

Fe-Ni-Si-B 非晶合金磁导率的等温时效

王 治¹⁾ 何 开 元

东北工学院材料科学与工程系, 沈阳 110006

1991 年 10 月 15 日收到

测试了制备态非晶 $(\text{Fe}_{1-x}\text{Ni}_x)_{76}\text{Si}_8\text{B}_{16}$ 合金在较低温度 (65—150℃) 下等温时效过程中磁导率的变化。结果表明: 在 65℃ 以下时效, 磁导率变化不大; 在 100℃ 以上时效, 磁导率发生了明显变化, 此变化与合金成分有关。用应力、磁致伸缩和感生磁各向异性的变化对实验结果进行了圆满的解释。

PACC: 7580; 7550K; 7530G; 7530C

一、引 言

制备态非晶合金薄带的结构是不稳定的, 即使在较低温度 (100℃ 左右) 下等温时效其结构也将发生变化。从已有的文献可以看出, 磁致伸缩接近零的非晶合金在急冷 (熔体急冷或高温水淬) 后其磁导率在等温时效过程中常常很不稳定。因此, 已有的关于非晶合金磁性不稳定的研究主要集中在 Co 基合金^[1-4], 而对 Fe-Ni 基合金的研究工作甚少, 至今未见报道。

本文研究了制备态 Fe-Ni 基非晶 $(\text{Fe}_{1-x}\text{Ni}_x)_{76}\text{Si}_8\text{B}_{16}$ 合金在较低温度等温时效过程中磁导率的变化, 分析了磁导率变化的原因, 并进行了定量计算。

二、实 验 方 法

实验所用非晶合金是用单辊法喷制成的条带, 带宽为 10mm, 4mm 两种, 带厚为 35—40μm。经 X 射线衍射证实所有成分的条带均为非晶结构。合金成分及编号如表 1 所示 (同表给出了合金的居里温度 T_c 、磁致伸缩 λ_s 和饱和磁化强度 M_s)。

表 1 非晶 $(\text{Fe}_{1-x}\text{Ni}_x)_{76}\text{Si}_8\text{B}_{16}$ 合金的居里温度、磁致伸缩和饱和磁化强度

编 号	1	2	3	4
Ni 含量 $x(\text{at}\%)$	50	60	65	70
$T_c(^\circ\text{C})$	290	175	127	77
λ_s	11.2×10^{-6}	5.5×10^{-6}	3.5×10^{-6}	1.8×10^{-6}
$M_s(\text{kA/m})$	653	514	432	332

1) 现在工作单位: 天津理工学院材料研究中心, 天津 300191。

试样的磁导率是用伏安法在频率 50Hz 时于室温下测定的。将试样分别在 65℃, 100℃ 和 150℃ 等温时效 t h 后空冷到室温测定初始磁导率。本文所用的是相对初始磁导率 μ_r 。

试样的居里温度用霍普金生法测定,磁致伸缩用小角度磁化强度转动法^[5]测定,饱和磁化强度用振动样品磁强计测定,磁场感生各向异性在自动磁转矩仪上测定。应力的测定主要参考了 Luborsky 曾用的方法^[6],以应力的相对变化来描述。测量方法如下:取长约 50mm 的平直非晶条带卷成圆环放入铜管内,此时非晶环的内径 $r_i = 16\text{mm}$,将此铜管和试样在一定温度下加热一段时间后取出,则试样环的曲率半径为 r_s ,用 r_s/r_i 可表示非晶合金试样应力消除的相对变化。将等温时效不同时间后的 r_s/r_i 值绘制成的曲线即后面提到的应力松弛曲线。

