

Fe-Cu-Nb-Si-B 纳米晶体软磁材料 中有效磁各向异性的测定*

何开元 智 靖 熊湘沅 程力智

东北工学院材料科学与工程系, 沈阳 110006

1992 年 9 月 17 日收到

研究了成分为 $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ 的纳米晶体结构的软磁材料的磁各向异性. 理论分析及测量结果说明, 用趋近饱和的磁化过程可以测定出这种材料中的有效磁各向异性常数 $\langle K \rangle$, 它比晶粒中的磁晶各向异性常数 K_1 约小一个数量级.

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

一、引 言

近年来, 在软磁材料中的一个新进展是发现了纳米晶体软磁材料, 即所谓的 Finemet^[1]. 其典型制备方法是成分为 $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ 的非晶合金条带在 550℃ 附近退火, 发生晶化, 使形成晶粒大小为 10—15nm 的 bcc $\alpha\text{-Fe}(\text{Si})$ 纳米晶体结构, 从而获得性能十分优异的软磁材料. 其相对起始磁导率可达到 10^5 数量级, $H_c < 0.8 \text{ A/m}$. 这种材料在晶粒很小时为什么反而具有如此好的软磁性能是和传统的概念不相符合的. 目前对这一问题的理解是按照 Herzer 的理论^[2]. 他利用 Alben 的无规各向异性模型来说明这种材料具有优异磁性的原因. 其理论的主要观点是: 对于大晶粒的无规取向的多晶材料, 每个晶粒的磁化强度按各个晶粒的易磁化方向排列, 在每个晶粒中形成磁畴, 材料的磁化过程由各个晶粒的磁晶各向异性 K_1 决定. 但对于无规取向的、晶粒十分细小的多晶材料来说, 各个微小晶粒中的原子磁矩在同时受到铁磁交换作用和磁晶各向异性场的作用下, 它们的磁化方向不再能够按每个晶粒的易磁化方向排列. 定义一个与交换作用有关的特征长度称之为铁磁交换长度 L_{ex} (ferromagnetic exchange length), 它由交换能和磁各向异性性能决定. 若晶粒直径 D 小于 L_{ex} , 则在 L_{ex}^3 的范围内有晶粒个数 $N = (L_{ex}/D)^3$, 这些无规取向的微小晶粒都受到铁磁交换作用使磁晶各向异性的效果下降, 表现为有效磁各向异性 $\langle K \rangle$, $\langle K \rangle$ 由各个小晶粒的磁晶各向异性 K_1 的平均涨落决定

$$\langle K \rangle \approx K_1 / \sqrt{N}. \quad (1)$$

因此若 N 足够大时, $\langle K \rangle \ll K_1$. 亦即若晶粒十分微小(纳米晶体材料)时, 由于磁各向异性显著降低而变得更易于磁化. 可见, Herzer 理论主要说明, 在纳米晶体材料中具有很低的

* 国家自然科学基金及中国科学院磁学开放研究实验室基金资助的课题.

有效磁各向异性.

为了更进一步探明纳米软磁材料具有优异软磁特性的原因,对试样的 $\langle K \rangle$ 进行实验测定显然是很有意义的. 本文报道我们对 $\langle K \rangle$ 的测定所作的原理分析和实验结果.

二、实验原理

假定所研究的材料是由很多无规取向的晶粒大小为 10nm 左右的立方晶体晶粒组成,各个晶粒的磁晶各向异性常数为 K_1 . 显然,各个晶粒的磁晶各向异性是立方对称的. 正如前节所述,由于各个小晶粒受到铁磁交换作用,使磁晶各向异性的效果减弱,其有效磁各向异性 $\langle K \rangle$ 由 K_1 的平均涨落决定,因此这种有效各向异性一般不会仍是立方对称的,我们假定它是单轴的. 这样,在交换长度 L_{ex} 范围内,由 N 个小晶粒所组成的区域 $V_{ex} = L_{ex}^3$ 中,存在一个易磁化轴,其磁各向异性由有效磁各向异性常数 $\langle K \rangle$ 表示. 因此,所研究的体系可以看成是由很多个体积为 V_{ex} 、磁各向异性为 $\langle K \rangle$ 的无规取向的单轴各向异性的磁畴组成. 这样可以用单轴多晶体磁化过程的趋近饱和律来测定 $\langle K \rangle$ 值.

