

# Effect of Annealing Temperature on Magnetic Properties of Fe-Based Amorphous Ribbons

Xiaojia Xu<sup>1</sup>, Xuanang Lu<sup>1</sup>, Zheng Fang<sup>2</sup>, Chunyu Guo<sup>1</sup>, Xiaozhen Fan<sup>1</sup>, Xingwei He<sup>1</sup>, Yunzhang Fang<sup>1,3\*</sup>, Xiaohong Yang<sup>4</sup>

<sup>1</sup>College of Physics, Electronic and Information Engineering, Zhejiang Normal University, Jinhua Zhejiang

<sup>2</sup>Tourism College of Zhejiang China, Hangzhou Zhejiang

<sup>3</sup>College of Science and Technology, Xinjiang University, Akesu Xinjiang

<sup>4</sup>Jinhua Polytechnic, Jinhua Zhejiang

Email: xxj1@icloud.com, \*fyz@zjnu.cn

Received: Mar. 25<sup>th</sup>, 2019; accepted: Apr. 11<sup>th</sup>, 2019; published: Apr. 18<sup>th</sup>, 2019

## Abstract

In this paper, Fe-based amorphous ribbons were annealed at different temperatures. The macro-strain, microstructure and magnetic properties of the ribbons annealed at different temperatures were observed. Comparing and analyzing the experimental results of low temperature annealed samples and high temperature annealed samples, it is found that the microstructure and magnetic properties of the samples annealed at low temperature are different from those of the samples annealed at high temperature. The samples annealed at low temperature are almost still amorphous, while the samples annealed at high temperature are nanocrystalline ribbons. The macro-strain, maximum impedance ratio, magnetic anisotropy and optimum driving frequency of the samples after low temperature annealing have a certain linear relationship with the annealing temperature. The results of this paper have important reference value for improving the soft magnetic properties of Fe-based amorphous alloys by stress annealing in industrial production.

## Keywords

Stress Annealing, Macro-Strain, Microstructure, Giant Magneto-Impedance, Magnetic Anisotropy

# 退火温度对Fe基非晶薄带磁性能的影响

许校嘉<sup>1</sup>, 陆轩昂<sup>1</sup>, 方 峥<sup>2</sup>, 郭春羽<sup>1</sup>, 范晓珍<sup>1</sup>, 何兴伟<sup>1</sup>, 方允樟<sup>1,3\*</sup>, 杨晓红<sup>4</sup>

<sup>1</sup>浙江师范大学物理与电子信息工程学院, 浙江 金华

<sup>2</sup>浙江旅游职业学院, 浙江 杭州

\*通讯作者。

文章引用: 许校嘉, 陆轩昂, 方峥, 郭春羽, 范晓珍, 何兴伟, 方允樟, 杨晓红. 退火温度对 Fe 基非晶薄带磁性能的影响[J]. 材料科学, 2019, 9(4): 347-354. DOI: 10.12677/ms.2019.94046

<sup>3</sup>新疆大学科技学院阿克苏校区, 新疆 阿克苏

<sup>4</sup>金华职业技术学院, 浙江 金华

Email: xxj1@icloud.com, fyz@zjnu.cn

收稿日期: 2019年3月25日; 录用日期: 2019年4月11日; 发布日期: 2019年4月18日

## 摘要

本文在不同温度下对Fe基非晶薄带进行应力退火, 观测不同温度退火后薄带的宏观应变、微观结构和磁性能。对比分析低温退火和高温退火的实验结果, 发现低温退火样品和高温退火样品的微观结构和磁性能有较大差异。低温退火后的样品几乎仍为非晶, 而高温退火后的样品为纳米晶薄带, 低温退火后样品的宏观应变、最大阻抗比、磁各向异性和最佳驱动频率与其退火温度都具有一定的线性关系。本文的研究结果对工业生产中使用应力退火方法提高Fe基非晶合金的软磁性能具有重要参考价值。