三、实验结果及分析

图 1 表明制备态非晶合金在 65℃ 等温时效过程中 μ_r 的变化。可以看到,随时效时间增加, μ_r 略有上升。

图 2 为制备态非晶合金在 100℃ 等温时间过程中 μ_r 的变化。可以看出 μ_r 发生了较

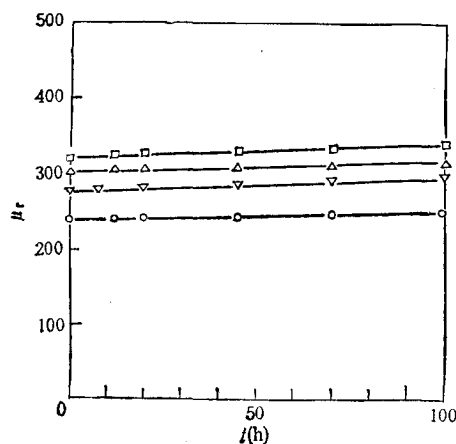


图 1 制备态非晶 $(\text{Fe}_{1-x}\text{Ni}_x)_{76}\text{Si}_8\text{B}_{16}$ 合金在 65℃ 等温时效过程中 μ_r 的变化

○ 为 $x = 0.5$; ▽ 为 $x = 0.6$; △ 为 $x = 0.65$;
□ 为 $x = 0.7$

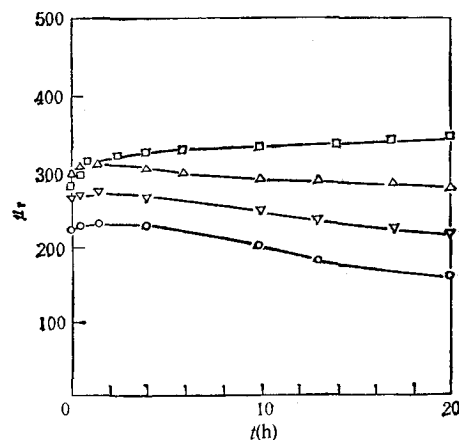


图 2 制备态非晶 $(\text{Fe}_{1-x}\text{Ni}_x)_{76}\text{Si}_8\text{B}_{16}$ 合金在 100℃ 等温时效过程中 μ_r 的变化 符号说明同图 1

大变化。时效初期 μ_r 略有上升,然后随着时效时间的增加, μ_r 发生了不同的变化,其中居里温度最低的 4# 合金 μ_r 仍然上升,而其它三种合金的 μ_r 呈现下降趋势,但下降幅度不同。很明显,居里温度较高的 1#, 2# 合金 μ_r 有较大的下降,推测主要是由于试样的自发磁化在各个磁畴内形成的感生各向异性造成了对畴壁的较强钉扎所致。而 4# 合金 μ_r 始终上升的原因可以理解为: 由于时效温度超过了该合金的居里温度,这时铁磁性基本消失, μ_r 的上升主要是由于在该温度保温时,部分消除了非晶薄带在制备过程中由于急冷所产生的内应力所致。

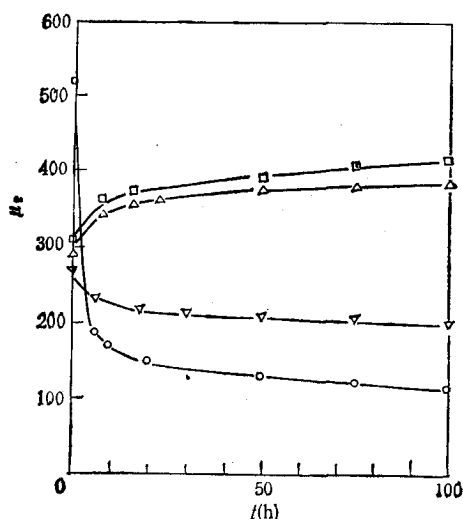


图3 制备态非晶 $(\text{Fe}_{1-x}\text{Ni}_x)_{76}\text{Si}_8\text{B}_{16}$ 合金在 150°C 等温时效过程中 μ_i 的变化 符号说明同图1

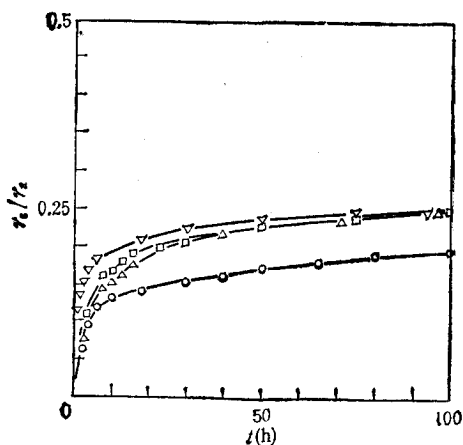


图4 制备态非晶 $(\text{Fe}_{1-x}\text{Ni}_x)_{76}\text{Si}_8\text{B}_{16}$ 合金在 150°C 等温时效过程中应力消除的相对变化 符号说明同图1

