

# 铁基-铁镍基复合非晶态合金的磁性

陈文智 周少雄

(钢铁研究总院国家非晶微晶合金工程技术研究中心, 北京 100081)

陈金昌

(首都师范大学物理系, 北京 100037)

(1999 年 7 月 22 日收到)

用双喷嘴坩埚制备了非晶态合金  $\text{Fe}_{78}\text{Si}_9\text{B}_{13}$  和  $(\text{FeNiCr})_{78}(\text{SiB})_{22}$  的单层带材和复合带, 并测量了两种合金的叠绕铁芯和复合带铁芯的热磁曲线和磁滞回线. 对于两种合金的叠绕铁芯, 其磁滞回线呈蜂腰型, 类似于两种合金各自磁滞回线的平均值, 但并不完全相同. 对于复合带铁芯, 其热磁曲线与两种合金热磁曲线的平均值基本重合, 而磁滞回线不仅不再是蜂腰型, 且非常扁平. 叠绕铁芯和复合带铁芯磁滞回线的这种变化源于叠绕铁芯和复合带铁芯中的内应力. 这种内应力产生的根本原因是两种材料热膨胀系数和磁致伸缩系数的差别.

PACC: 7550K; 8120

## 1 引 言

非晶态合金具有优良的软磁特性, 几十年来一直是金属材料研究和应用领域的热点之一. 将性质不同的非晶态材料复合在一起, 一方面可以增大材料的厚度, 甚至制备出大块非晶态材料; 另一方面两种材料性质的差异可能导致整个复合材料的性质出现根本变化. 因此人们很早就开展了复合非晶态材料的研究<sup>[1-3]</sup>, 发现不同性质的非晶态材料复合在一起后, 整体磁性远不是两种材料各自特性的简单叠加, 尤其是两种材料的热膨胀系数和磁致伸缩系数差可导致复合材料内应力状态乃至磁性的极大变化, 在传感器中具有良好的应用前景. 不过, 迄今为止关于复合非晶态材料的研究工作开展较少, 尚未得出系统性的研究成果.

本文介绍  $\text{Fe}_{78}\text{Si}_9\text{B}_{13}$ - $(\text{FeNiCr})_{78}(\text{SiB})_{22}$  复合非晶带铁芯以及由这两种单层非晶带叠绕而成的双绕铁芯磁性的研究.

## 2 实验方法

实验采用的两种非晶态合金的化学成分如下:  $\text{Fe}_{78}\text{Si}_9\text{B}_{13}$  和  $(\text{FeNiCr})_{78}(\text{SiB})_{22}$  (原子百分比). 用真空感应炉熔炼母合金. 利用单辊急冷工艺在大气环境下制备上述合金的单层非晶带. 利用双喷嘴坩埚技术<sup>[2]</sup>制备复合非晶带, 其工艺原理如图 1 所示. 非晶带材的制备工艺参数如下: 喷嘴宽度为 0.3 mm, 长度为 10 mm; 对于双喷嘴坩埚, 两个喷嘴的间距为 3 mm,  $\text{Fe}_{78}\text{Si}_9\text{B}_{13}$  作为贴辊面.

为了表述方便,将  $\text{Fe}_{78}\text{Si}_9\text{B}_{13}$  称为 F,  $(\text{FeNiCr})_{78}(\text{SiB})_{22}$  称为 N, 将两者重叠在一起再卷绕成的双绕铁芯称为 F+N, 两者的复合带称为 FN. 上述三种带材经 X 射线衍射证实为非晶态. 两种单层非晶带的物理性能见表 1. 复合带 FN 的总厚度为 0.060 mm. 利用金相显微镜观察复合带横截面, 测得每一层的厚度均约 0.030 mm.

