

Fe 基合金应力感生不可逆磁各向异性机理^{*}

张建强^{1)2)3)†} 秦彦军¹⁾³⁾ 方峰⁴⁾ 范晓珍¹⁾³⁾ 杨慧雅¹⁾³⁾ 邝富丽¹⁾³⁾
翟耀¹⁾³⁾ 苗艳龙¹⁾³⁾ 赵梓翔¹⁾³⁾ 何佳俊¹⁾³⁾ 叶慧群¹⁾³⁾ 方允樟^{1)3)‡}

1) (浙江师范大学物理与电子信息工程学院, 金华 321004)

2) (天水师范学院电子信息与电气工程学院, 天水 741001)

3) (浙江师范大学浙江省固态光电器件重点实验室, 金华 321004)

4) (浙江旅游职业学院, 杭州 311231)

(2022 年 7 月 26 日收到; 2022 年 9 月 3 日收到修改稿)

Fe 基合金因独特的磁性能和简单的生产工艺, 被视为是重要的“双绿色”节能材料. 本文对 $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ 非晶薄带进行不同物理时效处理 (张应力退火、回火), 采用动态应变测量技术, 结合纵向驱动巨磁阻抗效应和同步辐射 X 射线衍射研究应力感生磁各向异性和晶格各向异性的弛豫动力学, 探寻应力感生磁各向异性的物理起源. 结果表明: 退火过程薄带轴向应变在玻璃转变点以下表现为弹性, 在玻璃转变点以上主要表现为塑性; 感生磁各向异性和晶格各向异性表现出不同的弛豫动力学, 数值拟合预言前者通过无限次回火归一化的磁各向异性趋于 $\kappa = 0.144$ 的稳态值, 而后者仅通过有限次回火便可弛豫为 0; 构建纳米晶分布各向异性模型, 主张应力感生不可逆磁各向异性 K_d 是由纳米晶分布各向异性 $\Delta\delta$ 所致, 且满足 $K_d = k\Delta\delta$ 的函数关系. 本文认为应力感生磁各向异性起源于纳米晶晶格各向异性和分布各向异性的协同作用, 对理解应力感生磁各向异性机理具有指导意义.

关键词: 不可逆磁各向异性, 晶格各向异性, 分布各向异性, 同步辐射

PACS: 75.20.En, 75.30.Gw, 61.05.cp, 61.46.Df

DOI: 10.7498/aps.71.20221509

1 引言

Fe 基软磁非晶/纳米晶合金, 因其独特的磁性 (高磁导率和低矫顽力) 及简单的生产工艺^[1–3], 被业界视为是重要的“双绿色”节能材料^[4–7]. 然而, 以 Fe 基合金为基础材料制备的非晶/纳米晶软磁器件并未真正体现出材料应用的性能优势, 其中一重要原因是对应力敏感问题的认识尚存争议.

众多学者以应力感生磁各向异性 (stress-induced magnetic anisotropy, SMA) 机理研究为突破

口, 试图在理论和技术上致力于应力敏感问题的突破^[8–11]. 基于 Néel^[12] 在二元合金体系中提出原子对有序模型, Hofmann 和 Kronmüller^[13] 指出 Fe-Si 原子对的有序化是 SMA 的主要原因. Herzer^[14] 在滞弹性极化模型^[15] 基础上提出 $\alpha\text{-Fe}(\text{Si})$ 纳米晶残余内应力与其磁致伸缩的磁弹耦合是 SMA 的物理机制. Ohnuma 等^[16,17] 采用透射 X 射线衍射技术研究张应力退火 Fe 基合金的微观结构, 发现衍射矢量平行于张应力方向晶面衍射峰往低角度偏移, 垂直应力方向往高角度偏移, 指出晶格各向异性 (lattice plane anisotropy, LPA) 是 SMA 直接

^{*} 新疆维吾尔自治区重点专项研发项目 (批准号: KYZ04Y21100)、国家自然科学基金地区科学基金 (批准号: 12064037)、甘肃省科技计划 (批准号: 21JR1RE288)、新疆维吾尔自治区自然科学基金 (批准号: 2021D01B47) 和天水师范学院高级别预研项目 (批准号: GJB2021-09) 资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: zhjian8386@163.com

[‡] 通信作者. E-mail: fyz@zjnu.cn

的实验证据. 随后 Ohnuma 等^[18]再次发现 α -Fe(Si) 纳米晶的晶格应变是淬灭的弹性应变, 指出 Fe 基非晶合金晶化形成 α -Fe(Si) 纳米晶镶嵌于非晶基底的双相结构是晶格弹性应变能够得以保留的原因. 方允樟等^[19–21]采用同步辐射 X 射线原位测试技术动态观测研究退火过程 Fe 基合金薄带微观结构演变规律, 指出 LPA 是 SMA 的微观结构起源. 迄今为止, 多数学者认为磁弹耦合是 SMA 的物理机制^[3,22–24]. 然而, 磁弹耦合理论却面临诸多挑战, 如大磁致伸缩材料中感生小的磁各向异性, 相反小磁致伸缩或近零磁致伸缩材料中却感生了大的磁各向异性^[23,25,26]. 此外, 在磁弹耦合模型框架内, 晶格弹性应变贡献的磁各向异性可以通过回火的方式完全消除^[13,15,23]. 近期许校嘉等^[27]采用实验和数值拟合的方法研究了磁各向异性与回火次数的函数关系, 指出 SMA 不能通过回火的方式完全消除. 基于以上实验结果, 有必要重新审视 SMA 的物理起源, 理由是磁弹耦合模型仅考虑了 α -Fe(Si) 纳米晶的残余弹性应变, 而忽视了双相结构中非晶基底塑性应变对 SMA 的贡献.

因此, 本文借助动态的应变测量技术, 研究张应力退火过程合金薄带轴向宏观应变的演变规律及退火结束后残余宏观应变与外加张应力的函数关系. 利用纵向驱动巨磁阻抗 (longitudinally driven giant magneto-impedance, LDGMI) 效应和同步辐射 X 射线衍射 (synchrotron radiation x-ray diffraction, SRXRD) 研究 SMA 和 LPA 的弛豫动力学. 以自由退火 Fe 基合金纳米晶各向同性分布结构为参考, 构建纳米晶分布各向异性 (nanocrystalline grain distribution anisotropy, NGDA) 模型, 提出 α -Fe(Si) 纳米晶 LPA 和 NGDA 的协同作用是 SMA 的物理起源. 本研究对深入理解 SMA 机理具有重要的指导意义.

