 80—235 K, 微观外磁场均匀性恶化. 实验研究发现, 235 K 附近, N50M 垂直取向方向呈现“剩余磁化强度跳跃”. 研究结果为上海光源 II 期低温波荡器及其他高精度低温永磁仪器与设备的物理设计提供了参考.

关键词: 低温波荡器, $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 永磁铁, 低温, 磁特性

PACS: 41.60.AP, 41.85.Lc, 75.50.Ww

DOI: 10.7498/aps.62.044106

1 引言

永磁波荡器采用 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 或 $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 稀土永磁铁作为磁场源, 是同步辐射及自由电子激光装置的关键插入元件^[1], 其发展方向之一是如何获得高磁场. 设计真空波荡器可获得较高磁场^[2,3], 然而至关重要的限制是永磁铁磁性能. $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 具有较好的耐辐射性能, 但它的剩磁 B_r 较低 (小于 1.14 T)^[4]. 常温下 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 永磁铁的理论 B_r 可以达 1.6 T^[5], 但在真空波荡器的应用中能使用的 B_r 一般不超过 1.3 T, 以保证具有高内禀矫顽力 H_{ci} (一般大于 2700 kA/m) 能适应高温烘烤, 这限制了真空波荡器的磁场性能.

一般 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 和 $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 的 B_r 和 H_{ci} 温度系数大约是 -0.1 K^{-1} 和 -0.6 K^{-1} , 温度系数差异使 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 或 $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 在低温下有可能同时获得高 B_r 和高 H_{ci} . 根据这一原理设计的 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 或 $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 低温波荡器 (CPMU) 可获得较高磁场^[6,7], 可以解决真空波荡器磁性能的限制问题, CPMU 正引发真空波荡器技术革命. 近几年, 日本 Spring-8、

法国 ESRF、美国 NSLS 等对日本及德国永磁公司的 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 或 $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 在低温下的磁性能进行研究, 已经利用研究成果研制出 CPMU 样机^[8,9].

随着北京正负电子对撞机和合肥国家同步辐射光源的改造, 上海光源的建成, 同步辐射光源在国内得到了越来越广泛的应用, 未来对高亮度 X 射线的需求将大量增加, CPMU 将能够满足用户对光源性能的要求^[10]. 上海光源 II 期将于 2013 年启动, 将研制若干台 CPMU, 这迫切需要掌握国产永磁铁在低温下的磁特性变化规律. 本文在上海市科委及国家自然科学基金的支持下对上海光源 II 期 CPMU 国产 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ (N50M) 永磁铁在低温下 (10—300 K) 的磁特性进行了研究.

2 实验方法

实验 N50M 永磁铁由浙江英洛华磁业有限公司研制, 常温下 (300 K) 退磁曲线 $B-H$ 和 $J-H$ ($J = \mu_0 M$) 用 NIM-200C 型永磁脉冲测量仪测试, 见图 1(a), 测试样品为圆柱形, 尺寸为

* 上海市自然科学基金 (批准号: 11ZR1445500) 和国家自然科学基金 (批准号: 11175238) 资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: heyongzhou@sinap.ac.cn

$\Phi 10.0 \text{ mm} \times 10.0 \text{ mm}$, 取向方向 10.0 mm , N50M 常温下的 $B_r, H_{cb}, H_{ci}, H_k, \mu_r$ 分别为 $1.43 \text{ T}, 1080 \text{ kA/m}, 1137 \text{ kA/m}, 1106 \text{ kA/m}$ 和 1.056 .

为测量 N50M 低温各向异性磁特性, 测试样品加工成长方形: $2.0 \text{ mm} \times 2.0 \text{ mm} \times 2.5 \text{ mm}$ (分别对应图 1 X, Y, Z 方向), 取向 2.5 mm , 见图 1. 用上海交通大学量子设计 (quantum design) 公司综合物性测量系统 (PPMS $\pm 9 \text{ T}$: EC-II) 测试低温下 (10—300 K) 下的 $M-H$ 和 $M-T$ 曲线. 对于 $M-H$, PPMS 设置指标是: 温控精度为 $\pm 1\%$, 温度稳定性为 $\pm 0.02\%$, 磁场范围为 $\pm 9 \text{ T}$, 磁场均匀性为 $\pm 0.01\%$, 扫描速度为 100 Gs/s , 磁场分辨率为 0.2 mT . 对于 $M-T$, PPMS 设置指标是: 温度范围为 $10\text{--}300 \text{ K}$, 温控精度为 $\pm 1\%$, 温度稳定性为 $\pm 0.02\%$.