分别将两种单层带和复合带卷绕成内径为 25 mm、外径为 30 mm 的环形铁芯, 其中复合带卷绕铁芯时 F 层在外侧. 将两种成分的单层非晶带重叠后卷绕成上述尺寸的双绕铁芯. 将所有铁芯在 350 °C 氢气保护下进行 30 min 的纵向磁场退火. 通过一根穿过铁芯

的铜棒对铁芯施加纵向磁场. 通过铜棒的直流电流为 60 A, 相当于对铁芯施加的磁场强度约为 700 A/m.

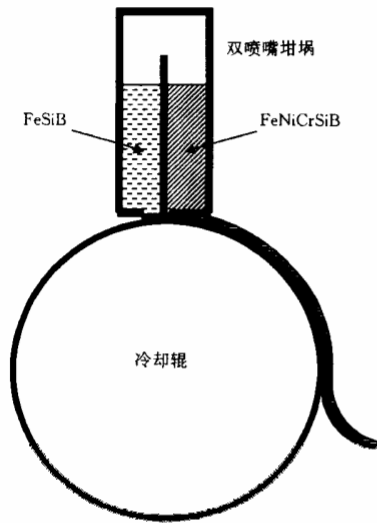


图 1 双喷嘴坩埚制备复合非晶带原理示意图

表 1 单层非晶带的物理特性

材料	$\text{Fe}_{78}\text{Si}_9\text{B}_{13}$ (F)	$(\text{FeNiCr})_{78}(\text{SiB})_{22}$ (N)
宽度/mm	10	10
厚度/mm	0.025	0.026
密度/ $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$	7.2	7.7
饱和磁化强度/ $\text{A}\cdot\text{m}^{-1}$	$1.24 \times 10^6$	$0.61 \times 10^6$
饱和磁致伸缩系数	$27 \times 10^{-6}$	$15 \times 10^{-6}$
居里温度/°C	410	360
晶化温度/°C	550	470
线膨胀系数/ $^{\circ}\text{C}^{-1}$	$7.6 \times 10^{-6}$	$11.7 \times 10^{-6}$ *
弹性模量/ $\text{N}\cdot\text{m}^{-2}$	$57 \times 10^9$	$145 \times 10^9$ *

\* 取  $\text{Fe}_{40}\text{Ni}_{40}\text{Mo}_4\text{B}_{16}$  (Metglas2826MB) 的数据作为近似.

用磁秤测量两种单层带和复合带的热磁曲线, 用横河 HEW3257 型磁滞回线自动测量仪测量两种单层非晶带铁芯、双绕铁芯和复合带铁芯的磁滞回线.

### 3 实验结果及分析

图 2 为 F, N 以及 FN 的热磁曲线. 图 2 中的 F+N 是两种材料按照与复合带中两种材料相同的比例混合后测得的平均值. 由图 2 曲线看出, 复合带的热磁曲线与两种单层带热磁曲线的重量加权平均值是重合的. 这说明复合带的内禀磁性是两种材料的简单叠加. Kraus 等<sup>[3,4]</sup>和 Sato 等<sup>[5]</sup>分别对铁镍基-钴基复合非晶带和铁基非晶-纳米晶复合带的磁性进行了研究. 但这些研究工作均集中于复合带的技术磁性, 对内禀磁性的变化没有明确的结论. 研究表明<sup>[2]</sup>, 复合非晶带存在厚度约为数百纳米的成分过渡层. 本文的结果表明过渡层对复合带整体内禀磁性的影响不大.

图 3 曲线 a 为 F 和 N 各自磁滞回线的平均值. 为了便于与双绕铁芯比较, 该平均值是按照双绕铁芯 F+N 中两种材料分别所占重量百分比加权计算的. 可以看出磁滞回线存在拐点, 类似于蜂腰形. 显然, 这是两种材料的磁滞回线算术叠加的结果.