为了进一步说明低温等温时效过程中应力松弛对 μ_i 的贡献,我们将时效温度提高到 150°C ,使 3#,4# 合金均在居里温度以上时效并按文献[6]中的方法测定了 150°C 等温时效过程中应力松弛曲线,结果如图3和图4所示。对比图3与图4可以看出,3#,4# 合金 μ_i 的上升基本上是和制备态合金内应力的松弛相对应。这一试验结果明确指出了低温等温时效应力松弛对初始磁导率贡献的定量结果。

为了对 μ_i 进行定量计算,首先要选择合适的公式。因为这里讨论的是初始磁导率,故一般来源于可逆畴壁位移过程。按应力理论,应有 $\mu \propto M^2/\lambda_s\sigma$;按参杂理论,应有 $\mu \propto M^2/\sqrt{K}$ 。如果应力和参杂同时作用,则可以推导得^[7]

$$\mu_i = \frac{M_i^2}{\alpha\sqrt{K} + \beta\lambda_s\sigma}, \quad (1)$$

式中 α 和 β 为常数。

在前文^[7]中,作者之一曾根据 Enoch 等人^[8]在高导磁坡莫合金中测定的 μ 和 K 关系的实验数据,作成 M_i^2/μ 和 $\sqrt{K}$ 的关系图,结果不呈线性关系,说明(1)式与实验结果不符;但如改用下式,即

$$\mu_i = \frac{M_i^2}{\alpha K + \beta\lambda_s\sigma}, \quad (2)$$

则能和实验结果很好符合。由于(2)式尚不能按畴壁位移模型推演得出,因此我们称它为经验公式。

对于本文研究的 Fe-Ni-Si-B 非晶合金,我们发现其初始磁导率和磁各向异性常数 K 、磁致伸缩系数 λ_s 及应力 σ 的关系,也不符合(1)式,但符合经验公式(2)。现以 150°C 等温时效为例,利用(2)式定量计算制备态合金在时效过程中 μ_i 的变化。为此,下面先考察在时效过程中 K , λ_s 和 σ 的变化。

(1) 磁各向异性 在时效过程中 K 的变化是每个磁畴中由磁化感生的磁各向异性 K_{ind} 造成, 我们将磁转矩圆片试样在 150°C 在饱和磁场下进行磁场退火, 测定 1#, 2# 合金在 150°C 等温时效过程中磁场感生各向异性的变化, 如图 5 所示, 这个变化的大小应和在相同温度下在每个磁畴中由磁化感生的各向异性一致^[9]. 由图 5 可见, 磁场感生各向异性在 150°C 等温时效过程中发生了变化, 此变化与合金成分有关. 1# 合金 K_{ind} 较大, 2# 合金次之, 这与图 3 中 1# 和 2# 合金的 μ_r 下降曲线相对应.

(2) 磁致伸缩 测定了制备态非晶 $(\text{Fe}_{1-x}\text{Ni}_x)_{76}\text{Si}_8\text{B}_{16}$ 合金在 150°C 等温时效过程中 λ_s 的变化, 如图 6 所示. 可见 λ_s 变化很小, 它对 μ_r 的影响可忽略不计.