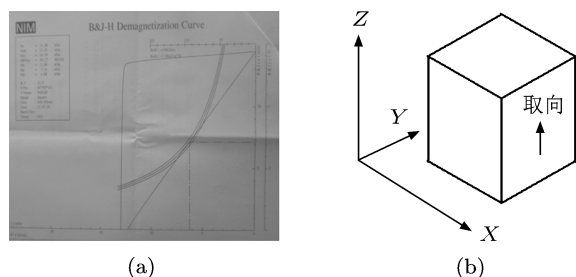


图 1 N50M 永磁铁 (a) 退磁曲线; (b) $M-H$ 和 $M-T$ 测试样品

3 低温下的磁特性

3.1 $M-H$

图 2 为 $80\text{--}300 \text{ K}$ 范围若干个温度点平行取

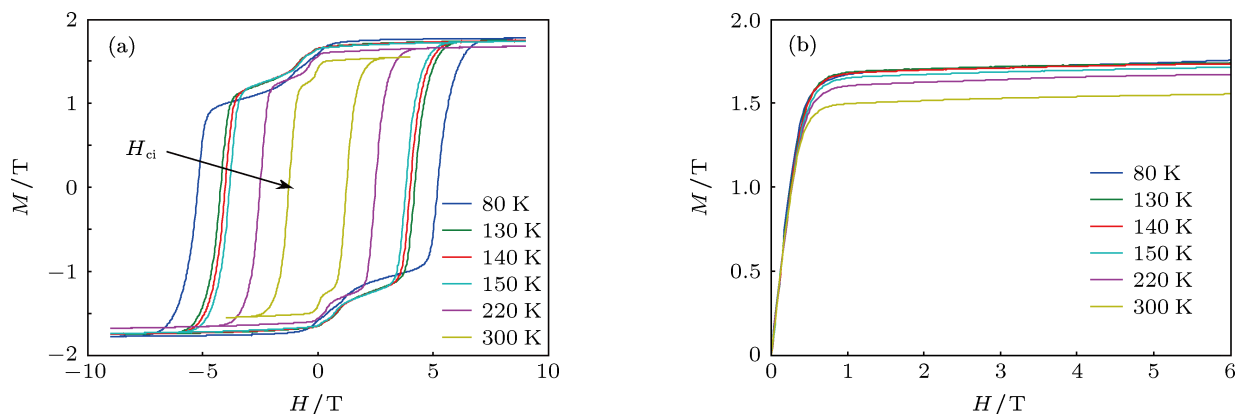


图 2 N50M 平行取向方向的 $M-H$ 曲线 (a) 四象限; (b) 第一象限正向

向方向的 $M-H$ 曲线. 从图 2(a) 可以看出, 随着温度下降, $M-H$ 曲线逐步“变胖”, 表明永磁铁的 H_{ci} 在增加. 永磁铁样品的常温退磁曲线 $J-H$ 和低温 $M-H$ 曲线是在开路条件下测量的, 存在不均匀退磁场, 导致永磁铁的 $J-H$ 和 $M-H$ 曲线出现倾斜. 圆柱形永磁铁样品的退磁场均匀性好于长方形样品, 故常温 $J-H$ 曲线方形度优于低温 $M-H$ 曲线, 见图 1(a). 从图 2(b) 可以看出, 随着温度的下降, 永磁铁的饱和磁化强度 M_s 逐步增加. 在外加磁场 H 为 $0\text{--}0.5 \text{ T}$ 内, 随着磁场增加, M 迅速增加且各温度点的磁化率基本相同, 0.5 T 附近是 M 随 H 变化的拐点. H 为 $1.0\text{--}6.0 \text{ T}$ 范围, M 基本上呈现水平状态, 磁化率 M/H 很小.