图 3 曲线 b 为 F+N 的磁滞回线. 与曲线 a 对比可以发现, 其磁滞回线与曲线 a 极

为相似,但并不完全相同.这说明,一方面双绕铁芯 F + N 的磁性能主要由两种材料的性质所共同决定,另一方面双绕铁芯的两种材料之间存在某种相互作用,使得 F + N 铁芯的

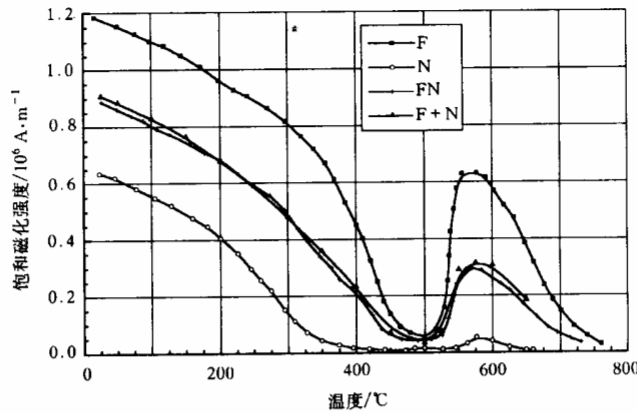


图2  $Fe_{78}Si_9B_{13}$ ,  $(FeNiCr)_{78}(SiB)_{22}$  以及两者复合带的热磁曲线

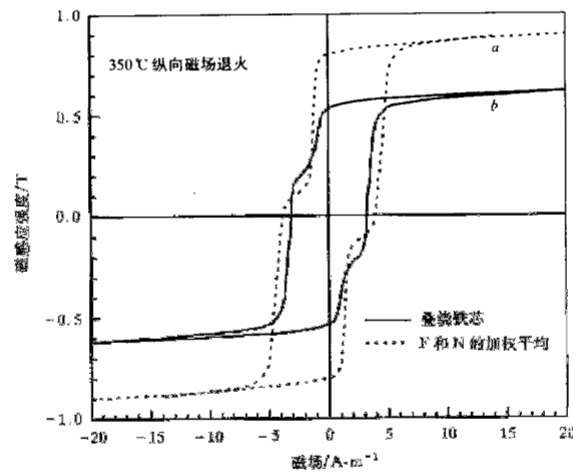


图3  $Fe_{78}Si_9B_{13}-(FeNiCr)_{78}(SiB)_{22}$  双绕铁芯的磁滞回线

磁性不完全等同于 F 和 N 的简单加权平均.这种相互作用可能来自两方面:一方面,对于双绕铁芯 F + N,两种材料是交叠卷绕的,在磁化过程中饱和磁致伸缩系数差将导致两层材料之间产生磁弹性相互作用,在  $\lambda_s$  大的 F 层产生沿带轴方向的压应力,而在  $\lambda_s$  小的 N 层产生拉应力,这使得 F 层难以磁化,而 N 层易于磁化,最终使 F + N 磁滞回线不同于两种材料的平均值.但是,由于铁芯经过了纵向磁场退火,两种材料中的磁化矢量大部分已经沿带材长度方向排列,因此在磁化过程中磁致伸缩效应可能不大,亦即  $\lambda_s$  的差别对双绕铁芯磁性的影响较小.另一方面, F 层的热膨胀系数低于 N 层.假定 F + N 双绕铁芯经过 350 °C 退火后内应力可以全部消除,则在随后的冷却过程中由于 F 和 N 层的热膨胀系数差导致 F 层产生带平面内的压应力,而 N 层产生拉应力,形成与上述  $\lambda_s$  差相似的效

应. 但由于 F+N 双绕铁芯的层与层之间并无紧密结合, 由上述两种因素形成的应力实际上可以在较大程度上松弛. 因此双绕铁芯总的磁滞回线形状没有根本变化, 与两种材料各自磁滞回线的平均值类似, 仅仅是回线的高低和腰的位置有所改变.

何开元等<sup>[6]</sup>曾研究了制备态铁基-钴基非晶双绕铁芯的磁化曲线, 发现其磁性不同于两种材料的简单平均. 他们将这种现象归结为两种材料的磁弹性相互作用. 对于我们所研究的铁基-铁镍基非晶带双绕铁芯, 情况与之类似. 所不同的是本文研究的双绕铁芯经过了消除应力退火, 因此两种材料的热膨胀系数差也对磁性的变化有一定贡献.