2 实验与方法

2.1 张应力退火及回火

单辊快淬制备组分为 $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ (Fe 基) 的非晶合金薄带, 取长 220 mm、宽 1 mm、厚 33 μm 的非晶带, 氮气氛围沿薄带轴向施加张应力退火 (升温速率为 51 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$, 退火时间为 30 min, 退火温度为 540 $^{\circ}\text{C}$, 退火张应力分别为 0, 53, 117, 170, 223, 270, 341, 410 MPa). 退火过程中利用

Supereyes B011 5MP 500X 数字摄像显微镜及 Supereyes 软件, 动态检测合金薄带轴向宏观应变的演变规律, 其应变按 (1) 式测量计算:

$$\varepsilon_x = [l_x(t) - l_x(0)]/l_x(0), \quad (1)$$

其中, $l_x(t)$ 为退火过程某一时刻 t 合金带的长度, $l_x(0)$ 为退火前合金带的初始长度. 文中规定 $t = \infty$ 为退火终了时刻 (卸载载荷后时刻), 则 $l_x(\infty)$ 为卸载载荷后合金带的长度, 由 (1) 式可测量合金带的轴向残余应变. 而横向残余应变按 (2) 式测量计算:

$$\varepsilon_y = [w_y(\infty) - w_y(0)]/w_y(0), \quad (2)$$

其中, $w_y(\infty)$ 为卸载载荷后合金薄带的宽度, $w_y(0)$ 为张应力退火前合金薄带的初始宽度. 此外, 在相同退火条件参数下对 170 MPa 张应力退火合金薄带实施多次等温回火处理, 回火次数 n 分别为 0, 1, 2, 3, 4, 5, 15, 24, 48 和 140.

2.2 巨磁阻抗测量

直径 $\varphi = 0.1 \text{ mm}$ 的铜漆包线绕制内径 1.5 mm、长 10 mm 的驱动线圈, 将长度 15 mm 的 Fe 基合金薄带插入线圈组成等效阻抗元件, 置于直径 $\phi = 200 \text{ mm}$ 的 Helmholtz 线圈所提供的直流匀场区, 测量过程使薄带轴向始终与地磁场保持垂直. 在幅值为 10 mA 的正弦激励信号和外加直流磁场下, 采用 HP4294A 型阻抗分析仪测量张应力退火及回火合金薄带的 LDGMI 效应. 利用求半高宽的方法测量横向磁各向异性场, 其测量关系式为

$$H_k = \frac{1}{2}(H_+ - H_-), \quad (3)$$

其中, H_k 为横向磁各向异性场, H_+ 和 H_- 分别为 LDGMI 曲线最大值一半处所对应的正向和反向外加磁场. 由 (3) 式和 $K = \frac{1}{2}H_k J_s$ 可计算合金带的磁各向异性, 其中 $J_s = 1.24 \text{ T}$ ^[13] 为 Fe 基纳米晶合金的饱和磁极化强度.

2.3 同步辐射 X 射线衍射

采用自行设计并搭建于上海同步辐射光源的专用测试装置^[21], 利用 BL13W 线站硬 X 射线衍射技术拍摄张应力退火及回火 Fe 基合金带的平面衍射图, 其中硬 X 射线能量 $E = 30.0 \text{ keV}$, 波长 $\lambda = 0.0414 \text{ nm}$, 分辨率为 2.5×10^{-4} . 随后利用 FIT2D 软件将平面衍射图转换为衍射强度 I 关于 2θ 角的 SRXRD 谱, 测量记录各晶面衍射峰半高宽 B 和峰

位角 2θ , 以标样硅的衍射半高宽作为 BL13W 线站的仪器展宽, 经扣除后再利用布拉格公式和谢乐公式:

$$2d \sin \theta = \lambda, \quad (4)$$

$$D = 0.89\lambda / B \cos \theta, \quad (5)$$

计算晶面间距 d 和晶粒尺寸 D . 选自由退火 Fe 基纳米晶合金 SRXRD 谱的 (110) 峰, 利用分峰拟合和 Pseudo-Voigt 方法 [28,29] 按 (6) 式计算纳米晶晶化分数:

$$v_{cr} = [I_{cr} / (I_{cr} + I_{am})] \times 100\%, \quad (6)$$

其中, I_{cr} 和 I_{am} 分别为晶化峰和非晶峰的积分强度.

3 结果与讨论

3.1 宏观应变及巨磁阻抗效应

文中规定 Fe 基合金薄带长度方向为轴向, 宽度方向为横向, 分别用 x, y 表示. 张应力退火引起合金薄带轴向伸长同时横向收缩, 由于受测量精度限制, 厚度方向未观测到明显的形变发生, 因此本文仅考虑 x 和 y 方向的形变进行讨论. 图 1(a) 为 170 MPa 张应力退火过程合金薄带轴向宏观应变曲线, 可见升温前期 (b—c) 应变缓慢增大到 0.0045; 然后从 633 s 开始偏离线性急剧增大, 直至 1733 s 时达到最大值 0.047 (c—d). b—c 和 c—d 两部分应变表现出明显的差异, 可能与非晶基底的玻璃化转变有关, 图 1(a) 中插图 (圆圈标注区放大图) 定义应变开始偏离线性时的温度为玻璃转变点 ($T_g = 426^\circ\text{C}$), 在玻璃转变点以下应变主要是刚性的弹性应变, 而在玻璃转变点以上主要是非均匀的塑性应变. 保温中后期 (d—e) 应变保持 0.047 的稳定值

直至保温结束, 已有研究表明 [30], Fe 基合金在保温中后期形成纳米晶镶嵌于非晶基底的双相结构, 纳米晶的形成减少了非晶流变单元 [31] 的自由体积, 从而导致非晶基底塑性应变硬化, 这可能是应变保持恒定的原因. 降温阶段 (e—f) 应变以先快后慢的速率减小并趋于 0.044 的稳定值. 卸载阶段 (f—g) 应变从 0.044 线性减小至 0.041, 即卸载载荷引起 6.82% 的应变以弹性的形式恢复, 表明张应力退火过程薄带轴向应变主要是非均匀的塑性应变. 图 1(b) 为退火过程薄带轴向应变速率曲线, 其中尖锐的正峰表示合金薄带轴向应变速率在晶化温度附近出现极大值. 弥散的负峰表示降温初期热膨冷缩效应使薄带轴向应变减小, 因此导致应变速率变为负值且形成弥散的负峰. 卸载阶段线性的应变速率表示弹性应变的恢复过程.

