中国科学: 物理学 力学 天文学 2025 年 第 55 卷 第 8 期: 286118
SCIENTIA SINICA Physica, Mechanica & Astronomica physcn.scichina.com
《中国科学》杂志社 SCIENCE CHINA PRESS
论 文 非晶态材料物理性能研究专辑

连续张应力热处理调控FeSiBNbCu纳米晶合金磁各向异性与高频磁特性研究

郭志君[1], 杨晓萱[1], 蔡名娟[2*], 李军[1], 凡艳舟[1], 罗强[1], 沈宝龙[1*]

1. 东南大学材料科学与工程学院, 江苏省先进金属材料高技术研究重点实验室, 南京 211189
2. 中国科学院合肥物质科学研究院, 强磁场科学中心, 低功耗量子材料与器件安徽省重点实验室, 合肥 230031
*联系人, 蔡名娟, E-mail: mjcai@hmfl.ac.cn; 沈宝龙, E-mail: blshen@seu.edu.cn

收稿日期: 2024-09-29; 接受日期: 2025-01-24; 网络出版日期: 2025-04-16
国家重点研发计划(编号: 2022YFB3804100)、国家自然科学基金(编号: 52231005)和宜兴市"陶都之光"科技攻关计划(编号: C2024002)资助项目

摘要 在后摩尔时代, 随着集成变压器及电感的广泛应用, 迫切需要软磁材料在兆赫兹频段拥有稳定的磁导率. 然而, 传统恒导磁软磁铁氧体存在饱和磁化强度低和温度不稳定等问题, 不适合应用于集成电路. 铁基纳米晶合金因其独特的非晶-纳米晶双相磁耦合结构表现出优异的综合软磁性能, 在新能源汽车和5G通信等新兴电力电子领域中已展示出巨大潜力. 本文采用连续张应力热处理法, 获得在宽频范围内(1 kHz−10 MHz)稳定磁导率为~400的$Fe_{73.5}Si_{15.5}B_7Nb_3Cu_1$纳米晶合金. 该合金经连续张应力热处理后, 其感生磁各向异性能达2503 J/m^3, 磁畴呈窄条状横向排列且尺寸趋于一致. 该工作为恒导磁软磁材料的制备提供了一种新思路, 有望弥补软磁材料在现代电子设备应用中的不足.

关键词 铁基纳米晶合金, 恒导磁特性, 连续张应力热处理, 磁各向异性

PACS: 75.50.Tt, 75.75.-c, 81.40.Ef, 75.30.Gw

1 引言

随着高密度和小型化电子硬件的发展, 印刷电路板(PCB)的表面积急剧缩小, 电路板上组装的电子元件数量不断增加. 电感、变压器等电子元件嵌入式实施技术是电源模块小型化的重要手段, 可有效降低高频产品的成本、提高散热性能. 在后摩尔时代先进集成电路封装技术中, 兆赫兹以上电感器的嵌入使得其在高频模块中尤为重要[1,2]. 具有稳定磁导率的软磁材料是电感、变压器等基础电子元件的基础材料, 在电流驱动磁场下产生交变磁通, 这需要其在中高频范围内具有稳定的磁导率[3].

近年来, 具有良好静磁性能、高饱和磁化强度和高初始磁导率(μ_i > 10000)的铁基软磁合金相继被研

引用格式: 郭志君, 杨晓萱, 蔡名娟, 等. 连续张应力热处理调控FeSiBNbCu纳米晶合金磁各向异性与高频磁特性研究. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2025, 55: 286118
Guo Z, Yang X, Cai M, et al. Modulation of magnetic anisotropy and high-frequency soft-magnetic property of FeSiBNbCu nanocrystalline alloy via continuous tension annealing (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2025, 55: 286118, doi: 10.1360/SSPMA-2024-0415

© 2025《中国科学》杂志社

发出来[4]. 在千赫兹以上, 传统铁基软磁合金由于电阻率低和畴壁共振, 使得电感失效, 电路无法正常工作. 铁氧体因具有高电阻率应用在千兆赫兹, 然而, 其较低的饱和磁化强度(~50 Am^2/kg)使其不适用于电感器小型化, 并且其居里温度较低(~200°C), 高温下磁导率下降易导致电感性能不稳定, 影响电路稳定性[5]. 因此制备兼具频率稳定磁导率和高饱和磁化强度的磁性材料仍然是一个挑战.