趋近饱和律是测定多晶试样的磁晶各向异性的有效方法. 一般将磁化强度表示成磁场 H 的函数

$$M = M_s \left(1 - \frac{a}{H} - \frac{b}{H^2} - \frac{c}{H^3} - \dots \right) + \chi_p H, \quad (2)$$

或用磁化率 χ 表示:

$$\chi = dM/dH = M_s \left(\frac{a}{H^2} + \frac{2b}{H^3} + \frac{3c}{H^4} + \dots \right) + \chi_p, \quad (3)$$

式中 M_s 为饱和磁化强度, a, b, c 为常数. 系数 b 是和磁晶各向异性有关的常数,对于立方晶系的多晶试样,已知^[3],

$$b = \frac{8}{105} \cdot K_1^2 / \mu_0^2 M_s^2. \quad (4)$$

对于单轴磁各向异性为 K_u 的多晶试样,可以证明(见附录)

$$b = \frac{4}{15} \cdot K_u^2 / \mu_0^2 M_s^2. \quad (5)$$

可见,如果我们测定了磁化率随磁场的变化,即 $\chi-H$ 曲线,确定系数 b ,就可以计算出 K_u 值,也就是 $\langle K \rangle$ 值

$$\langle K \rangle = \frac{1}{2} \mu_0 M_s \sqrt{15b}. \quad (6)$$

三、实验方法

趋近饱和律中微分磁化率 χ 的测量装置如图 1 所示. 所用试样为 5mm 宽、200mm 长的条带试样. 图中左侧回路为磁化装置,由螺线管 N_1 提供直流磁场,最高磁场可达 2.4×10^4 A/m, M_s 用冲击法测量. 线圈 N_2 位于 N_1 的中心. 由音频发生器供给正弦交变电流,以示波器观测其波形. 线圈 N_2 中产生幅值为 Δh 的交变弱场,使试样的磁化强度在磁场

H 所确定的稳定值上下作正弦变化,其幅值为 Δm . Δh 以下式计算:

$$\Delta h = N_2 \bar{I} / L_2 (\text{A/m}). \quad (7)$$

右下部回路是为直接测量试样的磁化强度的变化 Δm 设置的. N_c 为和 N_3 串联反接的补偿线圈,它和 N_1 耦合. 当 K_2 打向位置 3 时,在无试样的条件下,调节补偿电阻 R_c ,使当 N_1 中通以最大交变电流时,在 N_3 回路中没有感生电流产生,即灵敏检流计 G 仍指零. 这样保证无试样时在相当大的磁场变化中,不致使 N_3 回路中产生感生电流. 当放入试样后, K_2 打向位置 2 时,从自动锁定放大器 E 便直接读出 N_3 线圈中感应出的交变电压值 e_2 , 则 Δm 可以从下式计算:

$$\Delta m = e_2 / (16\pi N_3 s f) \cdot 10^{11} (\text{A/m}). \quad (8)$$

微分磁化率 χ 由下式计算:

$$\chi = (\Delta m / \Delta h)_H = \frac{10^{11}}{16 \sqrt{2} \pi} \cdot L_2 e_2 / (N_2 N_3 s f \bar{I}), \quad (9)$$

测定了不同磁场 H 下的 χ 值. 用 χ 和 H^{-3} 作图, 在一定的磁场范围内, χ 与 H^{-3} 呈线性关系, 此直线的斜率为 B , 利用 $B = 2bM_s$ 和 (6) 式, 即可求出 $\langle K \rangle$ 值.

四、实验结果与讨论

实验所用试样成分为 $\text{Fe}_{74.8}\text{Cu}_{1.2}\text{Nb}_2\text{Si}_{15}\text{B}_7$, 经 530°C , 1h 热处理后, 测得 $M_s = 9.83 \times 10^2 \text{ kA/m}$. $\chi - H^{-3}$ 关系如图 2. 用最小二乘法求得直线的斜率 $B = 2.45 \times 10^{11} (\text{A/m})^3$, 因此由 $b = B / 2M_s$ 求得 $b = 1.25 \times 10^5 (\text{A/m})^2$, 最后由 (6) 式可求得该合金的有效磁各向异性 $\langle K \rangle = 844 \text{ J/m}^3$.