## 关键词

应力退火, 宏观应变, 微观结构, 巨磁阻抗, 磁各向异性

Copyright © 2019 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

## 1. 引言

Fe基合金材料以其优异的软磁性能[1][2][3][4]被广泛应用在各个领域。为了满足各个领域不同的需求, 人们对材料的结构和磁性能进行调控, 常用的方法有磁场退火[5][6]和应力退火[7][8][9]。应力退火相比磁场退火具有一定的优势, 因此应力退火调控磁性能技术得到广泛的关注[7][8][10][11][12]。Fe基非晶薄带拥有较好的柔韧性不易被折断, 但是退火后的纳米晶薄带较脆且易折断, 难以直接在电子器件中应用。所以加强纳米晶薄带的强度, 或者提高非晶薄带的软磁性能可以使Fe基合金材料更好地应用在电子器件中。经过后期加工来增强纳米晶薄带强度, 例如固化工艺[13]可以在保留纳米晶薄带软磁性能的同时增强其强度, 然而与提高非晶薄带的软磁性能相比需要增加后期的加工工艺和生产成本。因此提高非晶薄带的软磁性能对其在电子器件中得到更好的应用有重要意义。

本文以不同温度对Fe基非晶薄带进行应力退火, 观测低温退火和高温退火后薄带宏观应变、微观结构和磁性能的差异, 研究了退火温度对其磁性能的影响。

## 2. 实验

本文实验中所用样品为 $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$  (Fe基合金)非晶薄带, 长22 cm, 宽1 mm, 厚38  $\mu\text{m}$ 。实验中样品退火时所加的应力均为263.16 MPa张应力, 退火温度分别为350 $^{\circ}\text{C}$ 、400 $^{\circ}\text{C}$ 、450 $^{\circ}\text{C}$ 、480 $^{\circ}\text{C}$ 、500 $^{\circ}\text{C}$ 、520 $^{\circ}\text{C}$ 、530 $^{\circ}\text{C}$ 和540 $^{\circ}\text{C}$ , 保温时间均为30分钟, 应力均在样品达到设定温度的时刻加上。

本文使用X射线衍射仪观测合金薄带的XRD谱; 利用SupereyesB011型数字显微镜记录薄带的宏观伸长量, 并计算其宏观应变; 采用HP4294A型阻抗分析仪测量样品的巨磁阻抗比(GMI)曲线, 并根据GMI曲线得到样品的磁各向异性场和最大阻抗比; 在不同的驱动频率下测量样品的GMI曲线, 得到样品最大

阻抗比与驱动频率的关系。

薄带样品的宏观应变  $\varepsilon$  为薄带的伸长量与原长的比值：

$$\varepsilon = \frac{\Delta l}{l_0} \quad (1)$$

其中  $\Delta l$  为薄带的伸长量， $l_0$  为薄带的原长。

使用 HP4294 型阻抗分析仪在纵向驱动模式下测量样品的巨磁阻抗比(GMI)曲线，巨磁阻抗比定义如下：

$$\frac{\Delta Z}{Z} = \frac{Z_{H(ex)} - Z_{H(max)}}{Z_{H(max)}} \times 100\% \quad (2)$$

其中  $Z_{H(ex)}$  为样品在外加磁场  $H_{(ex)}$  下的阻抗值， $Z_{H(max)}$  为样品在最大外加磁场  $H_{(max)}$  下的阻抗值。

磁各向异性场  $H_K$  的计算方式为：

$$H_K = \frac{H^+ - H^-}{2} \quad (3)$$

其中  $H^+$  与  $H^-$  为样品 GMI 曲线半高宽处对应的磁场强度。

### 3. 结果与讨论

#### 3.1. 不同温度退火样品的微观结构

图 1 是不同温度下应力退火样品的 XRD 衍射谱，退火时的应力均为 263.16 MPa 的张应力， $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$  非晶薄带晶化后内部生成  $\alpha\text{-Fe}(\text{Si})$  纳米晶晶粒，图中显示了纳米晶晶体的[110]和[200]晶面的衍射峰。可以从图中看出 500℃ 以下退火的样品 XRD 谱都表现为非晶，只有一个非晶峰，500℃ 应力退火样品有很小的晶化峰出现，温度大于 500℃ 时退火温度越高样品晶化峰越明显，530℃ 以上退火样品的晶化峰完全显现，样品内部有大量的纳米晶生成。