以FeSiBNbCu体系为代表的铁基纳米晶软磁合金因其独特的非晶-纳米晶双相磁耦合结构, 具有较低磁晶各向异性和弱磁致伸缩效应, 表现出高饱和磁化强度、高磁导率和低损耗等优良特性, 已广泛应用于制备新能源汽车与5G通信等新兴电力电子领域的关键磁性元件, 如共模扼流器、大功率电抗器和电流互感器等, 在实现器件小型化、节能高效化、高频化方面展现出巨大潜力[6,7]. 为进一步获得宽频段恒导磁特性, 通常需要通过成分设计与热处理工艺优化, 以增加磁各向异性, 形成难磁化轴以抑制畴壁位移, 降低磁化过程中畴壁位移贡献, 提高磁导率弛豫频率[8]. 研究发现, 添加Mo, P等元素或采用横向磁场热处理工艺, 可有效提高纳米晶合金的磁导率频率稳定性[9–11]. 然而, 这些方法均难以将磁导率恒定的频率范围提升至100 kHz以上. 张应力热处理作为调控磁各向异性的另一有效方法, 可使纳米晶合金产生大于1000 A/m的磁各向异性场, 比横向磁场热处理高出两个数量级[12]. 张应力热处理对FeSiBNbCu纳米晶合金磁各向异性能、磁畴结构及软磁性能的影响陆续得到研究, 发现当Si含量大于10 at.%时, 纳米晶合金产生垂直于张应力方向的感生磁各向异性并降低了磁导率, 且这一各向异性能与热处理过程所施加张应力成正比[13,14]. 然而, 应力热处理产生磁各向异性的内在机理尚存争议. 早期研究认为, 纳米晶合金的应力热处理感生各向异性主要来源于发生滞弹性变形的非晶基体施加拉伸背应力导致的纳米晶相的磁弹性各向异性或团聚晶粒的定向排列[15,16], 围绕非晶基体的滞弹性变形, 非晶相原子成键取向各向异性模型、非晶-纳米晶双相局域原子键合强度异质模型等机制被相继提出[17,18].

基于此, 本文选择$Fe_{73.5}Si_{15.5}B_7Nb_3Cu_1$纳米晶合金(牌号为1K107B)进行连续张应力热处理, 旨在获得宽频段范围具有优异恒导磁性能的铁基纳米晶合金, 揭示张应力热处理调控纳米晶合金磁各向异性与高频软磁特性的微观机制和结构起源.

2　实验方法

将纯度均大于99.99%的Fe, Si, B, Nb和Cu原料按照原子百分含量进行配料, 在高纯氩气氛围下进行感应熔炼制得母合金. 随后通过单辊快淬法制备得到厚度约23 μm、宽度约3 mm的非晶合金带材. 采用差式扫描量热仪(DSC, NETZSCH 404C)测量样品的热力学性质. 使用连续张应力热处理炉(NMS-HZL01)对淬态非晶合金带材进行张应力热处理来制备纳米晶合金带材, 该设备由电阻炉和张力控制系统组成, 如图1所示. 张力通过主、副动轮速度差产生, 利用张力传感器监测并调整以维持恒定, 带材连续匀速运行借助送、收料驱动器进行. 在热处理过程中, 带材依次通过主动轮、电阻炉至副动轮, 然后启动电机拉伸带材, 使其在一定张应力状态下以固定速度通过预加热至热处理温度的电阻炉. 张应力选定为50–250 MPa, 相同条件下, 设置无应力(0 MPa)热处理样品作为对照组. 采用X射线衍射仪(XRD, Bruker D8-Discover)与高分辨透射电子显微镜(TEM, FEI Tecnai G2 F20)测试热处理前后带材微观结构. 使用DC B-H仪(RIKEN, BHS-40)测量纳米晶带材1 kA/m条件下矫顽力H_c, 通过阻抗分析仪(Agilent E4990A)测试纳米晶带材1 A/m条件下有效磁导率μ_e. 利用振动样品磁强计(VSM, Lake Shore 7410)测量纳米晶带材初始磁化曲线与800 kA/m下饱和磁化强度. 使用磁光克尔显微镜(MOKE, Evico 4-873K/950MT)观察纳米晶带材磁化过程磁畴结构演变.