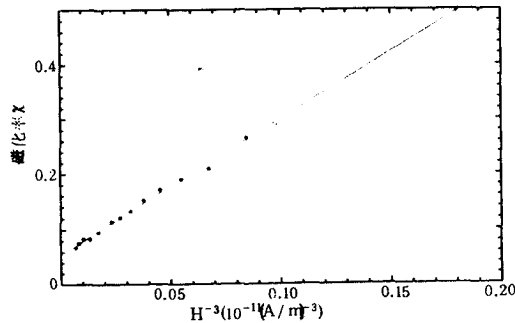


图 2 $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ 纳米晶体合金的 χ 与 H^{-3} 关系图

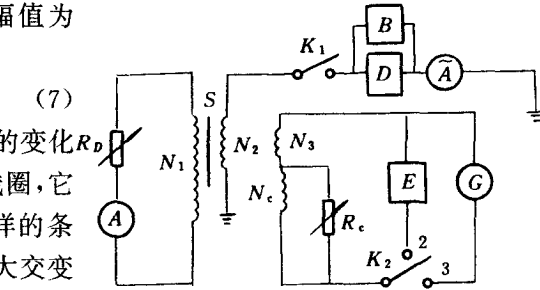


图 1 微分磁化率 χ 的测量框图

S ——条带试样; A, \bar{A} ——分别为直、交流安培表;
 G ——灵敏检流计; D ——音频信号发生器;
 B ——示波器; E ——自动相位锁定放大器

我们的实验结果表明, 该试样最佳初始相对磁导率为 5.5×10^4 ($H = 0.08 \text{ A/m}$), 矫顽力 $H_c = 0.96 \text{ A/m}$. X 射线衍射结果得到该合金平均晶粒直径为 11.5 nm , 点阵常数为 2.8402 \AA . 因此可以推知 Fe-Si 晶粒中 Si 含量^[4]为 19at%, 进而查得该晶粒中磁晶各向异性常数 K_1 ^[5]值为 $9 \times 10^3 \text{ J/m}^3$. 可见 $\langle K \rangle$ 比 K_1 约小一个数量级. 因此, 我们的实验证明: 该合金中的各个小晶粒的局域磁晶各向异性大部分被平均掉而具有较小的有效磁各向异性, 加上低的磁致伸缩使其具有很好的软磁性能.

铁磁交换长度 L_{ex} 用下式估算:

$$N = L_{\text{ex}}^3/D^3, \quad (10)$$

式中 N 为铁磁交换长度内小晶粒的个数, 由式 $N = (K_1/\langle K \rangle)^2$ 求得. 这样得到

$$L_{\text{ex}} = D \cdot N^{1/3} = D \cdot (K_1/\langle K \rangle)^{2/3}. \quad (11)$$

本例中, $L_{\text{ex}} = 17.5 \times (9000/844)^{2/3} = 56\text{nm}$, 这和 Herzer^[2]估计的值相近.

五、结 论

1. 用趋近饱和定律的原理可测得纳米晶体合金的有效磁各向异性常数 $\langle K \rangle$.

2. $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ 纳米晶体软磁合金在 530°C 退火后的有效磁各向异性 $\langle K \rangle$ 值为 63.5J/m^3 , 它比纳米晶粒中的磁晶各向异性常数约小一个数量级, 是该合金获得优异软磁性能的重要原因.

部分实验是在中国科学院快速凝固非平衡合金开放研究实验室中完成的.

附 录

由紊乱取向单轴磁各向异性的许多小晶粒组成的磁体的趋近饱和和磁化曲线可如下计算:

设外磁场 H 足够强, 使每个晶粒中的磁化过程皆为可逆转动过程. 考虑其中某一晶粒, 其易磁化轴 c 和磁场 H 成 φ 角, 在磁场 H 的作用下, 磁化强度 M_s 的方向偏离 c 轴而与 H 的夹角为 θ (如图 3 所示), 则沿 H 方向的磁化强度为

$$M_H = M_s \cos\theta = M_s \left(1 - \frac{\theta^2}{2} + \frac{\theta^4}{24} - \dots\right). \quad (\text{A} \cdot 1)$$

若仅考虑磁各向异性是磁化强度转动过程的阻力, 则总的磁能 E 为磁各向异性能 E_K 及磁体在外磁场中的能量 E_H 之和

$$E = E_K + E_H = E_K - \mu_0 M_s H \cos\theta, \quad (\text{A} \cdot 2)$$

平衡时, $\partial E/\partial\theta = 0$, 并设 θ 很小, 则得

$$\theta = -\frac{1}{\mu_0 M_s H} \cdot \frac{\partial E_K}{\partial\theta}. \quad (\text{A} \cdot 3)$$