图 2 为张应力退火 Fe 基合金薄带的残余宏观应变与应力关系曲线, 可见残余应变以非线性的规律随退火张应力变化. 如图 2(a) 和图 2(b) 所示, 当张应力小于 223 MPa 时, 轴向应变和横向应变随张应力线性变化. 然而, 当张应力大于 223 MPa 时却失去了线性变化特征. 对图 2 实施数值拟合得函数表达式为

$$\varepsilon_x = \varepsilon_{x0} e^{\sigma / \sigma_c(\varepsilon)} - \varepsilon_{x0}, \quad (7)$$

$$\varepsilon_y = -\varepsilon_{y0} e^{\sigma / \sigma_c(\varepsilon)} + \varepsilon_{y0}, \quad (8)$$

式中 $\sigma_c(\varepsilon) = 800 \text{ MPa}$, $\varepsilon_{x0} = 0.215$ 和 $\varepsilon_{y0} = 0.146$ 为拟合常数. $\sigma_c(\varepsilon)$ 具有应力单位量纲, 文中将其定义为与材料某种力学性能相关的应力常数, 反映残余宏观应变随应力变化的快慢程度, 其值越大则残余应变变化越慢, 相反则变化越快.

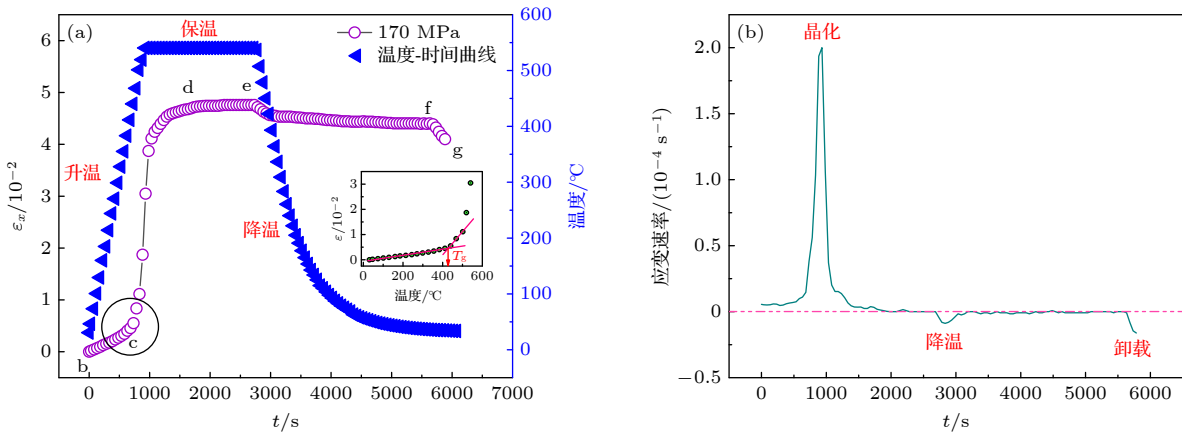


图 1 张应力退火过程 Fe 基合金应变及应变速率曲线 (a) 应变; (b) 应变速率

Fig. 1. Strain and strain rates curves of Fe-based alloy ribbons during tensile stress annealing: (a) Strains; (b) strain rates.

图 3(a) 为张应力退火 Fe 基合金薄带的 LDGMI 效应, 可见随退火张应力的增大, LDGMI 曲线由尖锐的“单峰”状转变为顶部平坦的“平原”状. 最大巨磁阻抗比以先快后慢的速率减小, 同时 LDGMI 曲线逐渐宽化且出现平顶, 表明张应力退火诱导感生的磁各向异性随退火张应力的增大而增大. 图 3(b) 为退火诱导感生的磁各向异性 K 与退火张应力 σ 的函数关系, 可见在小应力下 K 以线性规律变化, 然而在大应力退火下 K 表现出偏离线性的变化特征. 已有研究表明^[18,19], 张应力退火 Fe 基合金薄带形成 α -Fe(Si) 纳米晶镶嵌于非晶基底的双相结构, 这种结构使得 α -Fe(Si) 纳米晶晶格弹性应变得以保留. 较普遍的观点认为, α -Fe(Si) 纳米晶的 LPA 是张应力退火诱导感生磁各向异性的微观结构起源^[16,20]. 为了解 SMA 和 LPA 间的相关性, 本文分别对 SMA 和 LPA 的弛豫动力学行为进行讨论.

3.2 磁各向异性和晶格各向异性的弛豫行为

SMA 可调制优化材料的软磁性能以满足不同应用要求, 较普遍的观点认为, 张应力退火诱导感生的磁各向异性是由 α -Fe(Si) 纳米晶的晶格弹性应变所致, 这种弹性应变可通过回火的方式消除以达到消除 SMA 的目的^[13,14,17]. 图 4 为 170 MPa 张应力退火 Fe 基合金薄带 SMA 的弛豫动力学曲线, 文中定义归一化的磁各向异性为 $\kappa = H_k(n)/H_k(0)$, $H_k(n)$ 为经 n 次回火处理后薄带的磁各向异性, $H_k(0)$ 为张应力退火感生的磁各向异性. 采用 logistic 拟合得 SMA 的弛豫动力学遵循如下规律:

$$\kappa = \kappa_0 + [(1 + \kappa_0)/(1 + n/\kappa_c)^m], \quad (9)$$

式中 κ_0 , κ_c 和 m 为拟合常数. 由 (9) 式可知, 当回火次数 $n \rightarrow \infty$ 时, $\kappa \rightarrow \kappa_0 = 0.144$, 表明张应力退火诱导感生的磁各向异性通过回火的方式无法完全消除, 仍然有 14.4% 的磁各向异性永久残留.

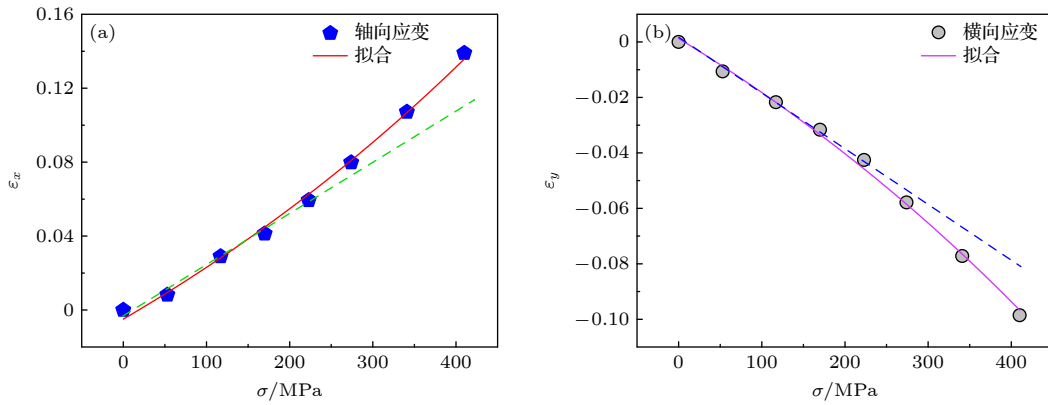


图 2 张应力退火 Fe 基合金残余应变与应力关系曲线 (a) 轴向; (b) 横向

Fig. 2. Residual macro-strains of Fe-based alloy ribbons as a function of annealing tensile stress: (a) Axial direction; (b) transverse direction.