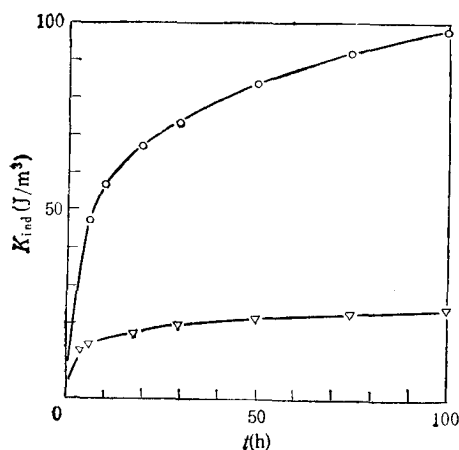


图 5 制备态非晶 $(\text{Fe}_{1-x}\text{Ni}_x)_{76}\text{Si}_8\text{B}_{16}$ 合金在 150°C 等温时效过程中磁场感生各向异性的变化 符号说明同图 1

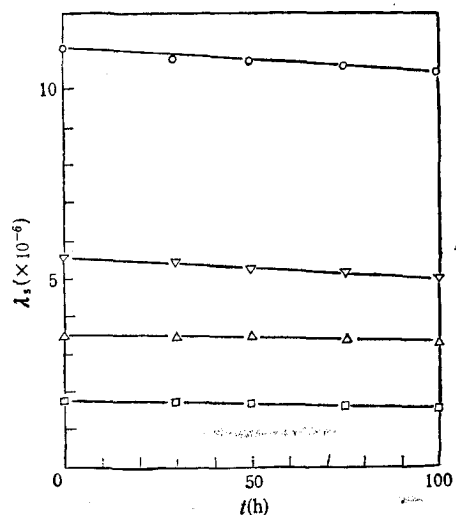


图 6 制备态非晶 $(\text{Fe}_{1-x}\text{Ni}_x)_{76}\text{Si}_8\text{B}_{16}$ 合金在 150°C 等温时效过程中 λ_s 的变化 符号说明同图 1

(3) 应力 应力的变化对 μ_r 的影响已如前所述, 为定量计算它对 μ_r 的贡献, 我们需定出方程 (2) 中 σ 的表达式. 设 $\sigma(0)$ 表示等温时效前制备态非晶合金的内应力, $\sigma(t)$ 表示等温时效 t 小时后合金的内应力, 则制备态非晶合金内应力消除的相对变化为^[6]

$$\frac{r_s}{r_0} = \frac{\sigma(0) - \sigma(t)}{\sigma(0)}. \quad (3)$$

上式可改写成

$$\sigma(t) = \sigma(0) \left(1 - \frac{r_s}{r_0} \right). \quad (4)$$

因此从图 4 曲线可以确定内应力 σ 随时间的变化.

上面讨论了在 150°C 等温时效过程中影响 μ_r 变化的各种因素, 现定量计算这些因素对 μ_r 的贡献. 将 (4) 式代入 (2) 式并以 K_{ind} 代替 K , 则 (2) 式变为

$$\mu_r = \frac{M_i^2}{\alpha K_{ind} + \beta \lambda_s \sigma(0) \left(1 - \frac{r_s}{r_0} \right)}, \quad (5)$$

因 λ_s 的变化很小, 可忽略不计, 故将 (5) 式中的 λ_s 看作常数. 于是 (5) 式简化为

表 2 1# 合金在 150℃ 等温时效过程中 μ_r , K_{ind} 与 r_s/r_a 值

$t(h)$	μ_r	r_s/r_a	$1 - r_s/r_a$	$K_{ind}(J/m^3)$
0	522	0	1	0
6	190	0.123	0.877	67.5
10	171	0.133	0.867	57
20	152	0.145	0.855	67
30		0.154	0.846	73.5
50	133	0.16	0.84	84
75	124	0.19	0.81	92
100	114	0.195	0.805	98

$$\mu_r = \frac{M_s^2}{\alpha K_{ind} + \beta' \left(1 - \frac{r_s}{r_a}\right)}, \quad (6)$$

其中 $\beta' = \beta \lambda, \sigma(0)$.

为了对 1# 合金的 μ_r 进行定量计算, 将 150℃ 等温时效过程中和图 3 至图 5 对应的各参量的值列于表 2.