3　结果与讨论

3.1　连续张应力热处理优化纳米晶带材高频磁特性

图2为$Fe_{73.5}Si_{15.5}B_7Nb_3Cu_1$淬态合金带材的DSC曲线, 曲线升温速率为0.67°C/s. 由图可知, DSC曲线显示两个放热峰, 表明淬态样品在加热过程中存在两步结晶现象. 初始晶化温度T_{x1}为510°C, 次级晶化温度T_{x2}为680°C, 分别对应α-Fe相与FeB化合物析出, 晶化温度区间($\Delta T = T_{x2} - T_{x1}$)宽达170°C.

根据DSC曲线结果, 选择晶化热处理温度区间为560°C–660°C, 基于前期研究结果, 选定带材运行速度为1 m/min, 即保温时间为37 s[19]. 图3为560°C–660°C

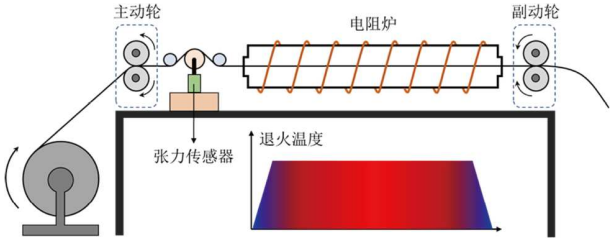

图 1　(网络版彩图)连续张应力热处理设备示意图

Figure 1　(Color online) Schematic diagram of continuous tension annealing equipment.

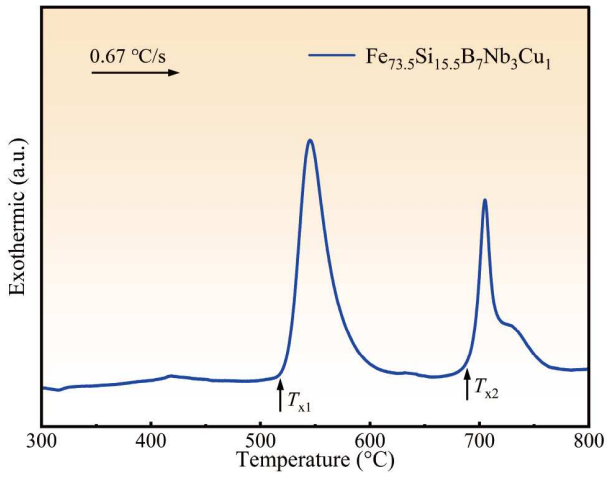

图 2　(网络版彩图)　$Fe_{73.5}Si_{15.5}B_7Nb_3Cu_1$淬态合金条带的DSC曲线

Figure 2　(Color online) DSC curve of $Fe_{73.5}Si_{15.5}B_7Nb_3Cu_1$ alloy ribbon in as-quenched state.