图 3 为垂直取向方向的 $M-H$ 曲线. 从图 3(a) 可以看出, 220 K 下 $M-H$ 呈线性, 150 K 下 $M-H$ 稍有“弯曲”, 表明永磁铁易磁化 c 轴发生转动, 80 K 下 $M-H$ 弯曲严重且“瘦小”, 表明永磁铁易磁化 c 轴出现较大变化, 呈现“软磁”特征. 从图 3(b) 可以看出, 在 80 K 附近, $M-H$ 由于易磁化 c 轴的转动而呈现非线性变化, $130, 140, 150 \text{ K}$ 三个温度稍微有点非线性特征, 220 和 300 K 下 $M-H$ 基本呈现线性变化趋势, 无拐点外磁场 H 存在.

$M-H$ 纵坐标及横坐标和曲线的交点分别为 B_r 和 H_{ci} , 由此所得的 $B_r (M_s)\text{-}T, H_{ci}\text{-}T$ 见图 4. 可以看到, 随着温度的下降, H_{ci} 一直在增加, 而 B_r 在 130 K 之前也在增加, 之后逐步下降. 130 K 附近, B_r 和 H_{ci} 分别比常温 (300 K) 增加 15.6% 和 220% , 达到 1.65 T 和 3638 kA/m .

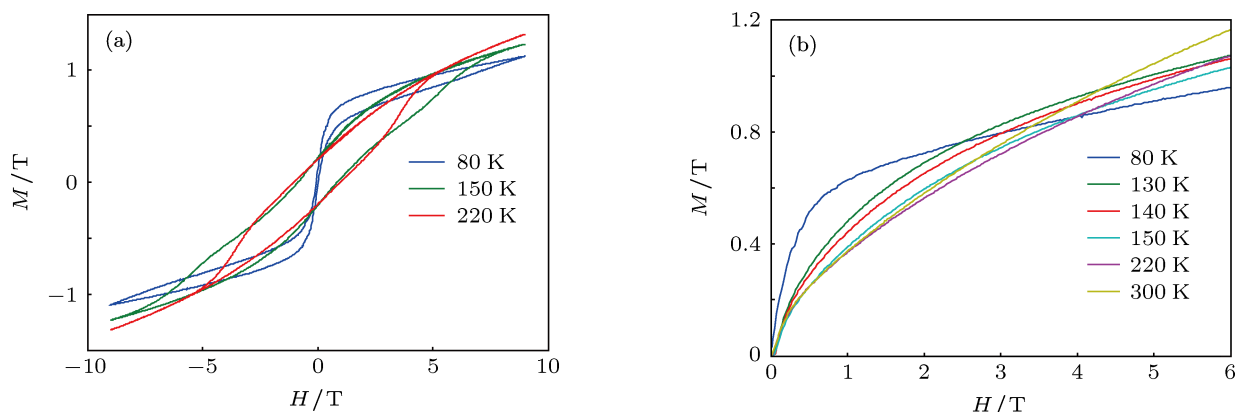


图3 N50M 垂直取向方向 (X 或 Y) 的 $M-H$ 曲线 (a) 四象限; (b) 第一象限正向

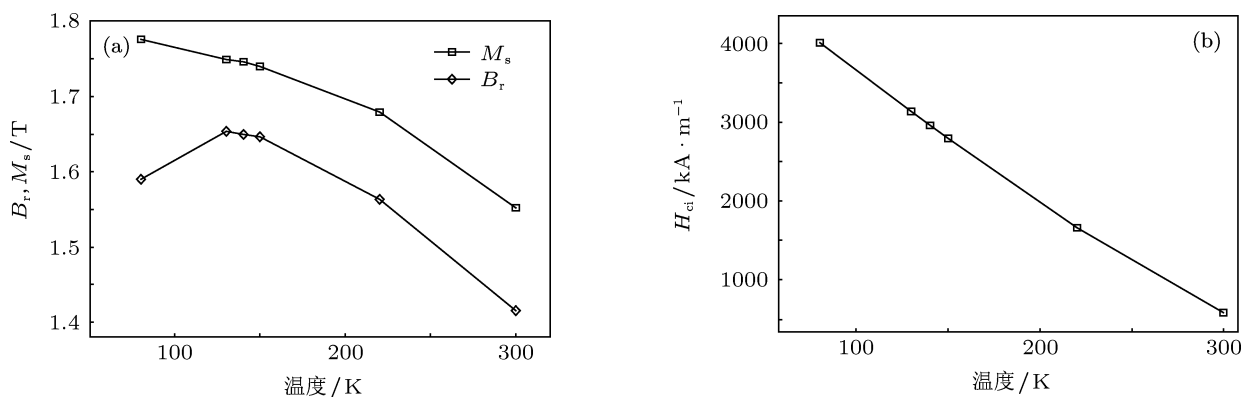


图4 N50M 低温下的磁性能变化 (a) $B_r(M_s)-T$; (b) $H_{ci}-T$

3.2 取向度和自旋再取向

对于烧结 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 永磁铁, 取向度和永磁铁的宏观外磁场均匀性 (如三维 B_r 分布) 及各向异性等有密切关系^[11], 在同等设计及工艺下, 取向度表示永磁铁的各向异性程度, 高取向度也意味着良好的宏观外磁场均匀性. 可以用 B_r 计算公式大致评估取向度^[12]:

$$B_r = A(1 - \beta)DJ_s \cos \theta, \quad (1)$$