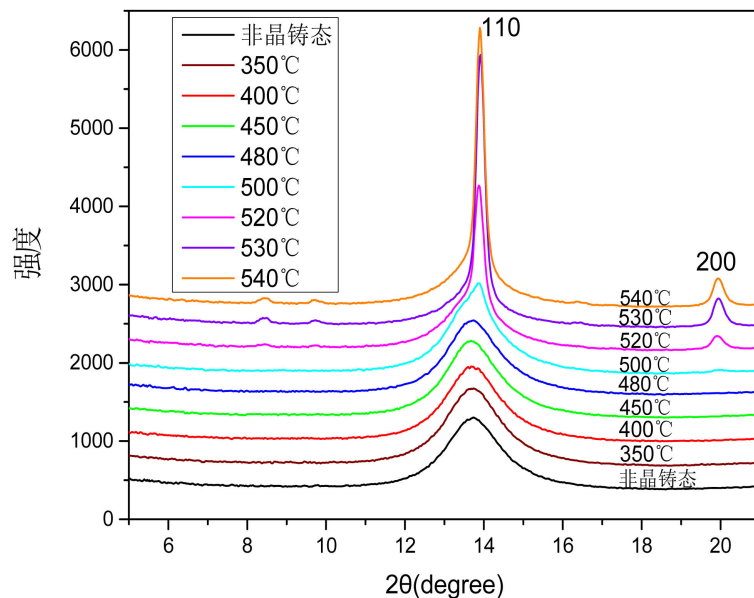
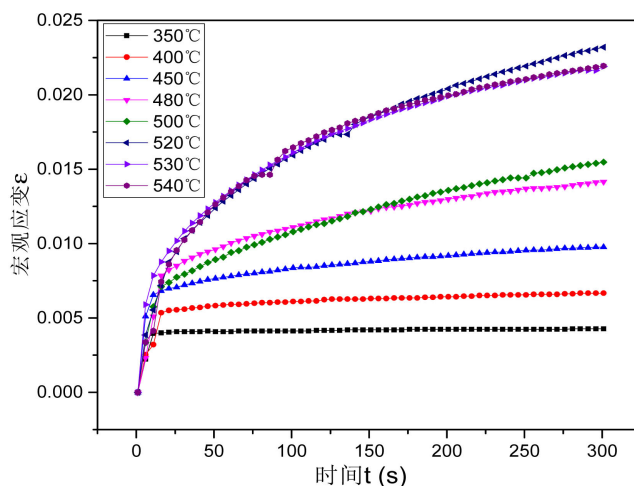


Figure 1. XRD spectra of stress annealed samples at different temperatures

图 1. 不同温度下应力退火样品 XRD 谱

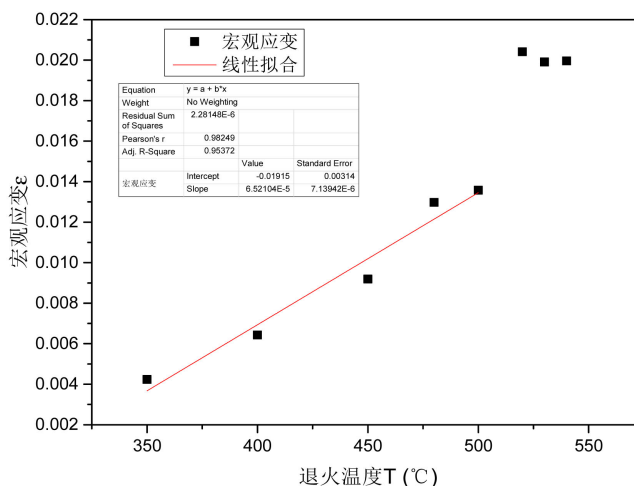
### 3.2. 不同温度退火样品的宏观应变

图 2 为  $Fe_{73.5}Cu_1Nb_3Si_{13.5}B_9$  非晶薄带在相同应力下不同温度退火的宏观应变随着时间的变化曲线, 从图中看出从 350℃ 到 500℃, 样品的宏观应变随着退火温度的升高其增加速率逐渐变大, 退火温度越高样品宏观应变的增大速度越快, 且最终的宏观应变也越大; 从 520℃ 到 540℃, 样品的宏观应变随退火温度的升高其增加速率逐渐变小, 退火温度越高样品宏观应变增大速度越慢, 且最终的宏观应变也越小。



**Figure 2.** Curve of macro-strain with time for stress annealed samples at different temperatures  
**图 2.** 不同温度下应力退火样品宏观应变随时间变化曲线