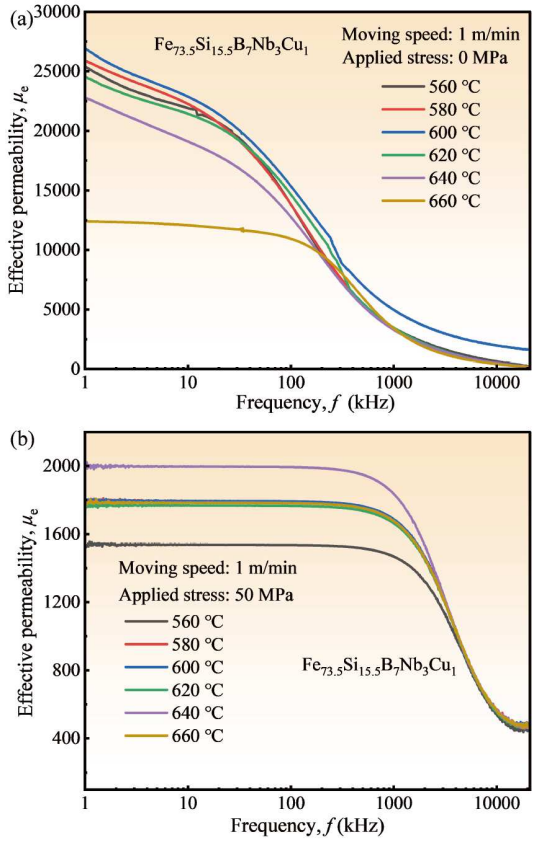

图 3　(网络版彩图)不同热处理温度下进行(a)无应力热处理(0 MPa)和(b)张应力热处理(50 MPa)的纳米晶合金μ_e随频率的变化曲线

Figure 3　(Color online) Variation of μ_e with frequency of nanocrystalline alloys subjected to annealing with tensile stresses of (a) 0 MPa and (b) 50 MPa at different temperatures.

进行无应力热处理(0 MPa)与连续张应力热处理(50 MPa)的纳米晶合金带材μ_e随频率变化曲线. 如图3(a)所示, 无应力热处理样品在1 kHz下μ_e达22000–27000, 随着频率升高, μ_e迅速减小. 该现象表明在测量磁场与低频范围内, 磁化机制主要对应于外场幅度高于钉扎场时的不可逆畴壁位移, 这一不可逆过程随着频率上升对磁化的贡献逐渐降低, 导致μ_e不断衰减[20]. 如图3(b)所示, 经连续张应力热处理后样品在1 kHz–1 MHz范围内保持恒定μ_e, 数值为1500–2000, 表明此时磁化弛豫机制转变为由转动磁化主导, 可推断连续张应力热处理产生沿横向易磁化轴的单轴磁各向异性. 此外, 观察可知当热处理温度升至660°C时, 无应力热处理样品与张应力热处理样品的μ_e均出现明显减小, 这可能源自α-Fe晶粒过度长大及FeB化合物析出导致的磁硬化, 使畴壁脱离钉扎所需能量势垒提高, 由此增大纳米晶合金的钉扎场, 进而降低μ_e.

图4为无应力热处理样品(0 MPa)与连续张应力热处理样品(50 MPa) H_c随热处理温度变化曲线. 无应力热处理时, 样品H_c在560°C–640°C范围内基本保持恒定, 数值低于0.5 A/m. 这是由于热处理释放淬态非晶合金中的内应力, 并在具有正磁致伸缩系数的非晶基体中析出具有负磁致伸缩系数的高体积分数α-Fe相, 获得饱和磁致伸缩系数极低的纳米晶合金, 从而降低内应力与饱和磁致伸缩之间的耦合导致的磁弹性各向异性[21]. 此外, 热处理还有效控制了纳米晶粒尺寸与分布, 使得磁晶各向异性有效平均化[22], 因此, 纳米晶合金的软磁性能得到明显改善. 当温度大于640°C时, 晶粒粗化及化合物相析出使H_c开始恶化, 与μ_e随热处理温度变化趋势一致. 而对于连续张应力热处理样品, 其H_c在560°C–620°C区间较无应力热处理样品具有更大数值, 随热处理温度的升高逐渐减小. 这一现象可能

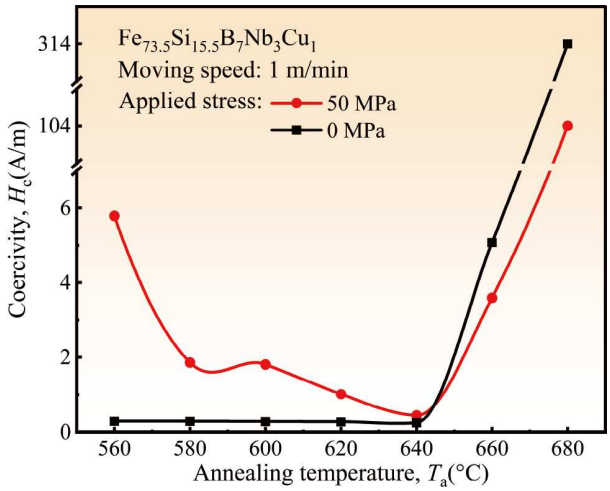

图 4　(网络版彩图)无应力热处理样品和连续张应力热处理样品H_c随热处理温度的变化曲线

Figure 4　(Color online) Variation of H_c with annealing temperature of nanocrystalline alloys subjected to annealing without tension stress and with continuous tension stress.