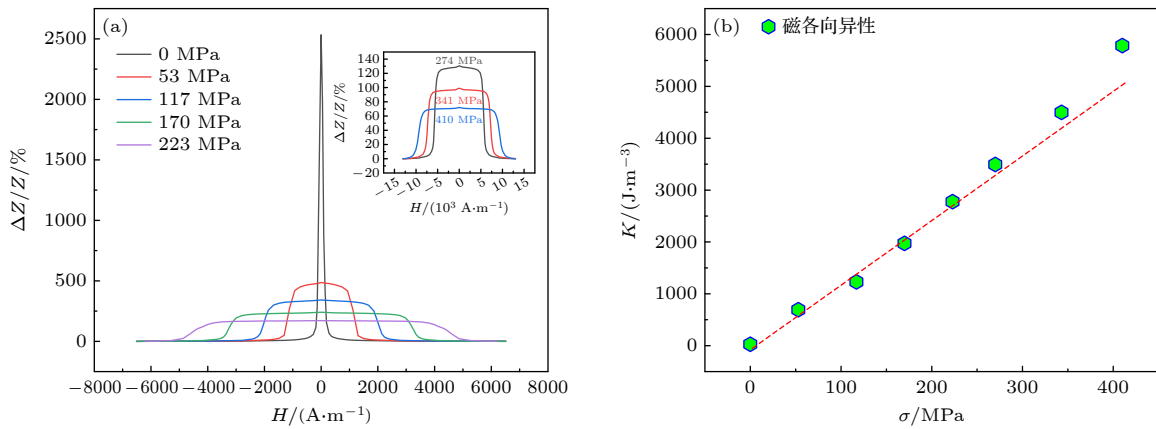


图 3 张应力退火 Fe 基合金薄带 (a) LDGMI 效应; (b) 磁各向异性与退火张应力关系

Fig. 3. Fe-based alloy ribbons annealed with different tensile stress: (a) LDGMI effect; (b) the magnetic anisotropy as a function of annealing tensile stress.

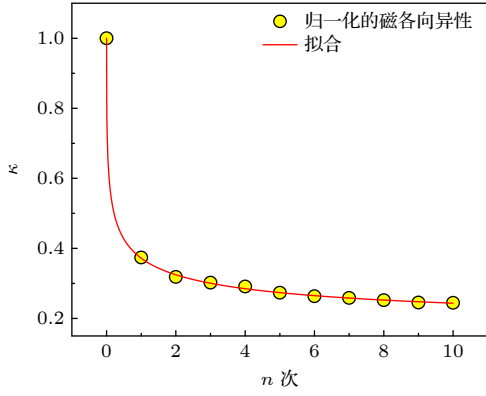


图4 Fe基合金薄带SMA的弛豫动力学曲线

Fig. 4. Relaxation dynamics curve of SMA in Fe-based alloy ribbons.

材料磁各向异性的弛豫行为与其微观结构的弛豫行为密切相关. 为阐明两者间的相关性, 本文对自由退火、张应力退火及多次回火处理 Fe 基合金薄带实施 SRXRD 衍射实验, 利用 FIT2D 软件对衍射矢量分别平行于带轴向和横向的平面谱进行小角度积分, 获得如图 5(a) 和图 5(b) 所示具有不同物理时效 (退火、回火) 作用的 SRXRD 谱. 可见张应力退火使 α -Fe(Si) 纳米晶 (200) 晶面衍射峰在平行带轴向往低角度偏移, 相反在平行带横向往高角度偏移, 表明 α -Fe(Si) 纳米晶 (200) 晶面间距沿带轴向增大, 同时沿带横向减小. 经多次回火处理发现 (200) 晶面衍射峰逐渐往自由退火 (200) 晶面衍射峰位偏移, 且当回火次数 $n = 140$ 时, 轴向和横向 (200) 晶面衍射峰基本与自由退火重合. 图 6 为 Fe 基合金纳米晶 LPA 的弛豫动力学曲线, 定义归一化的 LPA 为 $\gamma = \Delta d(n)/\Delta d(0)$, 其中 $\Delta d(n) = d_x(n) - d_y(n)$ 为 n 次回火处理纳米晶的 LPA, $\Delta d(0) = d_x(0) - d_y(0)$ 为张应力退火 ($n = 0$) 纳米晶的 LPA, d_x 和 d_y 为衍射矢量分别平行于轴向和横向时 (200) 晶面间距. 对归一化的 LPA 实施 logistic 数值拟合, 发现 LPA 的弛豫动力学遵循如下规律:

$$\gamma = \gamma_0 + \left[(1 + \gamma_0) / \left(1 + \frac{n}{\gamma_c} \right)^p \right], \quad (10)$$

式中 γ_0 , γ_c 和 p 为拟合常数, 当 $n \rightarrow \infty$ 时, $\gamma \rightarrow \gamma_0 \approx 0$, 表明 LPA 可通过回火的方式完全消除, 即 α -Fe(Si) 纳米晶的 LPA 由各向异性变为各向同性. 结合 SMA 和 LPA 的弛豫动力学, 发现 SMA 由两部分磁各向异性组成, 其中一部分可通过回火的方式消除 (可逆), 另一部分不能通过回火的方式消

除 (不可逆). 研究表明, Fe 基合金应力感生可逆的磁各向异性起源于 α -Fe(Si) 纳米晶的 LPA^[27]. 张应力退火引起合金薄带主要发生不可逆的塑性形变, 它可能会导致镶嵌于非晶基底的纳米晶在空间的分布出现各向异性.