式中 $J_s = \mu_0 M_s$, $B_r = \mu_0 M_r$, A 表示正向畴体积分数, β 表示非磁性相体积分数, D 表示相对密度, $\cos \theta$ 表示取向度 (即永磁铁晶粒的宏观平均易磁化轴方向与理想取向磁场轴之间夹角的余弦), J_s 表示饱和磁极化强度. 测试结果表明, 国产 N50M 反磁化畴极少, 正向畴体积分数接近 1.0, 非磁性相体积分数为 0.02, 相对密度为 0.983.

永磁铁由很多晶粒组成, 每个晶粒有易磁化 c 轴, 在剩磁状态下众多晶粒的宏观平均易磁化 c 轴和成型取向磁场方向之间有一定的夹角 θ , 见图 5(a). $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 化合物的磁晶粒各向异性常数 K_1 和 K_2 是随温度而变化的, 大约在 130 K 附近, K_1 由正变负, 导致磁化强度偏离易磁化 c 轴, 这种磁化强度方向偏离 c 轴的现象称为自旋再取向 (SRT), 发生 SRT 的温度 T_s 和永磁铁的磁结构及成分密切相关^[13].

根据上述公式和 $M-H$ 数据, 推算出 N50M 在低温下的取向度变化趋势, 见图 5(b). 可以看到, 在 150—300 K, 随温度下降, 永磁铁取向度逐步提高, 在 130—150 K 之间达到最高, 这意味着 150—300 K 之间, 随温度下降, 永磁铁宏观外磁场均匀性逐步改善, 各向异性特性明显增强; 由于低温自旋再取向效应, 130 K 以下永磁铁易磁化 c 轴偏离理想取向磁场严重, 使取向度大幅度下降.

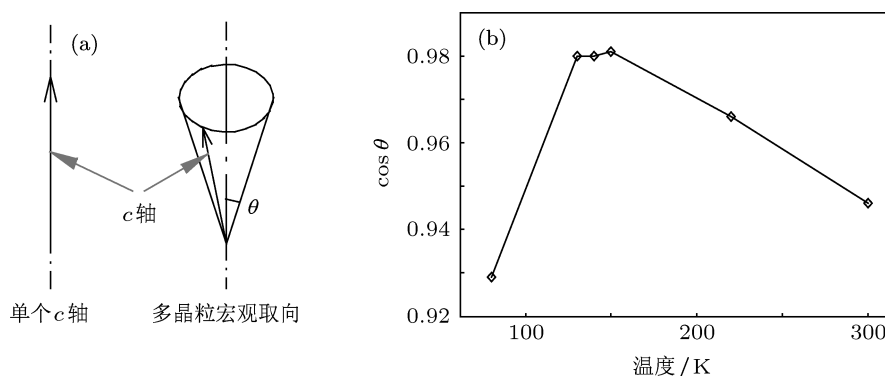


图5 永磁铁的取向度 (a) 取向度示意图; (b) 低温下 N50M 取向度的变化

3.3 三维 $M-T$

图 6 为永磁铁样品在外磁场 H 为 1000 Gs ($1 \text{ Gs} = 10^{-4} \text{ T}$) 及未磁化状态下的 $M-T$ 测试方法示意图 (PPMS 测试中一般用 emu 作为总的磁化强度 M 的单位). 图 6(a) 为沿永磁铁取向方向的总磁化强度测试, 在外磁场作用下, PPMS 采集到的数据