源于连续张应力热处理感生各向异性随温度升高而增大且均匀性提升，由局部磁弹性各向异性及磁晶各向异性导致的各向异性波动减小，不可逆磁化过程阻力减小[18,23].

由上述分析可知, 在640°C下进行张应力热处理的条带样品兼具高μ_e与低H_c，为进一步探究热处理过程中外加张应力大小对纳米晶合金高频磁特性的影响, 分别测试了在640°C下施加50–250 MPa热处理后纳米晶合金μ_e对频率依赖性, 如图5(a)所示. 由图可知, μ_e随着张应力的增大而减小，当张应力从50 MPa增大至250 MPa，1 kHz下μ_e从2000显著下降至400. 但值得注意的是, 随着张应力增大、频率增加, μ_e的衰减得到了有效抑制, 当张应力为250 MPa时, μ_e恒定至10 MHz后才出现明显降低. 图5(b)为在不同张应力下热处理后纳米晶条带样品的磁滞回线. 与无应力热处理样品相比，经张应力热处理后，纳米晶合金样品磁滞回线随张应力增加而趋于平缓，进一步证实其沿带材横向形成单轴磁各向异性，且这一感生磁各向异性随着张应力增大，能量密度增大，此时磁导率由转动磁化决定, 与感生各向异性贡献占主导的总各向异性成反比，因此磁导率随张应力增大而减小[14,24].

经不同大小张应力热处理后纳米晶合金的饱和磁化强度变化如图6所示，经0–250 MPa张应力热处理后纳米晶合金的饱和磁化强度无显著差异，数值在

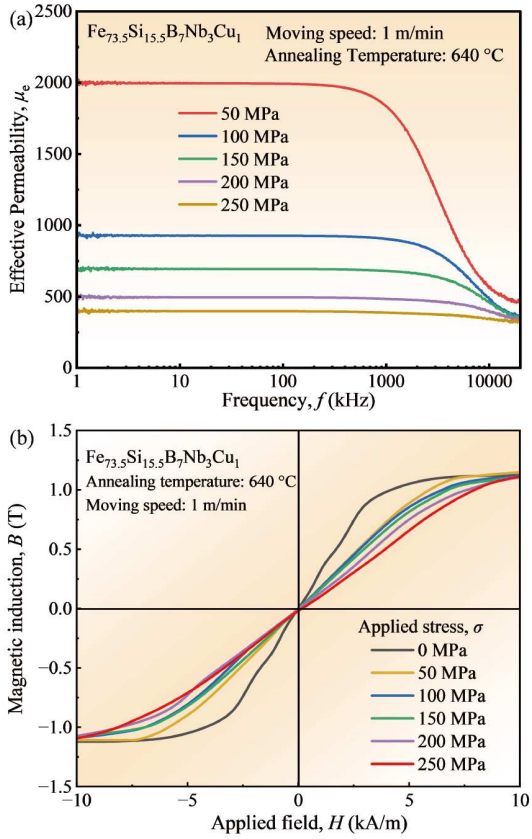

图 5　(网络版彩图)不同张应力下热处理后纳米晶条带样品的(a) μ_e随频率变化曲线与(b)磁滞回线

Figure 5　(Color online) (a) Variation of μ_e with frequency and (b) hysteresis loops of nanocrystalline alloys subjected to annealing with different tensile stresses.

1.23–1.25 T之间. 随着张应力从0 MPa增大至50 MPa, 饱和磁化强度从1.24 T减小至1.23 T，当张应力进一步增大至250 MPa时, 饱和磁化强度逐渐增大至1.25 T.