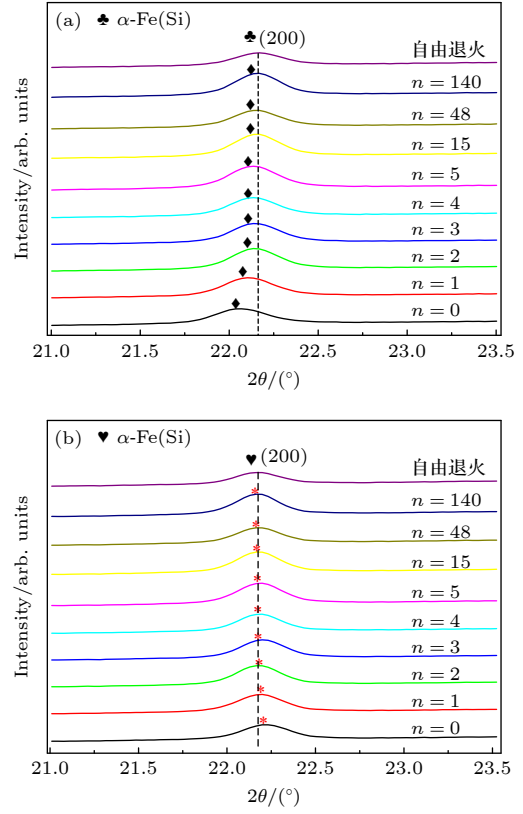


图5 张应力退火及回火 Fe 基合金薄带 XRD 谱 (a) 轴向; (b) 横向

Fig. 5. The XRD patterns of Fe-based alloy ribbons annealed with tensile stress and isothermal tempered treatment: (a) The diffraction vector is parallels to ribbon's axial direction; (b) the diffraction vector is parallels to ribbon's transverse direction.

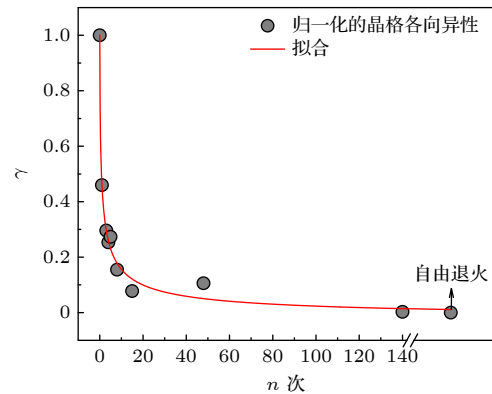


图6 Fe基合金LPA弛豫动力学曲线

Fig. 6. Relaxation dynamics curve of LPA in Fe-based alloy ribbons.

3.3 分布各向异性模型

本文以自由退火 Fe 基合金纳米晶各向同性分布结构为参考模型, 假设直径为 D 的纳米晶以平均间隙 δ_0 均匀分布于非晶基底, 晶化分数为 v_{cr} . 任选一晶粒为参考点, 则与该晶粒相邻为 $\delta_0 + D$ 的空间范围内纳米晶的晶化分数可近似表示为

$$v_{cr} \approx D^3/(\delta_0 + D)^3, \quad (11)$$

则晶粒平均间隙 δ_0 为

$$\delta_0 \approx \left[(1/v_{cr})^{1/3} - 1 \right] D, \quad (12)$$

可见晶粒平均间隙 δ_0 与晶化分数 v_{cr} 和晶粒尺寸 D 相关. 图 7(a) 为自由退火 Fe 基合金薄带的 SRXRD 谱, 对其实施峰分析及拟合处理, 扣除仪器展宽后结合谢乐公式计算 α -Fe(Si) 纳米晶的平均直径. 取 SRXRD 谱的 (110) 峰, 采用如图 7(b) 所示的分峰拟合和 Pseudo-Voigt 方法计算纳米晶晶化分数, 相关结构参数如表 1 所列. 将 α -Fe(Si) 纳米晶结构参数代入 (12) 式得自由退火 Fe 基合金纳米晶平均间隙 $\delta_0 \approx 2.75$ nm.

现将张应力退火对纳米晶分布状态的影响视为是在各向同性均匀分布结构的基础上 (自由退火), 张应力使纳米晶晶间距离 (平均间隙) 在平行应力方向 (带轴向) 增大, 同时在垂直应力方向 (带横向) 减小. 结合宏观残余应变测量, 忽略张应力退火对纳米晶形状和晶化分数的影响, 则张应力退火纳米晶在带轴向和横向的平均间隙分别表示为

$$\delta_x \approx (1 + \varepsilon_x) \delta_0, \quad (13)$$

$$\delta_y \approx (1 + \varepsilon_y) \delta_0, \quad (14)$$

则 NGDA (带轴向和横向平均晶粒间隙差) 可定义为

$$\Delta\delta = \delta_x - \delta_y = (\delta_0 + \delta_0\varepsilon_x) - (\delta_0 + \delta_0\varepsilon_y), \quad (15)$$

将 (7) 和 (8) 式代入 (15) 式得

$$\begin{aligned} \Delta\delta = & [\delta_0 + (\delta_0\varepsilon_{x0}e^{\sigma/\sigma_c(\varepsilon)} - \delta_0\varepsilon_{x0})] \\ & - [\delta_0 - (\delta_0\varepsilon_{y0}e^{\sigma/\sigma_c(\varepsilon)} - \delta_0\varepsilon_{y0})], \end{aligned} \quad (16)$$

式中右边第一部分圆括号表示晶粒间隙在带轴向

的增加量, 而第二部分圆括号表示晶粒间隙在带横向的减小量. (16) 式为 NGDA 的数学表达式, 描述 NGDA 和退火应力间的函数关系, 其中 $\sigma = 0$ MPa 时, $\Delta\delta = 0$ nm 表示自由退火纳米晶的各向同性分布; $\sigma > 0$ MPa 时, $\Delta\delta > 0$ nm 表示张应力退火纳米晶的各向异性分布; $\sigma < 0$ MPa 时, $\Delta\delta < 0$ nm 表示压应力作用所导致纳米晶的各向异性分布. 将 (16) 式变形为

$$\sigma = \sigma_c(\varepsilon) \ln \left[\frac{\Delta\delta}{\delta_0(\varepsilon_{x0} + \varepsilon_{y0})} + 1 \right]. \quad (17)$$

则该式是 (16) 式的反函数形式.