是众多晶粒磁化强度沿永磁铁取向方向外磁场分量的矢量和. 图 6(b) 为沿垂直于永磁铁取向方向的总磁化强度测试, 在外磁场作用下, 大多数晶粒易磁化 c 轴转到取向方向的一边, PPMS 采集到的数据是众多晶粒磁化强度沿永磁铁 X 或 Y 正方向分量的矢量和.

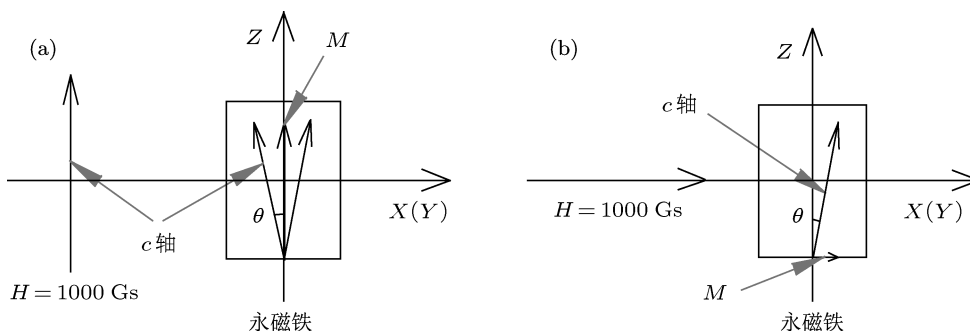


图 6 有外磁场及未磁化下 $M-T$ 测试 (a) 平行取向方向; (b) 垂直取向方向

图 7 为测试结果. 图 7(a) 为平行于取向方向的 $M-T$ 图, 从中可以看出, 在 150 K 之前, M 随温度 T 的下降一致呈线性增加趋势. 在 80—150 K 之间的一个温度附近, 永磁铁 $\Delta M/\Delta T$ 出现急剧变化, 预示该温度范围, 在强外磁场作用下, 永磁铁易磁化 c 轴方向发生较大变化, 即出现强烈的自旋再取向效应, 10—80 K 之间 M 值又趋于稳定. 图 7(b) 为垂直于取向方向的 $M-T$ 图, 从中可以看出, 除总磁化强度绝对值小外, 变化规律和图 7(a) 显示的基本一致.

化强度沿永磁铁取向方向分量的矢量和. 图 8(b) 为沿垂直于永磁铁取向方向的总剩余磁化强度测试, PPMS 采集到的数据是众多晶粒剩余磁化强度沿永磁铁 X 或 Y 正方向分量的矢量和.

图 8 为永磁铁样品在无外磁场 ($H = 0 \text{ Gs}$) 及饱和磁化状态下的 $M-T$ 测试示意图. 图 8(a) 为沿永磁铁取向方向的总剩余磁化强度测试, 在无外磁场作用下, PPMS 采集到的数据是众多晶粒剩余磁

图 9(a) 为平行于取向方向的 $M-T$, 可以看出, 235—300 K, M 随温度 T 的下降一直呈线性增加趋势. 150—235 K, M 随温度 T 的下降一直也呈线性增加趋势, 但 $\Delta M/\Delta T$ 变化率稍微变缓. 80—150 K, 永磁铁 $\Delta M/\Delta T$ 出现急剧变化, M 值在 120 K 附近出现峰值, 预示该温度范围, 永磁铁样品出现强烈的自旋再取向效应使易磁化 c 轴方向发生较大变化; 10—80 K, M 值逐步变小.

