

铁基非晶的低频脉冲磁场处理效应^{*}

晁月盛[†] 李明扬 耿 岩 刘吉刚

(东北大学理学院, 沈阳 110004)

(2003 年 10 月 29 日收到, 2004 年 2 月 24 日收到修改稿)

对非晶合金 $\text{Fe}_{78}\text{Si}_9\text{B}_{13}$ 进行了低频脉冲磁场处理, 用穆斯堡尔谱学、透射电镜等方法观察处理试样的微观结构变化. 研究发现, 当脉冲频率 20—25 Hz, 磁场 16—32 kA/m, 作用时间 ≤ 2 min, 合金发生了纳米晶化, 纳米相 $\alpha\text{-Fe}(\text{Si})$ 晶粒尺寸为 10 nm. 而且, 在低频脉冲磁场处理过程中, 非晶试样的温升 $\leq 20^\circ\text{C}$.

关键词: 非晶态合金, 脉冲磁场处理, 纳米晶化

PACC: 6140, 6170A, 7680

1. 引 言

1988 年, Yoshizawa 等^[1], 对含有微量 Cu, Nb 的铁基非晶态合金在略高于其晶化温度进行短时退火, 发现在非晶基体上均匀分布着许多无规取向的粒径为 10 nm 的 $\alpha\text{-Fe}(\text{Si})$ 晶粒, 形成了纳米晶合金-Finement, 获得了优异的软磁性能. 这一发现掀起了世界范围内研究非晶纳米晶软磁材料的热潮, 相继出现了多种非晶合金纳米晶化的研究方法, 诸如非晶的常规退火法^[2-4], 闪光退火法^[5, 6], 超短脉冲电流处理纳米晶化法^[7, 8]和射频磁场处理方法^[9, 10]等. 但非晶纳米晶化处理不可回避的一个问题是如何在改善非晶软磁性能的同时抑制退火脆化, 从而优化非晶合金的综合性能. 对不含 Cu, Nb 的 FeSiB 系非晶合金, 如何造成基体金属相 $\alpha\text{-Fe}(\text{Si})$ 的单相纳米晶化, 在纳米晶化处理过程中如何控制试样的温升, 具有重要的意义.

本文对 Metglas2605s-2 进行了低频脉冲磁场处理, 对铁基非晶的磁致纳米晶化问题进行了初步研究.

2. 实验过程

本文所使用的非晶合金为 $\text{Fe}_{78}\text{Si}_9\text{B}_{13}$, 试样宽 20 mm, 厚 $30\mu\text{m}$, 由北京钢铁研究总院国家非晶微晶

合金工程研究中心提供. 非晶试样的脉冲磁场处理在程控脉冲电流/磁场装置上进行, 具体处理条件如表 1 所示.

用穆斯堡尔谱学研究脉冲磁场处理后各试样的微观结构变化及晶化情况, 穆斯堡尔谱仪为微机控制的恒加速透视式, 辐射源为 $^{57}\text{Co}/\text{Pd}$. 同时, 以四点接触法测量了对应试样的电阻, 个别试样做了透射电镜分析.

表 1 非晶 $\text{Fe}_{78}\text{Si}_9\text{B}_{13}$ 合金的脉冲磁场处理条件¹⁾

试样序号	1	2	3	4	5
脉冲磁场/80(A/m)	296	296	222	379	379
脉冲频率/Hz	20	25	25	25	25
有效作用时间/ms	247	309	309	399	471

1) 非晶试样的原始制备态为 No. 0.

3. 结果与讨论

非晶试样脉冲磁场处理后的穆斯堡尔谱及数据拟合结果如图 1 和表 2 所示(由于脉冲磁场处理试样的穆斯堡尔谱特征大致相同, 故图 1 中只给出试样 No. 5 的谱线).

从图 1 可见, 脉冲磁场处理非晶试样的穆斯堡尔谱为不对称展宽六线谱, 说明脉冲磁场处理后试样整体上仍具有铁磁性非晶的基本特征.

^{*} 国家高技术研究发展计划(批准号 2002AA302601)和高等学校博士学科点专项科研基金(批准号 20020145009)资助的课题.

[†] E-mail: yshao@mail.neu.edu.cn, 电话: 024-83680420.