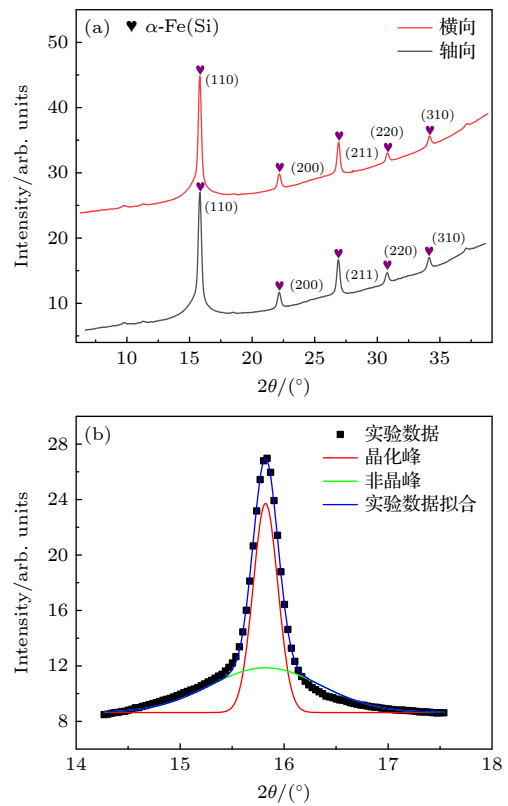


图 7 自由退火 Fe 基合金薄带 SRXRD 图谱 (a) 全谱 (3° — 38°); (b) (110) 分峰拟合

Fig. 7. The SRXRD patterns of Fe-based alloy ribbons annealed without tensile stress: (a) The full spectrum diagram of SRXRD (3° — 38°); (b) the multi-peaks fitting of (110) diffraction peak.

表 1 自由退火 Fe 基合金薄带的结构参数

Table 1. Structural parameters of Fe-based alloy ribbons annealed without tensile stress.

衍射矢量	晶粒尺寸/nm					晶化分数	晶粒间隙
	$D_{(110)}$	$D_{(200)}$	$D_{(211)}$	$D_{(220)}$	$D_{(310)}$	$V_{cr}/\%$	δ_0/nm
轴向	9.38	10.87	11.27	9.45	12.94	51.04	2.76
横向	9.30	11.77	12.03	10.40	12.66	51.27	2.74
平均值			11.00			51.16	2.75

表 2 张应力退火 Fe 基合金薄带结构和磁学参数

Table 2. Structural and magnetic parameters of Fe-based alloy ribbons annealed with different tensile stress.

张应力 σ/MPa	分布各向异性 $\Delta\delta/\text{nm}$	磁各向异性			
		$H_k/(\text{A}\cdot\text{m}^{-1})$	$K/(\text{J}\cdot\text{m}^{-3})$	$K_d/(\text{J}\cdot\text{m}^{-3})$	$K_e/(\text{J}\cdot\text{m}^{-3})$
0	0	47.51	27.25	0	—
53	0.05	1181.73	692.14	99.67	592.47
117	0.14	2001.46	1229.06	176.98	1052.08
170	0.20	3194.23	1972.59	284.05	1688.54
223	0.28	4540.54	2777.20	399.92	2377.28
270	0.38	5645.52	3495.28	503.32	2991.96
343	0.51	7335.80	4498.91	647.84	3851.07
410	0.65	9380.54	5786.89	833.31	4953.58

表 2 为张应力退火 Fe 基合金薄带的结构和磁学参数, 其中 H_k 为张应力退火感生的磁各向异性场 (从图 3(a) 测量获得), K 为 SMA (由 (3) 式计算获得), K_d 为不可逆的 SMA, K_e 为可逆的 SMA. 由 SMA 的弛豫动力学知, SMA 中包含可逆和不可逆的 SMA, 其中不可逆的 SMA 占 14.4%. 因此, 本文将不同张应力退火诱导感生的磁各向异性 K 分别乘以系数 0.144 便计算获得不可逆的 SMA, 将其与张应力的关系绘成如图 8 所示的曲线, 实施非线性指数拟合得函数表达式为

$$K_d = K_0 e^{\sigma/\sigma_c(K)} - K_0, \quad (18)$$

式中 $K_0 = 1235.70 \text{ J/m}^3$, $\sigma_c(K) = 800 \text{ MPa}$ 为拟合常数. 将 (17) 式代入 (18) 式并变形得

$$K_d = K_0 \left\{ \left[\frac{\Delta\delta}{\delta_0(\varepsilon_{x0} + \varepsilon_{y0})} + 1 \right]^{\frac{\sigma_c(\varepsilon)}{\sigma_c(K)}} - 1 \right\}, \quad (19)$$

再将拟合常数 $\sigma_c(\varepsilon) = \sigma_c(K) = 800 \text{ MPa}$ 代入上式, 并令 $k = \frac{K_0}{\delta_0(\varepsilon_{x0} + \varepsilon_{y0})}$, 则 (19) 式简化为

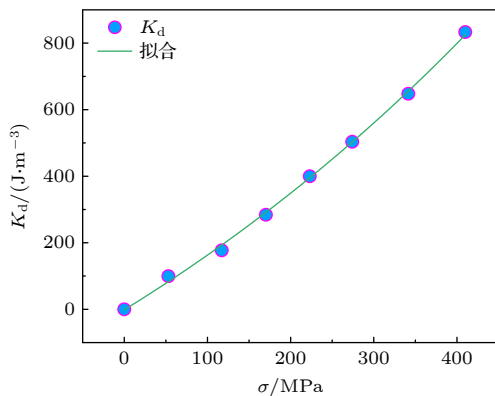
$$K_d = k\Delta\delta. \quad (20)$$


图 8 NGDA 诱导感生磁各向异性与应力关系曲线

Fig. 8. Dependence of the magnetic anisotropy induced by NGDA on tensile stress in Fe-based alloy ribbons.

可见 K_d 与 $\Delta\delta$ 呈线性正相关, k 为由 Fe 基合金结构参数、力学参数和磁学参数共同决定的耦合常数, 其具体的物理含义尚需进一步深入研究. 由 (20) 式知, 当 $\Delta\delta > 0$ 时, $K_d > 0$ 表明张应力退火感生易磁化方向趋于带横向的不可逆磁各向异性; 当 $\Delta\delta < 0$ 时, $K_d < 0$ 表明压应力感生易磁化方向趋于带轴向的不可逆磁各向异性. 因此, 张应力退火 Fe 基合金诱导感生不可逆的 SMA 可归因于 NGDA, 这为理解 SMA 机理提出了新见解.

综上所述, 本文借助动态的应变测量技术, 检测张应力退火 Fe 基合金薄带的宏观应变, 讨论张应力退火过程宏观应变的演变规律及残余应变与退火张应力间的函数关系. 随后从宏观和微观两个层面分别研究了 SMA 和 LPA 的弛豫动力学, 实验结果和数值拟合预测发现 SMA 弛豫达到 $\kappa = 0.144$ 的稳态值, 而 LPA 弛豫达到 $\gamma \approx 0$ 的稳态值, 表明 SMA 由可逆的磁各向异性和不可逆的磁各向异性组成. 此外, 结合张应力退火合金薄带残余应变与张应力间的函数关系, 以自由退火纳米晶各向同性分布结构为参考模型, 构建张应力退火 Fe 基合金 NGDA 模型. 基于 SMA 的弛豫动力学和数值拟合, 建立函数描述 NGDA 和不可逆的 SMA 间的依赖性. 本文认为张应力退火感生可逆的磁各向异性归因于纳米晶的 LPA, 而感生不可逆磁各向异性归因于 NGDA. 因此, SMA 可表示为

$$K = K_e + K_d. \quad (21)$$

表明纳米晶 LPA 和 NGDA 的协同作用是张应力退火诱导感生磁各向异性物理起源.