3.2　连续张应力热处理调控结构及对磁性能影响机理

为了研究软磁性能随不同热处理工艺变化的结构起源，对不同温度下无应力热处理与连续张应力热处理，及不同张应力下热处理后纳米晶条带样品进行XRD分析. 由图7(a)和(b)可知，当热处理温度为560°C–660°C时，无应力与张应力热处理样品均在2θ = 45°, 66°和83°附近出现3个明显晶化峰，分别对应α-Fe相(110), (200)和(211)晶面. 当热处理温度升至680°C时, 除α-Fe相外, 样品中均析出了FeB硬磁相, 这一现象解释了在680°C附近热处理后纳米晶合金样品

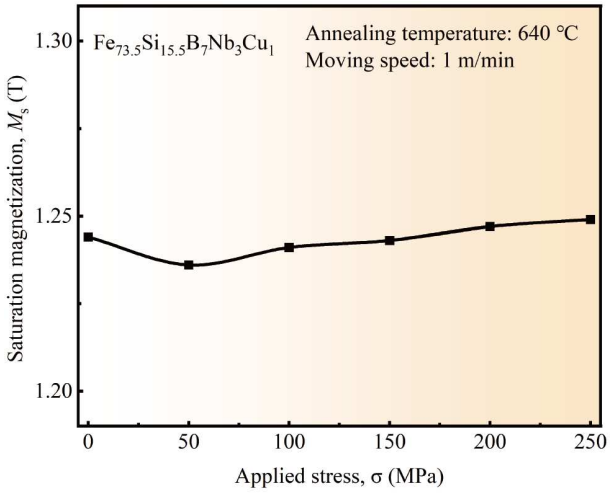

图 6　(网络版彩图)不同张应力下热处理后纳米晶条带样品的饱和磁化强度M_s

Figure 6　(Color online) Saturation magnetization M_s of nanocrystalline alloys subjected to annealing with different tensile stresses.

H_c显著增大、μ_e显著下降的原因. 当保持热处理温度为640°C时, 不同张应力下热处理后纳米晶条带样品析出相仅为软磁α-Fe相(图7(c)).

进一步地, 对经0, 50和250 MPa热处理后的纳米晶条带样品进行微观结构分析, 相应TEM图像、选区电子衍射(Selected Area Electron Diffraction, SAED)花样、晶粒尺寸分布统计及元素分布如图8所示. TEM明场像显示大量随机取向的纳米晶晶粒从非晶基体中均匀析出, SAED花样表明其为α-Fe相, 这与XRD结果一致. 对纳米晶粒尺寸与数目进行统计分析后, 根据高斯分布函数对晶粒尺寸的频率分布直方图拟合结果可知, 经0, 50和250 MPa张应力下热处理条带样品的纳米晶平均晶粒尺寸分别为10, 9和9 nm, 纳米晶晶粒数密度估算为1.5×10^{24}, 1.9×10^{24}和2.0×10^{24} m^{-3}, 相应晶化体积分数分别为78%, 74%和77%, 这表明施加张应力有助于降低纳米晶合金晶粒尺寸、提高晶粒数密度, 同时对晶化体积分数无明显影响. 这一现象可归因于热处理过程中施加张应力降低晶化过程的吉布斯自由能与临界形核半径, 从而提高形核速率, 细化晶粒尺寸[25]. 由于经不同大小张应力热处理后样品的晶化体积分数与饱和磁化强度均随张应力增大呈现先下降后上升趋势, 推断饱和磁化强度随张应力的变化与晶化体积分数密切相关. 此外, 不同张应力下热处理后纳米晶条带样品表现出相似的元素分布特征, Cu元素偏