图 3 为对样品施加应力后 200s 时的宏观应变和退火温度的关系, 样品在 350℃、400℃、450℃、480℃、500℃、520℃、530℃ 和 540℃ 应力退火 200 秒后的宏观应变分别为 0.00424、0.00643、0.00919、0.01298、0.01358、0.02041、0.01991 和 0.01996。从图中可以看出在 500℃ 以下应力退火样品的宏观应变随着退火温度的升高而增大, 而且具有较好的线性关系。520℃ 以上应力退火样品由于内部发生晶化影响薄带样品的伸长, 其宏观应变变化情况与 500℃ 以下样品不同。对图 3 中 500℃ 以下退火样品的宏观应变实验数据进行线性拟合后可以得到样品的宏观应变与退火温度的关系式:



**Figure 3.** Relationship between macro-strain and annealing temperature at 200 s  
**图 3.** 200 s 时样品的宏观应变和退火温度的关系

$$\varepsilon = 0.000065T - 0.019 \quad (4)$$

其中  $\varepsilon$  为样品的宏观应变,  $T$  为退火温度。

### 3.3. 不同温度退火样品的巨磁阻抗与磁各向异性

图 4 为样品在相同应力下不同温度退火后的 GMI 曲线, 此 GMI 曲线图的形状类似于一个金字塔。可以看出 500℃ 以下退火样品的 GMI 曲线较为窄高, 在金字塔顶部; 520℃ 以上退火样品的 GMI 曲线较为宽矮, 在金字塔底部。这是由于 520℃ 以上退火的样品内部发生晶化, 在施加外应力退火后感生出较大的磁各向异性场, 其 GMI 曲线半高宽较大, 最大阻抗比较小。

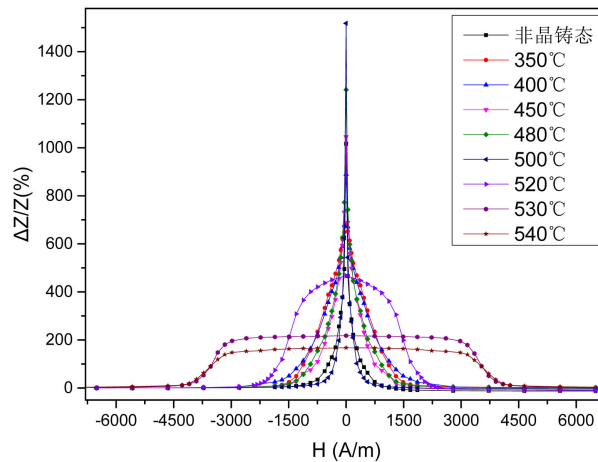


Figure 4. GMI curves of stress annealed samples at different temperatures  
图 4. 不同温度下应力退火样品的 GMI 曲线图

图 5 为样品的最大阻抗比和退火温度的关系图, 样品在 350℃、400℃、450℃、480℃、500℃、520℃、530℃和 540℃应力退火后的最大阻抗比分别为 680.70%、889.96%、1045.88%、1241.82%、1518.30%、467.64%、217.95%和 167.40%。可以从图中看出 500℃ 以下退火样品最大阻抗比随退火温度的升高而增大, 且最大阻抗比和退火温度具有较好的线性关系。对图 5 中 500℃ 以下退火样品的实验数据进行拟合后可以得到样品最大阻抗比与退火温度的关系式:

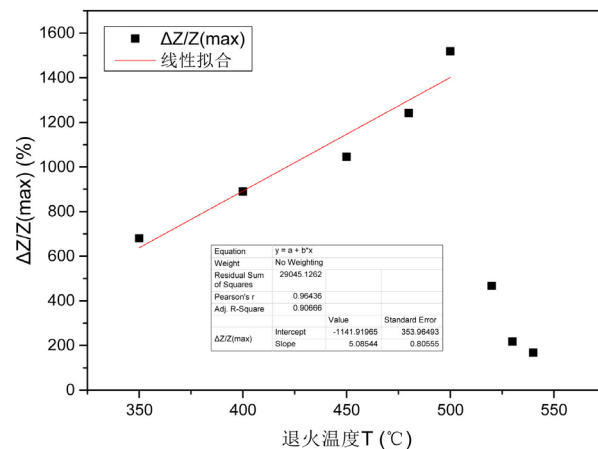


Figure 5. The relationship between the maximum impedance ratio and annealing temperature of the samples  
图 5. 样品最大阻抗比与退火温度关系图