然而, Sato 等<sup>[7]</sup>的研究却表明, 对于 FeNbSiB-FeCuNbSiB 双绕铁芯, 经过退火后 FeCuNbSiB 一侧发生晶化而收缩, 但双绕铁芯的磁滞回线是两种材料的简单叠加. 他们认为双绕铁芯的两层带材之间互不影响. 这种观点似乎与本文的实验结果有差异, 其原因尚待分析.

图 4 为复合带铁芯 FN 的磁滞回线. 与双绕铁芯的磁滞回线相比, 其形状发生了根本改变: 首先, 回线不是蜂腰形; 其次, 虽然经过了纵向磁场退火, 但与双绕铁芯相比剩磁很低, 回线扁平.

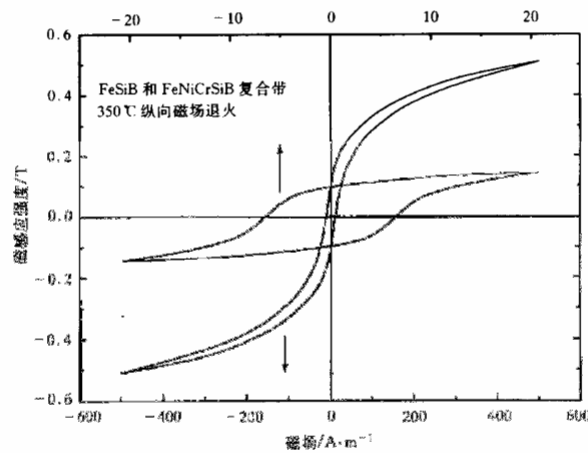


图 4  $\text{Fe}_{78}\text{Si}_9\text{B}_{13}-(\text{FeNiCr})_{76}(\text{SiB})_{22}$  复合非晶带的磁滞回线

复合带铁芯的上述特性起源于复合带中两种材料的紧密结合. 在单辊双喷嘴工艺中, 双喷嘴的间距约等于熔潭的长度<sup>[8]</sup>, 这样在第二层合金熔体喷出的位置, 第一层合金尚未完全凝固, 在两层合金的交界面存在一定范围的互扩散, 使两层之间呈紧密结合. 对复合带横截面的扫描电子显微镜观察也证实<sup>[2]</sup>, 复合带的交界面实际上是一个尺寸约为数百纳米的成分过渡层. 假设复合带的内应力可以通过退火完全消除, 在随后的降温过程中, 由于两种材料热膨胀系数的差别, 导致降温后 F 层产生带平面内的二维压应力, 而 N 层产生拉应力, 如图 5 所示. 由于两层材料结合紧密, 这种内应力无法松弛. 考虑到两种材料的饱和磁致伸缩系数均大于零, 可以判断 F 层将变得难以磁化.

为了估算经过退火的复合带铁芯中的内应力, 假设: (1) 两层材料为均匀连续的介质, 其宽度相同, 无内部和表面缺陷; (2) 在退火后的冷却过程中不发生应力松弛; (3) 忽略带

材的宽度,只考虑应力和应变在带材长度方向的分量;(4)暂不考虑复合带的  $\Delta E$  效应以及热处理对非晶带力学性质的影响.