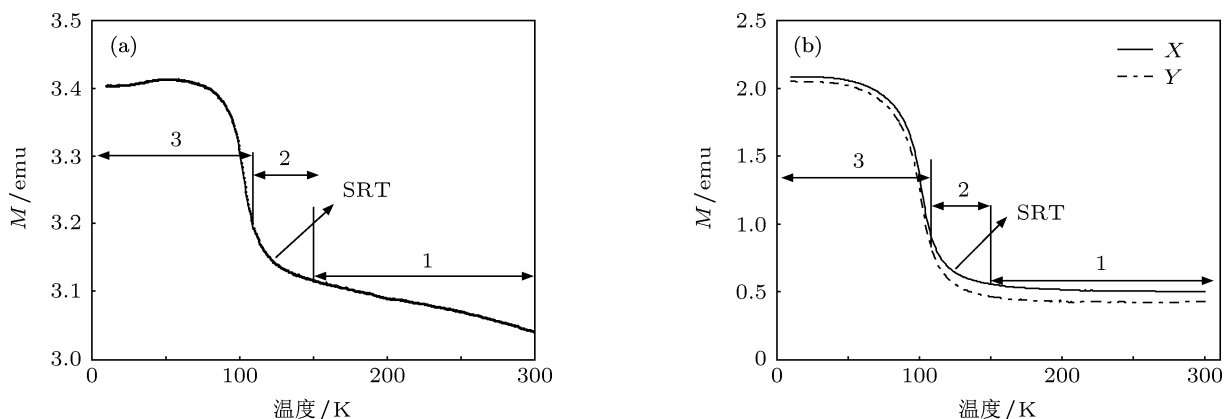


图7 外磁场及未磁化下 $M-T$ 测试结果 (a) 平行取向方向; (b) 垂直取向方向

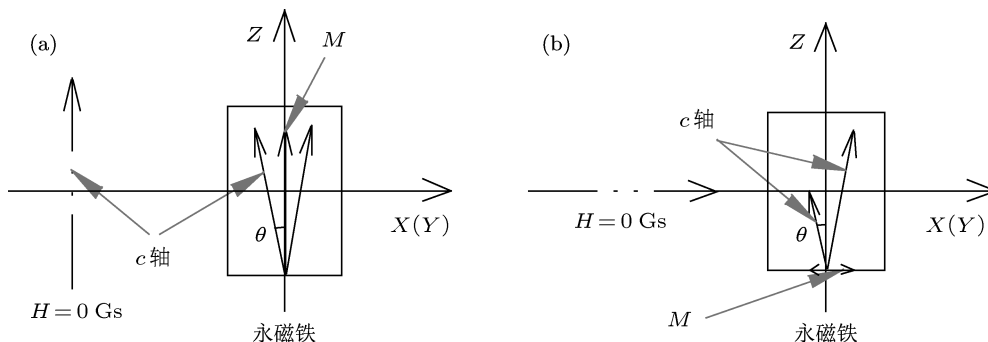


图8 无外磁场及饱和磁化条件下 $M-T$ 测试 (a) 平行取向方向; (b) 垂直取向方向

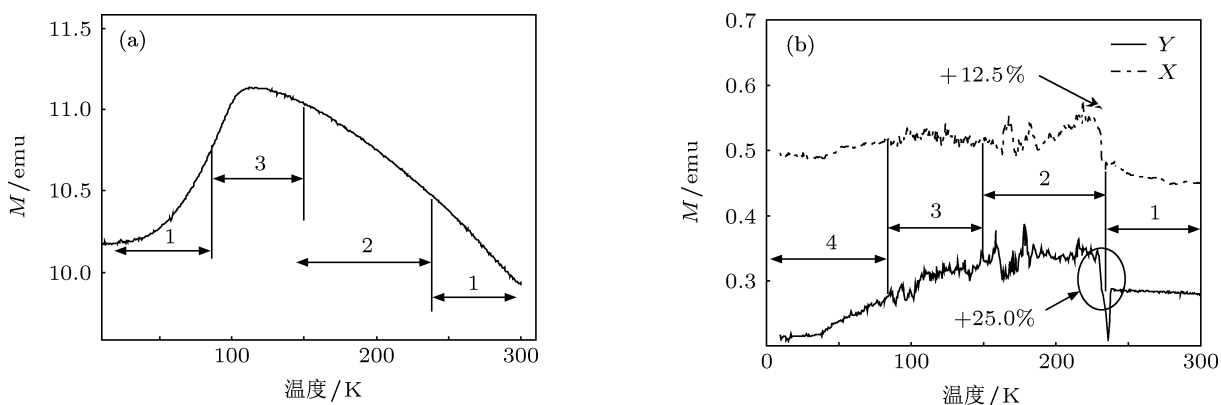


图9 无外磁场及饱和磁化条件下 $M-T$ 测试结果 (a) 平行取向方向; (b) 垂直取向方向

图9(b)为垂直于取向方向的 $M-T$, 可以看出, 除剩余磁化强度绝对值较小外, 变化规律和图8(a)显示的基本一致, 也分为4个阶段. 第1阶段, 剩余磁化强度缓慢增加, 但在235 K附近可以看到沿 X 和 Y 方向均出现“剩余磁化强度”跳跃现象, X 和

Y 方向的剩余磁化强度突然增加约12.5%和25.0%. 剩余磁化强度在第2和第3阶段变化剧烈, 特别是第2阶段, 这表明在这2个阶段(80—235 K)永磁铁晶粒剩余磁化强度随温度变化不同步性严重, 导致微观外磁场均匀性出现恶化. 由于永磁铁的各向

异性特性,沿取向方向剩余磁化强度绝对值大使其表现不是很明显,但在垂直于取向方向表现明显;由于无外磁场推动作用,永磁铁的晶粒易磁化 c 轴是沿取向轴随机分布的,即使温度变化导致晶粒易磁化 c 轴出现剧烈变化,但沿 X 或 Y 方向的矢量和正负值抵消效应,使永磁铁并没有出现明显的峰值.

4 结论