取表 2 中 $t = 0$ 和 $t = 6h$ 的 μ_r , r_s/r_a 和 K_{ind} , 分别代入 (6) 式, 求出

$$\alpha = 32.2, \beta' = 817.4. \quad (7)$$

将 (7) 式代入 (6) 式, 得

$$\mu_r = \frac{M_s^2}{32.2 K_{ind} + 817.4 \left(1 - \frac{r_s}{r_a}\right)}. \quad (8)$$

再将表 2 中不同时间 t 的 r_s/r_a 与 K_{ind} 代入 (8) 式, 计算出 μ_r , 并与实测 μ_r 相比较, 示于图 7 (图中还示出了用同样方法计算得到的 3# 合金的 μ_r), 可见用 (6) 式计算出的 μ_r 曲线在很宽范围内与实测的 μ_r 值 (图中实验点) 符合甚好.

图 7 制备态非晶 $(Fe_{1-x}Ni_x)_{70}Si_8B_{10}$ 合金在 150℃ 等温时效过程中 μ_r 的计算值曲线与实测 μ_r 值的比较 符号说明同图 1

计算公式 (8) 与实验结果的定量符合是很有意义的, 在已有文献中尚未见有此定量的比较. 此结果的价值在于: 一方面说明在等温时效过程中, 非晶合金磁导率的变化符合 (2) 式的形式; 另一方面也说明在 100℃ 左右引起磁导率不稳定的原因主要是来自感生磁各向异性 K_{ind} 以及内应力 σ 的变化, 可不必考虑其它因素.

四、结 论

1. 制备态非晶 $(Fe_{1-x}Ni_x)_{70}Si_8B_{10}$ 合金在 65℃ 长期等温时效磁导率变化很少, μ_r 略有升高, 说明该合金系的制备态合金在 65℃ 以下使用其磁性基本上是稳定的.

2. 制备态非晶 $(\text{Fe}_{1-x}\text{Ni}_x)_{76}\text{Si}_8\text{B}_{16}$ 合金在 100—150°C 等温时效过程中, 磁导率发生了较大变化。其中居里温度较高的合金 ($T_c > 175^\circ\text{C}$) μ_r 下降很快; 而居里温度较低的合金 μ_r 降低很少 ($T_c >$ 时效温度) 或略有上升 ($T_c <$ 时效温度)。

3. 在等温时效过程中 μ_r 变化的主要原因是由于制备态合金内应力的松弛及感生磁各向异性的变化所致, 并可由公式:

$$\mu_r = \frac{M_s^2}{\alpha K_{\text{ind}} + \beta \lambda_s \sigma}$$

加以定量计算。

- [1] R. Hasegawa, *J. Magn. Magn. Mat.*, **41**(1984), 79.
- [2] 何开元、巴启先、王群、王利民, 仪表材料, **18**(1)(1987), 6
- [3] Kai-yuan Ho, Xing Lu and Qi-Xian Ba, *Mat. Sci. Eng.*, **99**(1988), 87.
- [4] Han Zheng-he, Wang Xin-lin and Ke Cheng, *Mat. Sci. Eng.*, **99**(1988), 119.
- [5] Kenji Narita, *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-16** (1980), 435.
- [6] Fred E. Luborsky, *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-11** (1975), 1644.
- [7] 何开元, 精密合金论文集, 上海科学技术出版社, (1980), 第 1 页.
- [8] R. D. Enoch, *Brit. J. Appl. Phys.*, **18**(1967), 10; 1407.
- [9] Kai-Yuan Ho, *J. Appl. Phys.*, **53**(1982), 7828.

ISOTHERMAL AGING OF PERMEABILITY OF AMORPHOUS Fe-Ni-Si-B ALLOYS

WANG ZHI HE KAI-YUAN

Department of Material Science and Engineering, Northeast University of Technology Shenyang 110006

(Received 15 October 1991)

ABSTRACT

Changes of permeability have been measured for as-received amorphous $(\text{Fe}_{1-x}\text{Ni}_x)_{76}\text{Si}_8\text{B}_{16}$ alloys after aging for different times at relative low temperatures (65—150°C). The results indicate that the permeability is almost unchanged after aging below 65°C but it varies obviously above 100°C. The changes of permeability are dependent on the alloy compositions and can be interpreted in terms of the changes of stress, magnetostriction and induced magnetic anisotropy during aging.

PACC: 7580; 7550K; 7530G; 7530C