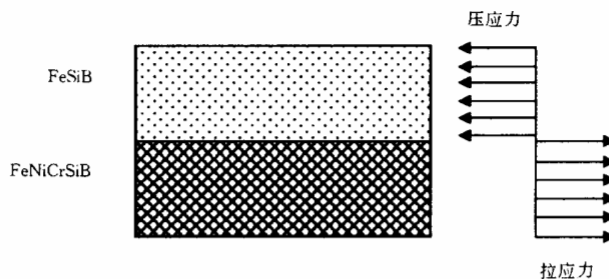


图5  $\text{Fe}_{78}\text{Si}_6\text{B}_{13}-(\text{FeNiCr})_{78}(\text{SiB})_{22}$  复合非晶带的内应力示意图

设样品由  $350\text{ }^{\circ}\text{C}$  退火后降温至室温  $25\text{ }^{\circ}\text{C}$ , 如果两层材料处于自由状态, 则它们将分别产生收缩, 收缩量分别为

$$\frac{\Delta l_F}{l} = \alpha_F \Delta T = 2.47 \times 10^{-3} \quad (\text{F 层}), \quad (1)$$

$$\frac{\Delta l_N}{l} = \alpha_N \Delta T = 3.80 \times 10^{-3} \quad (\text{N 层}). \quad (2)$$

由于复合带的两层材料是紧密结合的, 它们无法自由伸长, 同时无法进行弯曲变形, 因此复合带的整体收缩量应在上述两个值之间, 在该平衡位置两层材料中的总内应力大小相等, 方向相反. 由于 F 的热膨胀系数低于 N, 在降温后 F 层产生压应力, 而 N 层产生拉应力. 由于两层材料的厚度和宽度相同, 故两层材料内部的应力大小相等, 且均匀分布. 根据 Hooke 定律, 可得

$$E_F \epsilon_F = E_N \epsilon_N \quad \text{或} \quad \frac{\epsilon_N}{\epsilon_F} = \frac{E_F}{E_N} = 0.393. \quad (3)$$

另一方面, 两层带材的应变之和应等于它们各自能够自由收缩时的收缩量之差, 即

$$\epsilon_F + \epsilon_N = 3.8 \times 10^{-3} - 2.47 \times 10^{-3} = 1.33 \times 10^{-3}. \quad (4)$$

结合(3)和(4)式, 可得两层材料的应变分别为

$$\epsilon_F = 0.955 \times 10^{-3}, \quad \epsilon_N = 0.375 \times 10^{-3}.$$

复合带中的内应力  $\sigma = 54.4\text{ MPa}$ , 其中, F 层为压应力, N 层为拉应力. 正是这种内应力使得 F 层难以磁化. 而对于 N 层, 由于拉应力是二维的, 实际上其磁化矢量的取向不受影响, 因此磁化过程没有根本改变. 综合 F 层和 N 层的磁性变化可以得知, 复合带铁芯的磁化总趋势比双绕铁芯更难, 而且更多的是磁化矢量转动过程. 这就是复合带磁滞回线扁平、剩磁很低的原因.

复合带两层材料的磁致伸缩系数差对复合带的磁性也有影响. 由表 1 可见, F 层的磁致伸缩系数大于 N 层. 因此在复合带磁化过程中 F 层沿外磁场方向的伸长量将大于 N 层. 这样, 使得 F 层受到压应力, 而 N 层受到拉应力. 这种内应力与前述热膨胀系数差导致的内应力起着相同的作用, 即使得复合带整体上更难以磁化.

如上所述,双绕铁芯的磁滞回线呈蜂腰形,大致是两种材料回线的叠加.而复合带铁芯磁滞回线却不是蜂腰形.在软磁材料的反磁化过程中,磁滞回线第二象限内磁感应强度的快速下降通常对应于不可逆壁移引起的巴克豪森跳跃.复合带回线上腰的消失说明两层材料内部的巴克豪森跳跃被抑制.对于 F 层,前面已经提到,巨大的压应力使得 F 层的磁化过程可能在很大程度上以转动磁化为主,因此不会产生巴克豪森跳跃.而对于 N 层,它的磁化矢量取向可能受到矫顽力较大的 F 层磁矩取向的强烈影响,使得 N 层的磁化矢量被钉扎,因此其磁化过程自然被改变,即它的磁化矢量随 F 层的变化而变化.由此看来,F 层与 N 层可能存在某种耦合作用,使得复合带的磁化过程发生了根本变化,导致磁滞回线上腰的消失.