穆斯堡尔谱拟合结果(表 2)表明,对本实验的脉冲磁场处理,非晶合金 $Fe_{78}Si_9B_{13}$ 发生了初始晶化,晶化析出相为 $\alpha-Fe(Si)$,其最大析出量为 2.1%。根据电镜分析(图 2)析出相的晶粒尺寸为 10nm 左右,即非晶合金在低频脉冲磁场作用下发生了初始纳米晶化。而本研究中非晶试样在脉冲磁场处理过程中的升温很低($\Delta T \leq 20^\circ C$),可见,脉冲磁场处理促进了非晶合金的纳米晶化。

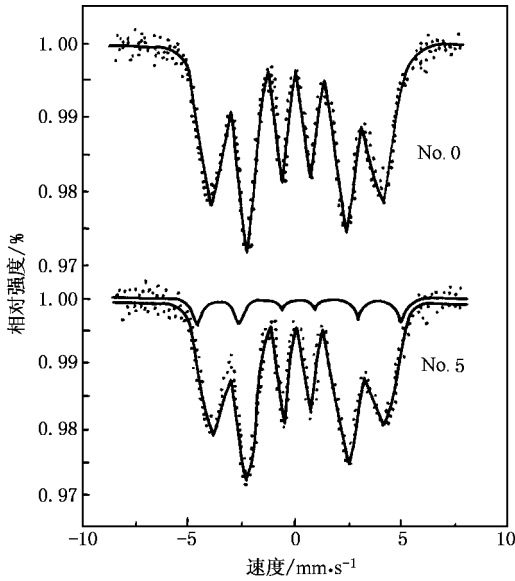


图 1 磁脉冲处理非晶试样的穆斯堡尔谱

我们知道,当存在磁场作用时,受磁相互作用势能的影响,非晶合金中原子磁矩将趋向磁场方向取向,即磁体被磁化;而对脉冲磁场作用,因为磁场强度以频率 ν 在变化,则原子磁矩将在磁化、去磁间作周期变化。磁性材料在磁化前,原子磁矩取向相对混乱,磁化后,由于原子磁矩沿磁场方向排列,如此势必对其晶体结构产生影响,使原子间的相互作用在不同方向会有所不同,从而导致原子间距离的变化,即磁化使磁体在磁场方向产生体积或线度的伸长或缩短——磁致伸缩。对脉冲磁场处理,由于磁化、去磁的往复变化,将引起磁致伸缩的周期振动。因为原子间距离的变化表现为原子的迁移扩散,所以,也可将磁致伸缩的周期振动看作是原子的周期振动。对熔体急冷法制备的 $FeSiB$ 非晶态合金,室温下处于热力学的亚稳态,具有在外界条件影响下,向低能的新的亚稳态或稳定的晶态转化的趋势。脉冲磁场处理所导致的原子周期振动恰好为非晶合金的这一转变提供了激活动力,即原子周期振动将降低原子迁移激活能 u ,对非晶中的原子迁移扩散产生促进作用,降低非晶晶化的形核动力学势垒。据相变动力学理论^[11],形核率决定于原子迁移激活能, $I \propto \exp(-u/kT)$,所以脉冲磁场处理将显著提高基体金属相 $\alpha-Fe(Si)$ 的形核率,促进非晶合金的纳米晶化。因为脉冲磁场实际作用时间很短,且 $\alpha-Fe(Si)$ 的形核速率很快,将抑制 $Fe-B$ 化合物析出,最终实现 $\alpha-Fe(Si)$ 的单相纳米晶化。

表 2 脉冲磁场处理前后非晶试样穆斯堡尔谱拟合结果¹⁾

试样序号	0	1	2	3	4	5
相组成	全部非晶	剩余非晶 + 1.0% $\alpha-Fe(Si)$	剩余非晶 + 1.5% $\alpha-Fe(Si)$	剩余非晶 + 1.2% $\alpha-Fe(Si)$	剩余非晶 + 1.3% $\alpha-Fe(Si)$	剩余非晶 + 2.1% $\alpha-Fe(Si)$
析出相对应的超精细场/(80kA/m)		210	208	212	219	208

1) 脉冲磁场处理过程中试样升温 $\leq 20^\circ C$ 。

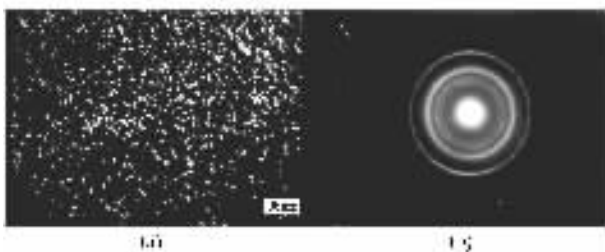


图 2 脉冲磁场处理试样的 TEM 形貌相(a)及选区衍射(b)

脉冲磁场作用导致的原子周期振动可以促进非晶中空位型缺陷的迁移与湮没,而非晶合金的晶化

也是一个短程有序向长程有序的结构转化过程。根据固体电阻的产生机理^[12],这两方面因素都可能降低电子运动的散射概率,从而使非晶合金的电阻在脉冲磁场处理后呈现降低趋势,如表 3 所示。

表 3 脉冲磁场处理对试样电阻的影响

试样序号	1	2	3	4	5
处理前电阻/ Ω	0.7023	0.7272	0.6402	0.7197	0.7277
处理后电阻/ Ω	0.6587	0.6427	0.5905	0.6982	0.6750