$$\frac{\Delta Z}{Z_{(max)}} = 5.09T - 1141.92 \tag{5}$$

其中  $\frac{\Delta Z}{Z_{(max)}}$  为样品的最大阻抗比,  $T$  为退火温度。

图 6 为样品的磁各向异性与其退火温度的关系图, 样品在 350°C、400°C、450°C、480°C、500°C、520°C、530°C 和 540°C 应力退火后的磁各向异性分别为 537.97 A/m、267.79 A/m、130.17 A/m、90.36 A/m、32.28 A/m、1434.91 A/m、3435.06 A/m 和 3576.32 A/m。从图中可以看出退火温度小于 500°C 时, 样品的磁各向异性随退火温度的升高而降低, 并且磁各向异性和退火温度具有较好的线性关系。对图 6 中 500°C 以下退火样品的实验数据进行拟合后可以得到样品的磁各向异性与退火温度的关系式:

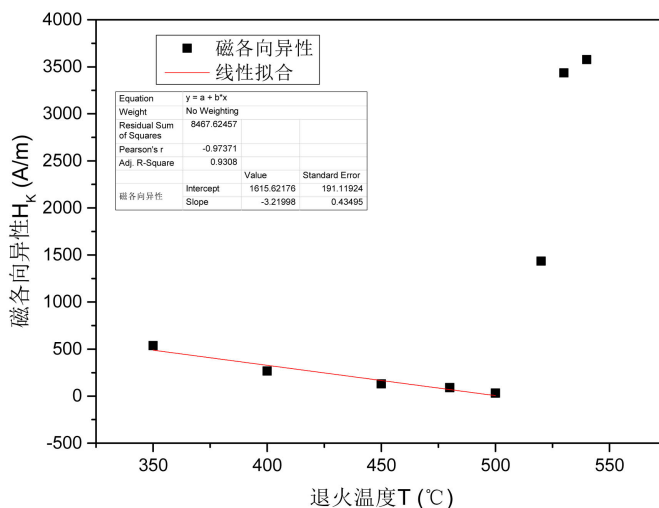


Figure 6. The relationship between magnetic anisotropy and annealing temperature of the samples  
图 6. 样品磁各向异性与退火温度关系图

$$H_k = -3.22T + 1615.62 \tag{6}$$

其中  $H_k$  为样品的磁各向异性,  $T$  为退火温度。

退火温度大于 520°C 时, 由于薄带样品中有  $\alpha$ -Fe(Si) 相纳米晶析出, 退火温度越高纳米晶晶粒越多, 又因为样品在退火时都施加了相同的张应力, 导致其内部的纳米晶出现了晶格各向异性, 所以样品的磁各向异性随着退火温度的升高而增大; 与之相对应的最大阻抗比随退火温度的升高而减小。

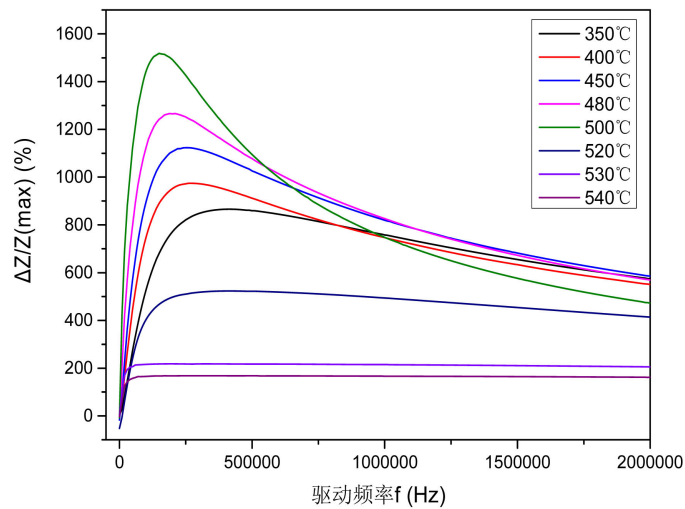
### 3.4. 不同温度退火样品最大阻抗比的频率特性

图 7 为在不同温度下应力退火样品的最大阻抗比和驱动频率之间的关系曲线图, 500°C 以下应力退火样品的曲线有较为明显的峰, 退火温度越高其峰越明显, 而 520°C 以上退火样品的曲线较低且较为平缓。