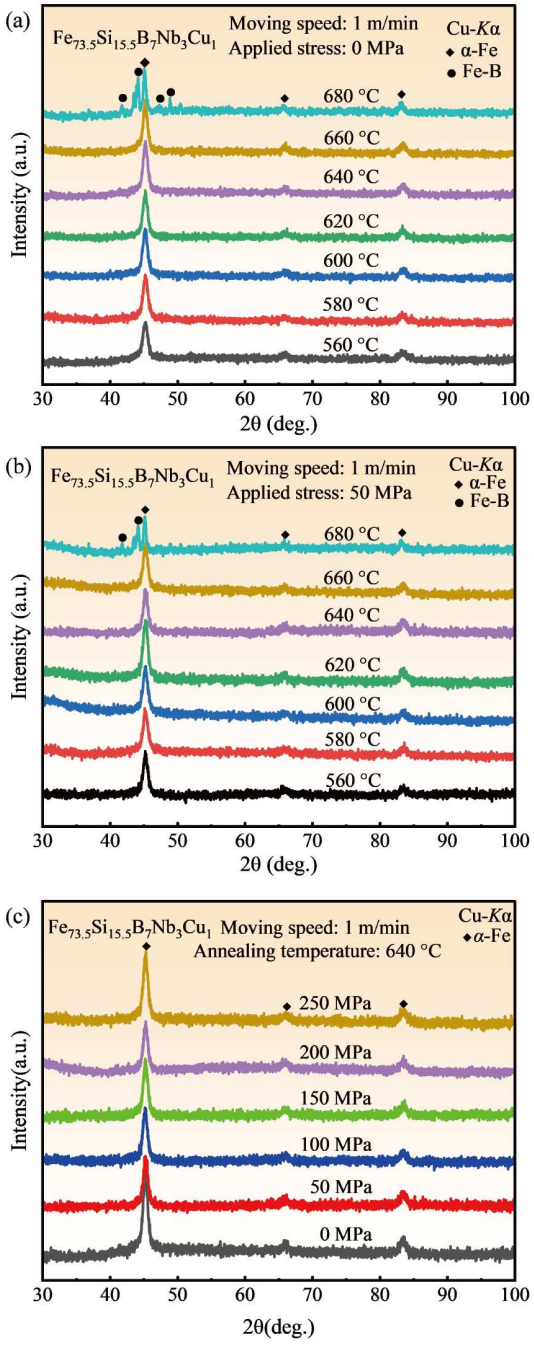

图 7　(网络版彩图)不同热处理温度下, (a)无应力热处理、(b)连续张应力热处理, 及(c)不同张应力下热处理后纳米晶条带样品的XRD图谱

Figure 7　(Color online) XRD patterns of nanocrystalline alloys subjected to annealing at different temperatures (a) without tension stress, (b) with continuous tension stress, and (c) with different tension stresses.