由于本实验的脉冲磁场变化频率较低, $\nu \leq$

25Hz, 所以脉冲磁场处理过程中非晶试样中原子作周期振动的程度较低, 其产生的温升也相应较低 ($\Delta T \leq 20^\circ\text{C}$). 这可能正是低频脉冲磁场的优势所在, 它将更有利于非晶态合金综合性能的优化^[13]. 但从表 1 与表 2 也可以看出, 低频脉冲磁场处理后, 非晶合金纳米晶化的精细结构, 如晶化相析出量及其对应的超精细磁场等, 随脉冲磁场参数变化的规律性不强. 这可能主要是由于低频脉冲磁场处理的特性所致, 即原子扩散的驱动力相对较小, 原子扩散距离相对较短. 所以, 低频脉冲磁场处理致非晶纳米晶化的晶化相 $\alpha\text{-Fe}(\text{Si})$ 与剩余非晶相界面不好区

分, 晶化相对应的超精细参数变化的规律性也不很明显. 这一问题有待下一步的深入研究.

4. 结 论

低频脉冲磁场处理促进非晶合金的纳米晶化——“磁致纳米晶化”. 在磁致纳米晶化过程中, 试样的温升很低, 十分有利于非晶合金综合性能的优化. 当然, 低频脉冲磁场处理参数与非晶纳米晶化结构、晶化量及纳米合金性能的关系尚需作进一步深入研究.

- [1] Yoshizawa Y, Oguma S and Yamauchi K 1988 *J. Appl. Phys.* **64** 6044
- [2] Lu K, Wang J T, Dong L 1991 *Acta Metallurgica Sinica* **27** B31 (in Chinese) [卢柯、王景唐、董林 1991 金属学报 **27** B31]
- [3] Lu K, Wang J T, Wang W T, Wei W D 1991 *J. Appl. Phys.* **69** 522
- [4] Koster U *et al* 1991 *Mater. Sci. Eng. A* **133** 611
- [5] Kulik T, Horubata T and Matyja H 1992 *Mater. Sci. Eng. A* **157** 107
- [6] Gorria P, Orue I, Plazaola F and Barandiaran J M 1993 *J. Appl. Phys.* **73** 6600
- [7] Chao Y S *et al* 1997 *Acta Phys. Sin.* **46** 1369 (in Chinese) [晁月盛等 1997 物理学报 **46** 1369]
- [8] Chao Y S and Xiao S H 1998 *Acta Phys. Sin.* **47** 2012 (in Chinese)

[晁月盛、肖素红 1998 物理学报 **47** 2012]

- [9] Kopcewicz M, Gonser U and Wagner H G 1980 *Appl. Phys.* **23** 1
- [10] Xiu Y S and Yang X Q 1993 *Nuc. Tech.* **6** 591 (in Chinese) [许裕生、杨先清 1993 核技术 **6** 591]
- [11] Wang F X 1981 *The Physics of Metals* (Mechanical Industry Press Beijing), 183 (in Chinese) [汪复兴 1981 金属物理 (北京:机械工业出版社) 第 183 页]
- [12] Kittel C 1976 *Introduction To Solid State Physics* p. 190 (in Chinese) [杨顺华等译 1979 固态物理导论 (北京:科学出版社) 第 190 页]
- [13] Xiao S H, Chao Y S and Zhou B L 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 288 (in Chinese) [肖素红、晁月盛、周本濂 2000 物理学报 **49** 288]

Effect of pulsed magnetic field on the Fe-based amorphous alloys^{*}

Chao Yue-Sheng Li Ming-Yang Geng Yan Liu Ji-Gang

(*Northeastern University, Shenyang 110004, China*)

(Received 29 October 2003 ; revised manuscript received 24 February 2004)

Abstract

Amorphous $\text{Fe}_{78}\text{Si}_9\text{B}_{13}$ alloys have been treated by pulsed magnetic field with lower frequency. The macrostructural change of amorphous specimens after treatment were observed by mössbauer spectroscopy and TEM etc. This investigation show that nanocrystallization of amorphous $\text{Fe}_{78}\text{Si}_9\text{B}_{13}$ occurs under the conditions : pulsed field 16—32kA/m , pulse frequency 20—25 Hz , acting time $\leq 2\text{min}$. The grain size of nanocrystalline phase $\alpha\text{-Fe}(\text{Si})$ is about 10nm. And , the temperature rise of specimens during the course of the application of pulsed magnetic field is very low ($\Delta T \leq 20^\circ\text{C}$).

Keywords : amorphous alloy , pulse magnetic field treatment , nanocrystallization

PACC : 6140 , 6170A , 7680

^{*} Project supported by the National High Technology Development Program of China (Grant No. 2002AA302601) and by the Doctorate Foundation of the State Education Ministry of China (Grant No. 20020145009).