图 8 为 500°C 以下退火样品的最佳驱动频率(曲线最高点所对应的频率)和退火温度之间的关系图, 样品在 350°C、400°C、450°C、480°C 和 500°C 应力退火后的最佳驱动频率分别为 379 kHz、272 kHz、244 kHz、196 kHz 和 153 kHz。从图中可以看出样品的最佳驱动频率随退火温度的升高而减小, 且呈较好的线性关系。对图 8 中的实验数据进行线性拟合后可以得到样品的最佳驱动频率与退火温度的关系式:

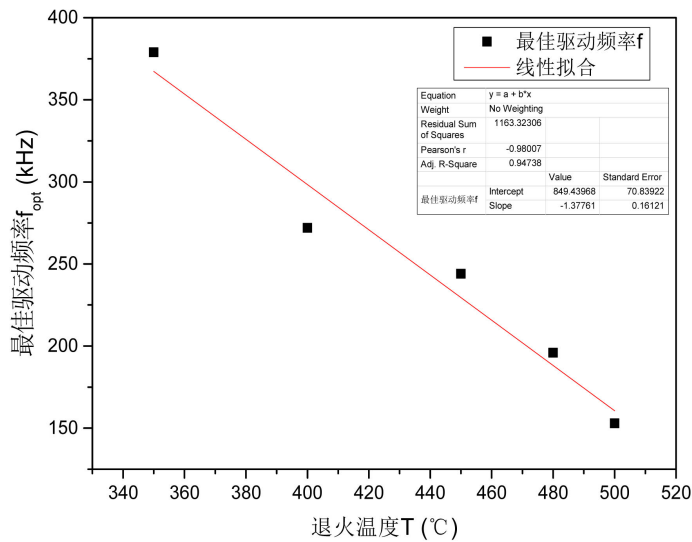
$$f_{opt} = -1.38T + 849.44 \tag{7}$$

其中  $f_{opt}$  为样品的最佳驱动频率,  $T$  为退火温度。



**Figure 7.** Relationship between maximum impedance ratio and driving frequency of the samples annealed at different temperatures

**图 7.** 不同温度应力退火样品的最大阻抗比与驱动频率的关系图



**Figure 8.** Relationship between optimal driving frequency and annealing temperature of the samples

**图 8.** 样品最佳驱动频率与退火温度关系图

500°C以下退火后的样品未晶化，其最佳驱动频率随退火温度的增大而减小；而520°C以上退火的样品内部出现晶化，其性质与未晶化样品不同，其最佳驱动频率有较宽的频率范围(曲线有平台且变化较平缓)，但最大阻抗比较小。

#### 4. 结论

1) Fe基非晶薄带500°C以下应力退火样品和520°C以上应力退火样品的微观结构和磁性能都有很大差别。500°C以下应力退火后的薄带样品几乎仍然为非晶，相比纳米晶薄带韧性更好，不易被折断；而520°C以上应力退火样品都发生了晶化，内部有大量纳米晶晶粒生成，质地较脆易被折断。由于它们内部结构的差异，从而使得它们的磁性能有较大差别。

2) 500°C以下应力退火样品相较520°C以上应力退火样品具有较大的巨磁阻抗比，较小的磁各向异

性和最佳驱动频率,且 500℃以下应力退火样品的宏观应变和最大阻抗比随退火温度的升高呈线性增大趋势,磁各向异性和最佳驱动频率随退火温度的升高呈线性减小的趋势。此研究结果对于工业生产中应用应力退火方法提高 Fe 基非晶合金的软磁性能具有重要的指导意义。

## 基金项目

国家重点基础研究发展计划(973 计划) 2012CB825705;浙江省重点研发计划项目 2018C01G2031345;浙江省自然科学基金项目 LY14A040003;国家自然科学基金项目 51771083。