实验用PPMS测试了低温波荡器国产N50M永磁铁在低温下的 $M-H$ 和 $M-T$,并对其低温磁特性进行了研究.结果表明N50M在100—150 K之间发生强烈SRT, H_{ci} 随温度下降呈现线性增加趋势.在130 K, B_r 和 H_{ci} 分别比常温下(300 K)增加15.6%和220%,达到1.65 T和3638 kA/m,这一结果稍高于日本住友特殊金属公司的Nd₂Fe₁₄B(50 BH)永磁铁在148 K附近的磁性能(B_r 和 H_{ci} 分别达到1.58 T和3303 kA/m)^[14],预计可以满足上海光源II期低温波荡器物理设计要求.

在150—300 K,随温度下降,N50M宏观取向

度与外磁场均匀性逐步改善,但在80—235 K,永磁铁的微观外磁场均匀性恶化,这表明Nd₂Fe₁₄B永磁铁适用于较大磁间隙低温波荡器,对于小间隙低温波荡器(一般小于5.0 mm),有低温微观剩余磁化强度均匀性恶化现象的Nd₂Fe₁₄B不是首选永磁铁.235 K附近,Nd₂Fe₁₄B(N50M)垂直取向方向出现“剩余磁化强度跳跃”现象,目前国内外未有文献公开报道,这对在一定低温范围工作的高精度永磁仪器与设备的物理设计与研制有一定参考价值.

为进一步探索永磁铁低温下磁特性规律,未来几年上海光源将对其他国产Nd₂Fe₁₄B如N45SH, N38SH, Sm₂Co₁₇如XG30/20, Pr₂Fe₁₄B等永磁铁在低温下的磁特性进行研究.优化实验永磁铁样品设计以减小退磁场对测试实验结果的影响,同时对测试方法进行改进以提高测试数据的精确性.

感谢上海交通大学分析测试中心的邹志强教授和浙江英洛华磁业有限公司的吴红平工程师对本次实验研究的帮助.