Sato 等<sup>[7]</sup>针对 FeNbSiB-FeCuNbSiB 复合非晶带在 FeCuNbSiB 一侧纳米晶化后的磁性变化建立了一个复合带磁畴结构的简单模型.他们认为,FeCuNbSiB 层纳米晶化时的收缩造成 FeNbSiB 层的二维压应力,使得该层的磁化矢量垂直于带面.而对于本文所研究的复合带,我们认为必须详细计算磁化矢量垂直于带面造成的退磁能和压应力造成的磁弹性能的大小,才能确定上述内应力是否足以使得磁化矢量垂直于带面,同时应对复合带的磁畴结构进行观察和证实.

## 4 结 论

根据上述实验结果和分析,得出如下结论:

- 1)  $\text{Fe}_{78}\text{Si}_9\text{B}_{13}$ -(FeNiCr)<sub>78</sub>(SiB)<sub>22</sub> 复合非晶带的内禀磁性基本上是组成复合带的两种材料各自内禀磁性的平均值.
- 2) 两种带材双绕铁芯的磁滞回线不同于两种带材各自回线的平均,表明双绕铁芯的两种带材之间存在一定的相互作用.
- 3) 由于  $\text{Fe}_{78}\text{Si}_9\text{B}_{13}$  和 (FeNiCr)<sub>78</sub>(SiB)<sub>22</sub> 热膨胀和磁致伸缩系数的差别,使复合非晶带的两层带材之间存在较强的磁弹性相互作用,导致磁滞回线完全不是两层带材的简单平均.

本工作的热磁曲线和磁滞回线测量分别得到钢铁研究总院功能材料研究所崔利亚高级工程师、安泰科技股份有限公司功能材料事业部蔡蕾高级工程师的大力帮助,作者深表感谢.

- [1] K. Inomata *et al.*, *J. Jpn. Inst. Metals*, **20**(1981), 855.
- [2] P. Duhaaj *et al.*, *Mater. Sci. Eng.*, **A133**(1991), 662.
- [3] L. Kraus *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **78**(1995), 6157.
- [4] L. Kraus *et al.*, *Key Eng. Mater.*, **81-83**(1993), 457.
- [5] T. Sato *et al.*, *J. Magn. Magn. Mater.*, **157/158**(1996), 211.
- [6] 何开元等, 科学通报, (1989)(12), 901 [He Kai-yuan *et al.*, *Chinese Sci. Bull.*, (1989)(12), 901 (in Chinese)].
- [7] Y. Sato *et al.*, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **20**(1996), 505.
- [8] W. Z. Chen, *Metallic Functional Mater.*, **6**(1999), 1.

## MAGNETIC PROPERTIES OF Fe- AND FeNi-BASED AMORPHOUS COMPOSITE RIBBONS

CHEN WEN-ZHI ZHOU SHAO-XIONG

(*National Amorphous and Nanocrystalline Alloy Engineering Research Center,  
Central Iron and Steel Research Institute, Beijing 100081*)

CHEN JIN-CHANG

(*Department of Physics, Capital Normal University, Beijing 100037*)

(Received 22 July 1999)

### ABSTRACT

Amorphous  $\text{Fe}_{78}\text{Si}_9\text{B}_{13}$  and  $(\text{FeNiCr})_{78}(\text{SiB})_{22}$  ribbons and their composite ribbons were made by a double-chamber-crucible technique.  $M_s$ - $T$  curves and hysteresis loops of the lap-wound-cores of the two ribbons and composite ribbons were measured. The hysteresis loop of the lap-wound-cores was waist-like, and was closed but not equal to the average of the two components. For the composite ribbon cores, their  $M_s$ - $T$  curve was practically the average of the two components. However, their hysteresis loop was no longer waist-like, but a flat one. These changes of the hysteresis loops of the lap-wound-cores and composite cores were suggested to result from the internal stress induced by the difference of the thermal expansion and magnetostriction of the two components.

**PACC:** 7550K; 8120