将 (A·3) 式代入 (A·1) 式, 得

$$M_H = M_s \left[1 - \frac{1}{2\mu_0^2 M_s^2 H^2} \left(\frac{\partial E_K}{\partial\theta} \right)^2 + \frac{1}{24\mu_0^4 H^4 \mu_0^4} \left(\frac{\partial E_K}{\partial\theta} \right)^4 - \dots \right], \quad (\text{A} \cdot 4)$$

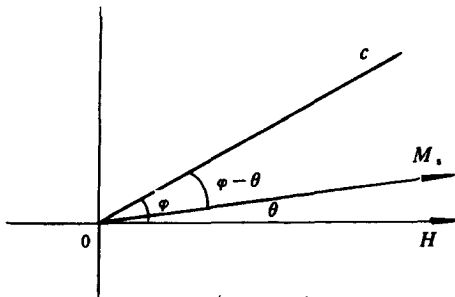


图3 磁场 H 、磁化强度 M_s 和晶体 c 轴的相位关系示意图

则此单个晶粒的微分磁化率为

$$\frac{dM_H}{dH} = \frac{1}{\mu_0^2 M_s H^3} \left(\frac{\partial E_K}{\partial\theta} \right)^2 - \frac{1}{6\mu_0^4 M_s^3 H^5} \left(\frac{\partial E_K}{\partial\theta} \right)^4 + \dots \quad (\text{A} \cdot 5)$$

设各个晶粒的取向是紊乱的, 各个易磁化轴方向 (φ) 在空间各个方向分布, 因此这种单轴多晶体的磁化率 χ 应为各单个晶粒的平均值, 即

$$\chi = \frac{d\overline{M_H}}{dH} = \frac{1}{\mu_0^2 M_s H^3} \overline{\left(\frac{\partial E_K}{\partial\theta} \right)^2} - \frac{1}{6\mu_0^4 M_s^3 H^5} \overline{\left(\frac{\partial E_K}{\partial\theta} \right)^4} + \dots \quad (\text{A} \cdot 6)$$

将 (A·6) 式中 H^{-3} 项系数和趋近饱和定律 (正文中 (3) 式) 比较, 可知

$$2bM_s = \frac{1}{\mu_0^2 M_s} \overline{\left(\frac{\partial E_K}{\partial\theta} \right)^2}. \quad (\text{A} \cdot 7)$$

对于单轴各向异性晶体, 磁各向异性能 $E_K = K_s \sin^2(\varphi - \theta)$ (见图 4), 因此有 $\overline{\left(\frac{\partial E_K}{\partial\theta} \right)^2} = K_s^2 \overline{\sin^2 2(\varphi - \theta)}$. 已知 $\sin^2 2(\varphi - \theta)$

在空间各个角度 φ 的平均值为 $8/15$, 因此由(A·7)式可得

$$b = \frac{4}{15} \cdot \frac{K_2^2}{\mu_0^2 M_s^2},$$

即为正文中的(5)式.

- [1] Y. Yoshizawa, S. Oguma and K. Yamauchi, *J. Appl. Phys.*, **64**(1988),6044.
- [2] G. Herzer, *IEEE Trans. Magn.*, **25**(1989)3327; **26**(1990),1397.
- [3] S. Chikazumi, *Physics of Magnetism*, New York, Wiley, (1964), p. 274.
- [4] Y. P. Yelsukov, V. A. Barinov and G. N. Konygin, *Phys. Met. Metall.*, **62**(1986), No. 4, 85.
- [5] H. Gengnagel und H. Wagner, *Z. Für angewandte Physik*, **V111**(1961),No. 4, 174.

MEASUREMENT OF EFFECTIVE MAGNETIC ANISOTROPY IN NANOCRYSTALLINE Fe-Cu-Nb-Si-B SOFT MAGNETIC MATERIALS

HE KAI-YUAN ZHI JING XIONG XIANG-YUAN CHENG LI-ZHI

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

(Received 17 September 1992)

ABSTRACT

Magnetic anisotropy of a nanocrystalline $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ soft magnetic alloy was investigated. Theoretical analysis and measurement results show that the effective magnetic anisotropy constant $\langle K \rangle$ in the nanocrystalline alloys can be measured by means of the process of approaching saturation and the measured value is about one orders of magnitude smaller than the magnetocrystalline anisotropy constant K_1 of the α -Fe(Si) grains.

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