4 结 论

基于动态的应变测量、LDGMI 效应和同步辐

射 XRD 衍射, 探讨张应力退火 Fe 基合金 SMA 的物理起源. 以自由退火纳米晶各向同性分布结构为参考模型, 构建张应力退火 Fe 基合金 NGDA 模型, 结合 SMA 和 LPA 弛豫动力学及数值拟合建立不可逆 SMA 与 NGDA 间的函数关系, 为理解 SMA 机理提出了新的见解. 结果如下:

1) 张应力退火过程, 宏观应变在玻璃转变点以下主要表现为弹性应变, 在玻璃转变点以上主要表现为非均匀的塑性应变, 而纳米晶的析出使非晶基底塑性应变硬化, 导致应变速率减缓并趋于饱和.

2) SMA 和 LPA 表现出不同的弛豫动力学, 前者可通过无限次回火达到 $\kappa = 0.144$ 稳态值, 而后者仅通过有限次回火便达到 $\gamma \approx 0$ 的稳态值, 表明 SMA 由可逆的磁各向异性和不可逆的磁各向异性组成.

3) 构建 NGDA 模型, 应力感生不可逆磁各向异性与 NGDA 呈线性正相关, 且满足 $K_d = k\Delta\delta$ 的函数关系, 主张应力退火感生不可逆磁各向异性起源于 NGDA.

本研究认为 LPA 和 NGDA 的协同作用是 SMA 的物理起源, NGDA 模型的建立为不可逆的 SMA 提供了解释, 这对深入理解 SMA 的机理具有重要的指导意义.

参考文献

- [1] Yao K F, Shi L X, Chen S Q, Shao Y, Chen N, Jia J L 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 016101 (in Chinese) [姚可夫, 施凌翔, 陈双琴, 邵洋, 陈娜, 贾蓓丽 2018 物理学报 **67** 016101]
- [2] Li Y M, Jia X J, Zhang W, Zhang Y, Xie G Q, Qiu Z Y, Luan J H, Jiao Z B 2021 *J. Mater. Sci. Technol.* **65** 171
- [3] Corte-Leon P, Zhukova V, Blanco J M, González-Legarreta L, Ipatov M, Zhukov A 2020 *J. Magn. Magn. Mater.* **510** 166939
- [4] Sai Ram B, Paul A K, Kulkarni S V 2021 *J. Magn. Magn. Mater.* **537** 16820
- [5] Li F C, Liu T, Zhang J Y, Shuang S, Wang Q, Wang A D, Wang J G, Yang Y 2019 *Mater. Today Adv.* **4** 100027
- [6] Ma H J, Wei W Q, Bao W K, Shen X B, Wang C C, Wang W M 2020 *Rare Metal Mat. Eng.* **49** 2904 (in Chinese) [马海健, 魏文庆, 鲍文科, 神祥博, 王长春, 王伟民 2020 稀有金属材料与工程 **49** 2904]
- [7] Liu T, Wang A D, Zhao C L, Yue S Q, Wang X M, Liu C T 2019 *Mater. Res. Bull.* **112** 323
- [8] Lukshina V A, Dmitrieva N V, Cerdeira M A, Potapov A P 2012 *J. Alloys Compd.* **536** 374
- [9] Correa A M, Bohn F 2018 *J. Magn. Magn. Mater.* **453** 30
- [10] Varga L K 2020 *J. Magn. Magn. Mater.* **500** 166327
- [11] Fang Y Z, Zheng J J, Wu F M, Xu Q M, Zhang J Q, Ye H Q, Zheng J L, Li T Y 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 092508
- [12] Néel L 1954 *J. Phys.* **4** 225
- [13] Hofmann B, Kronmüller H 1996 *J. Magn. Magn. Mater.* **152** 91
- [14] Herzer G 1996 *J. Magn. Magn. Mater.* **157-158** 133
- [15] Nielsen O V, Nielsen H J V 1980 *Solid State Commun.* **35** 281
- [16] Ohnuma M, Hono K, Yanai T, Fukunaga H, Yoshizawa Y 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 2859
- [17] Ohnuma M, Hono K, Yanai T, Nakano H, Fukunaga H, Yoshizawa Y 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 152513
- [18] Ohnuma M, Yanai T, Hono K, Nakano M, Fukunaga H, Yoshizawa Y, Herzer G 2010 *J. Appl. Phys.* **108** 093927
- [19] Nutor R K, Xu X J, Fan X Z, He X W, Fang Y Z 2018 *Chinese J. Phys.* **56** 180
- [20] Nutor R K, Xu X J, Fan X Z, He X W, Lu X A, Fang Y Z 2019 *J. Magn. Magn. Mater.* **471** 544
- [21] Nutor R K, Fan X Z, He X W, Xu X J, Lu X A, Jiang J Z, Fang Y Z 2019 *J. Alloys Compd.* **774** 1243
- [22] Kurl'yanskaya G V, Lukshina V A, Larrañaga A, Orue I, Zaharova A A, Shishkin D A 2013 *J. Alloys Compd.* **566** 31
- [23] Ohnuma M, Herzer G, Kozikowski P, Polak C, Budinsky V, Koppoju S 2012 *Acta. Mater.* **60** 1278
- [24] Leary A M, Keylin V, Ohodnicki P R, McHenry M E 2015 *J. Appl. Phys.* **117** 17A338
- [25] Herzer G, Schulz R *US Patent* 6 254 695 B1 [2001-06-03]
- [26] Hilzinger H R 1981 *Proceedings of the 4th International Conference on Rapidly Quenched Metals* Sendai, Japan, August 24-28, 1981 p701
- [27] Xu X J, Fang Z, Lu X A, Ye H Q, Fan X Z, Zheng J J, He X W, Guo C Y, Li W Z, Fang Y Z 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 137501 (in Chinese) [许校嘉, 方峥, 陆轩昂, 叶慧群, 范晓珍, 郑金菊, 何兴伟, 郭春羽, 李文忠, 方允樟 2019 物理学报 **68** 137501]
- [28] Wu C, Chen H P, Lv H P, Yan M 2016 *J. Alloys Compd.* **673** 278
- [29] Allia P, Baricco M, Tiberto P, Vinai F 1993 *J. Appl. Phys.* **74** 3137
- [30] Fan X Z, He X W, Nutor R K, Pan R M, Zheng J J, Ye H Q, Wu F M, Jiang J Z, Fang Y Z 2019 *J. Magn. Magn. Mater.* **469** 349
- [31] Wang W H 2013 *Prog. Phys.* **33** 177 (in Chinese) [汪卫华 2013 物理学进展 **33** 177]