## 参考文献

- [1] Yoshizawa, Y., Oguma, S. and Yamauchi, K. (1988) New Fe-Based Soft Magnetic Alloys Composed of Ultrafine Grain Structure. *Journal of Applied Physics*, **64**, 6044-6046. <https://doi.org/10.1063/1.342149>
- [2] Yoshizawa, Y. and Yamauchi, K. (1990) Fe-Based Soft Magnetic Alloys Composed of Ultrafine Grain Structure. *Materials Transactions-Japan Institute of Metals*, **31**, 307-314. <https://doi.org/10.2320/matertrans1989.31.307>
- [3] Yoshizawa, Y. and Yamauchi, K. (1991) Magnetic Properties of Fe-Cu-M-Si-B (M=Cr,V,Mo,Nb,Ta,W) Alloys. *Materials Science and Engineering A: Structural Materials Properties Microstructure and Processing*, **133**, 176-179. [https://doi.org/10.1016/0921-5093\(91\)90043-M](https://doi.org/10.1016/0921-5093(91)90043-M)
- [4] Tejedor, M., Hemando, B. and Sánchez, M.L. (1998) Magneto Impedance Effect in Zero Magnetostriction Nanocrystalline Fe<sub>73.5</sub>Cu<sub>1</sub>Nb<sub>3</sub>Si<sub>16.5</sub>B<sub>6</sub> Ribbons. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **185**, 61-65. [https://doi.org/10.1016/S0304-8853\(98\)00005-5](https://doi.org/10.1016/S0304-8853(98)00005-5)
- [5] Herzer, G. (1992) Nanocrystalline Soft Magnetic Materials. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **112**, 258-262. [https://doi.org/10.1016/0304-8853\(92\)91168-S](https://doi.org/10.1016/0304-8853(92)91168-S)
- [6] Yoshizawa, Y. and Yamauchi, K. (1989) Effects of Magnetic Field Annealing on Magnetic Properties in Ultrafine Crystalline Fe-Cu-Nb-Si-B Alloys. *IEEE Transactions on Magnetics*, **25**, 3324-3326. <https://doi.org/10.1109/20.42291>
- [7] Kraus, L., Závěta, K., Heczko, O., et al. (1992) Magnetic Anisotropy in As-Quenched and Stress-Annealed Amorphous and Nanocrystalline Fe<sub>73.5</sub>Cu<sub>1</sub>Nb<sub>3</sub>Si<sub>13.5</sub>B<sub>9</sub> Alloys. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **112**, 275-277. [https://doi.org/10.1016/0304-8853\(92\)91172-P](https://doi.org/10.1016/0304-8853(92)91172-P)
- [8] Fukunaga, H., Furukawa, N., Tanaka, H., et al. (2000) Nanostructured Soft Magnetic Material with Low Loss and Low Permeability. *Journal of Applied Physics*, **87**, 7103-7105. <https://doi.org/10.1063/1.372944>
- [9] 赵静, 方允樟, 何兴伟, 肖飞, 陈明, 孟繁雪, 杨晓红, 潘日敏. FeCuNbSiB 合金薄带电流应力退火感生磁各向异性的研究[J]. 材料科学, 2015, 5(3): 55-61.
- [10] Herzer, G. (1994) Creep Induced Magnetic Anisotropy in Nanocrystalline Fe-Cu-Nb-Si-B Alloys. *IEEE Transactions on Magnetics*, **30**, 4800-4802. <https://doi.org/10.1109/20.334226>
- [11] 方允樟, 郑金菊, 施方也, 等. Fe 基合金应力退火感生磁各向异性机理的 AFM 研究[J]. 中国科学: E 辑技术科学, 2008, 38(3): 428-441.
- [12] Ohnuma, M., Hono, K., Yanai, T., et al. (2005) Origin of the Magnetic Anisotropy Induced by Stress Annealing in Fe-Based Nanocrystalline Alloy. *Applied Physics Letters*, **86**, 152513. <https://doi.org/10.1063/1.1901807>
- [13] 任森生, 郭春羽, 许校嘉, 陆轩昂, Nutor Raymond Kwesi, 杨晓红, 方允樟. 固化对纳米晶磁芯软磁性能影响的研究[J]. 材料科学, 2018, 8(2): 68-80.



**知网检索的两种方式：**

1. 打开知网页面 <http://kns.cnki.net/kns/brief/result.aspx?dbPrefix=WWJD>  
下拉列表框选择：[ISSN]，输入期刊 ISSN：2160-7613，即可查询
2. 打开知网首页 <http://cnki.net/>  
左侧“国际文献总库”进入，输入文章标题，即可查询

投稿请点击：<http://www.hanspub.org/Submission.aspx>

期刊邮箱：[ms@hanspub.org](mailto:ms@hanspub.org)