- [1] Chen N, Zhang P F, Li G, Xu H L, Li Y H, Zhang S C, Cai G W, He D H 2005 *Nucl. Technol.* **28** 258 (in Chinese) [陈念, 张鹏飞, 李格, 徐宏亮, 李煜辉, 张善才, 蔡根旺, 何多慧 2005 核技术 **28** 258]
- [2] Yamamoto S, Shioya T, Hara M, Kitamura H, Zhang X W, Mochizuki T, Sugiyama H, Ando M 1992 *Rev. Sci. Instrum.* **63** 400
- [3] Yamamoto S, Tsuchiya K, Sasaki H, Aoto T, Shioya T 2010 *AIP Conference Proc.* **1234** 593
- [4] He Y Z, Zhou Q G, Zhang J D 2011 *Chin. Phys. C* **35** 392 [何永周, 周巧根, 张继东 2011 中国物理 C **35** 392]
- [5] Sagawa M, Hirosawa S, Otani Y 1987 *J. Magn. Magn. Mater.* **70** 316
- [6] Chavanne J, Lebec G, Penel C, Revol F 2010 *AIP Conference Proc.* **1234** 25
- [7] Tanaka T, Seike T, Kagamihata A, Schmidt T, Anghel A, Brügger M, Bulgheroni W, Jakob B, Kitamura H 2009 *Phys. Rev.* **12** 1
- [8] Tanaka T, Hara T, Bizen T, Seike T, Tsuru R, Marechal X 2006 *New J. Phys.* **8** 1
- [9] Toshiya T, Oleg C, David A. Harder, Michael L, James R, George R, Charles S 2010 *AIP Conference Proc.* **1234** 29
- [10] Zhao Z T 2009 *Physics and Technology of Advanced Undulator* (142 East Technology Forum Shanghai, China, December 3—4) [赵振堂 2009 先进波荡器物理与技术(第142期东方科技论坛)上海. 中国 12.03—04]
- [11] He Y Z, Zhang J D, Zhou Q G, Qian Z M, Li Y 2010 *High Power Laser and Particle Beams* **22** 1627 (in Chinese) [何永周, 张继东, 周巧根, 钱珍梅, 黎阳 2010 强激光与粒子束 **22** 1627]
- [12] Zhou S Z 2011 *Sintered NdFeB Rare Earth Permanent Magnet Materials and Technology* (Beijing: Metallurgical Industry Press) p94 [周寿增 2011 烧结钕铁硼稀土永磁材料与技术(北京:冶金工业出版社)第94页]
- [13] Zhou S Z, Dong Q F 1999 *Super Permanent Magnet* (Beijing: Metallurgical Industry Press) p145 [周寿增, 董清飞 1999 超强永磁体(北京:冶金工业出版社)第145页]
- [14] Hara T, Tanaka T, Kitamura H 2004 *Phys. Rev.* **7** 9

Magnetic properties of permanent magnet for cryogenic undulator of permanent Shanghai synchrotron radiation facility*

He Yong-Zhou[†] Zhou Qiao-Gen

(Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201204, China)

(Received 15 August 2012; revised manuscript received 17 September 2012)

Abstract

M-H and *M-T* curve at cryogenic (10–300 K) of domestic Nd₂Fe₁₄B (N50M) permanent magnet are tested by physical property measurement system (PPMS). *B_r-T* and *H_{ci}-T* figure under the cryogenic condition for N50M are obtained. The orientation degree and three-dimensional magnetization are also analyzed and researched under the cryogenic condition. The results show that N50M has a strong spin reorientation effect (SRT) between 80 and 150 K, *B_r* shows a peak between 120 and 130 K and *H_{ci}* increases linearly with temperature decreasing. At 130 K, *B_r* increases 15.6% and *H_{ci}* increases 220% compared with at room temperature (300 K), reaching 1.65 T and 3638 kA/m respectively. Between 150 and 300 K, with temperature declining, the macroscopic orientation degree uniformity and the external magnetic field uniformity of N50M are improved gradually. Between 80 and 235 K, the micro-external magnetic field uniformity shows a deterioration phenomenon. The experimental research also indicates that near 235 K the N50M perpendicular to orientation direction presents a “remanent magnetization jump” phenomenon. The experimental results provide a reference for the physical design of cryogenic undulator for Shanghai Synchrotron Radiation Facility II and other high-precision cryogenic permanent magnet instruments and equipment.

Keywords: cryogenic undulator, Nd₂Fe₁₄B permanent magnet, cryogenic, magnetic properties

PACS: 41.60.AP, 41.85.Lc, 75.50.Ww

DOI: 10.7498/aps.62.044106

* Project supported by the Natural Science Foundation of Shanghai, China (Grant No. 11ZR1445500) and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11175238).

[†] Corresponding author. E-mail: heyongzhou@sinap.ac.cn