Mechanism of stress induced irreversible magnetic anisotropy in Fe-based alloy ribbons*

Zhang Jian-Qiang^{1)2)3)†} Qin Yan-Jun¹⁾³⁾ Fang Zheng⁴⁾ Fan Xiao-Zhen¹⁾³⁾
 Yang Hui-Ya¹⁾³⁾ Kuang Fu-Li¹⁾³⁾ Zhai Yao¹⁾³⁾ Miao Yan-Long¹⁾³⁾
 Zhao Zi-Xiang¹⁾³⁾ He Jia-Jun¹⁾³⁾ Ye Hui-Qun¹⁾³⁾ Fang Yun-Zhang^{1)3)‡}

1) (*College of Physics, Electronic and Information Engineering, Zhejiang Normal University, Jinhua 321004, China*)

2) (*College of Electronic Information and Electrical Engineering, Tianshui Normal University, Tianshui 741001, China*)

3) (*Key Laboratory of Solid State Optoelectronic Devices of Zhejiang Povince, Zhejiang Normal University, Jinhua 321004, China*)

4) (*Tourism College of Zhejiang, Hangzhou 311231, China*)

(Received 26 July 2022; revised manuscript received 3 September 2022)

Abstract

Fe-based amorphous and nanocrystalline soft magnetic alloys are regarded as the significant dual-green energy-saving materials because of their superior magnetic properties and straightforward fabrication procedure. As such, they have attracted much attention in the fields of the electronic information and electrical power. In this work, $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ (%) amorphous alloy ribbon is subjected to various physical ageing treatments in nitrogen atmosphere. These treatments include annealing at 540 °C for 30 min under different tensile stresses and isothermal tempering without tensile stress for several cycles. The origin of stress-induced magnetic anisotropy is investigated through using dynamic strain analysis, the longitudinally driven giant magnet-impedance effect, and synchrotron radiation X-ray diffraction. In the process of tensile stress annealing, it is found that the axial strain of ribbon is elastic strain when annealing temperature is below the glass transition point, and plastic strain when annealing temperature is above the glass transition point; the precipitation of nanocrystalline phase has a pinning effect on amorphous matrix, which slows down the strain rates and makes the tend stable. Additionally, isothermal tempering studies show that the stress-induced magnetic anisotropy and lattice plane anisotropy have different relaxation patterns. It is found through numerical fitting that the stress-induced magnetic anisotropy can reach a stable value of 0.144 by infinite tempering, whereas the lattice plane anisotropy can only relax to zero by finite tempering. A model of nanocrystalline grain distribution anisotropy is developed to re-examine the origin of stress-induced magnetic anisotropy. It supports a viewpoint that the nanocrystalline grain distribution anisotropy $\Delta\delta$ is responsible for the stress-induced irreversible magnetic anisotropy K_d , and that their relationship can be described as a following function: $K_d = k\Delta\delta$. Therefore, it is proposed that the stress-induced anisotropy originates from a synergistic interaction between the lattice plane anisotropy and the nanocrystalline grain distribution anisotropy in Fe-based alloy ribbon. This work has important implications for understanding the mechanism of the stress-induced magnetic anisotropy.

Keywords: irreversible magnetic anisotropy, lattice plane anisotropy, nanocrystalline grain distribution anisotropy, synchrotron radiation

PACS: 75.20.En, 75.30.Gw, 61.05.cp, 61.46.Df

DOI: 10.7498/aps.71.20221509

* Project supported by the Key Specialized Research and Development Program of Xinjiang Uygur Autonomous Region, China (Grant No. KYZ04Y21100), the Fund for Less Developed Regions of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12064037), the Planning Program on Science and Technology of Gansu Province, China (Grant No. 21JR1RE288), the Natural Science Foundation of Xinjiang Uygur Autonomous Region, China (Grant No. 2021D01B47), and the High level Pre-research program of Tianshui Normal University, China (Grant No. GJB2021-09).

† Corresponding author. E-mail: zhjian8386@163.com

‡ Corresponding author. E-mail: fyx@zjnu.cn

Fe基合金应力感生不可逆磁各向异性机理

张建强 秦彦军 方峥 范晓珍 杨慧雅 邱富丽 翟耀 苗艳龙 赵梓翔 何佳俊 叶慧群 方允樟

Mechanism of stress induced irreversible magnetic anisotropy in Fe-based alloy ribbons

Zhang Jian-Qiang Qin Yan-Jun Fang Zheng Fan Xiao-Zhen Yang Hui-Ya Kuang Fu-Li Zhai Yao
Miao Yan-Long Zhao Zi-Xiang He Jia-Jun Ye Hui-Qun Fang Yun-Zhang

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 247501 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20221509

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221509>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

铁基合金薄带多次等温回火特性的研究

The characteristics of multiple isothermal tempered Fe-based alloy ribbons

物理学报. 2019, 68(13): 137501 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190017>

自旋轨道矩调控的垂直磁各向异性四态存储器结构

Demonstration of four-state memory structure with perpendicular magnetic anisotropy by spin-orbit torque

物理学报. 2018, 67(11): 117501 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180216>

具有不同交换偏置方向的外延FeGa/IrMn双层膜的磁各向异性与磁化翻转

Magnetic anisotropy and reversal in epitaxial FeGa/IrMn bilayers with different orientations of exchange bias

物理学报. 2022, 71(12): 127501 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220166>

具有大磁晶各向异性性能的单层BaPb的室温量子反常霍尔效应

Room-temperature quantum anomalous Hall effect in monolayer BaPb with large magnetocrystalline anisotropy energies

物理学报. 2021, 70(15): 157502 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210014>

HoCoSi快淬带的磁性和各向异性磁热效应

Magnetic and anisotropic magnetocaloric effects of HoCoSi fast quenching ribbons

物理学报. 2022, 71(16): 167501 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220683>

基于工艺偏差的电压调控磁各向异性磁隧道结电学模型及其在读写电路中的应用

Process deviation based electrical model of voltage controlled magnetic anisotropy magnetic tunnel junction and its application in read/write circuits

物理学报. 2020, 69(19): 198502 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200228>