聚于贫Fe元素区域, Fe元素和Si元素富集于纳米晶晶相中, B元素与Nb元素富集于晶界处, 表明张应力的

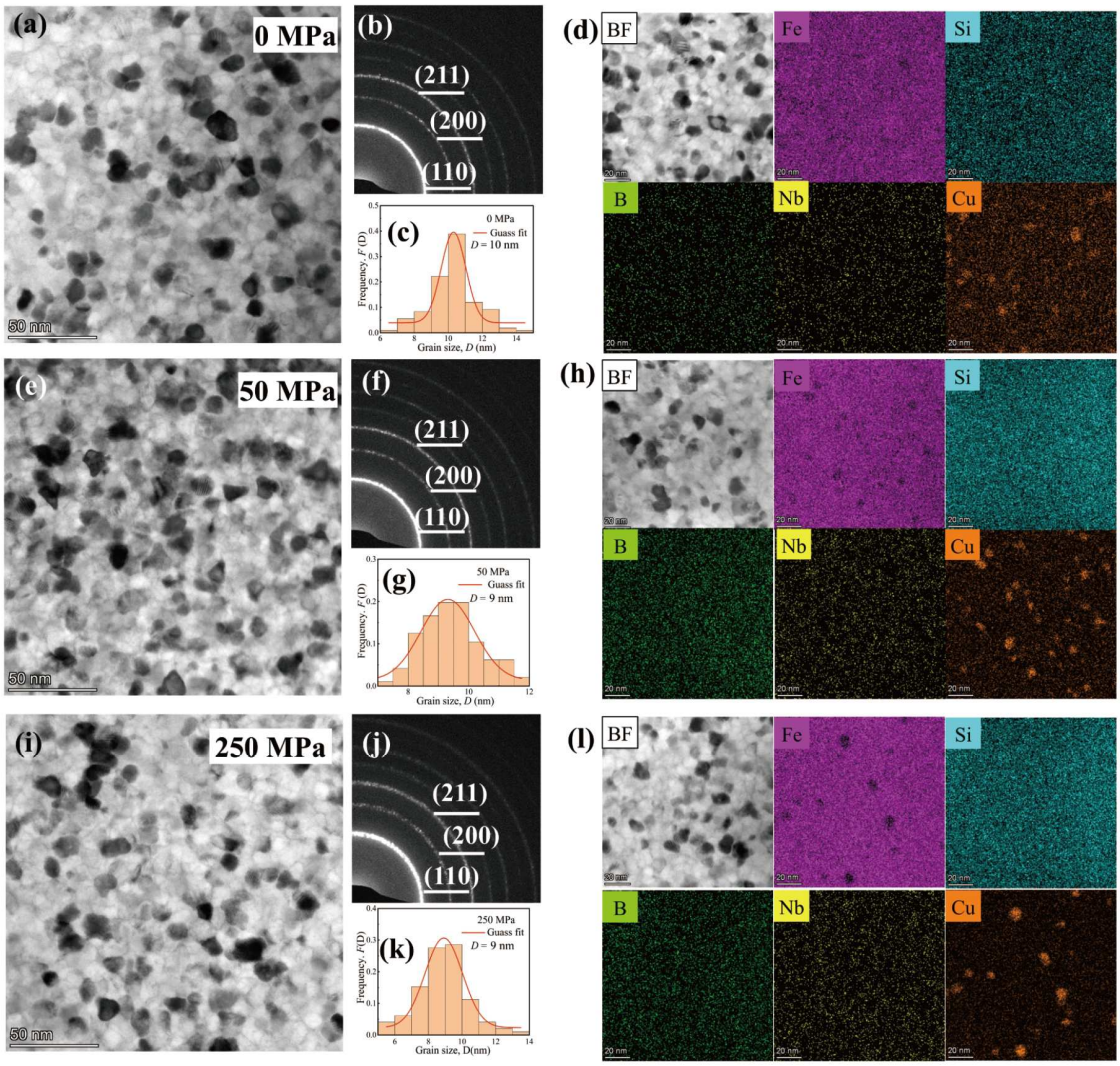

图 8　(网络版彩图) (a)–(d) 0 MPa, (e)–(h) 50 MPa, (i)–(l) 250 MPa下进行热处理的纳米晶合金的TEM明场像、SAED花样、晶粒尺寸分布图和元素分布图

Figure 8　(Color online) Bright-field TEM images, SAED patterns, grain size distributions, and element distributions of nanocrystalline alloys subjected to annealing under (a)–(d) 0 MPa, (e)–(h) 50 MPa, and (i)–(l) 250 MPa.

施加对元素扩散未产生明显影响. 基于上述结果, 有效磁晶各向异性常数$\langle K_1\rangle$可以通过以下公式进行估算[26]:

$$\langle K_1\rangle = \left| K_1 \right| \cdot V_c^2 \cdot (D/L_0)^6, \tag{1}$$

其中, V_c, D和L_0分别代表晶化体积分数、晶粒尺寸与自然交换相关长度, 磁晶各向异性常数$K_1 \approx 8200$ J/m^3, $L_0 \approx 40$ nm. 通过计算得到在0, 50和250 MPa下进行热处理的纳米晶合金$\langle K_1\rangle$数值分别为1.2, 0.6和0.6 J/m^3, 表明这些样品中单个晶粒的磁晶各向异性均得到了有效平均化, 因此, 微观结构的差异无法解释张应力热处理带来的恒导磁性能提升.

3.3　连续张应力热处理调控磁畴结构与磁化过程

纳米晶合金的软磁特性与其磁化过程密切相关, 为了进一步揭示张应力对纳米晶条带软磁性能的影响机制, 对不同张应力下热处理后纳米晶条带样品的磁畴结构和磁化过程进行研究. 图9为0, 50, 100, 150, 200和250 MPa下热处理后纳米晶样品的退磁态磁畴结构. 随着张应力从0 MPa增大至50 MPa, 磁畴规则化

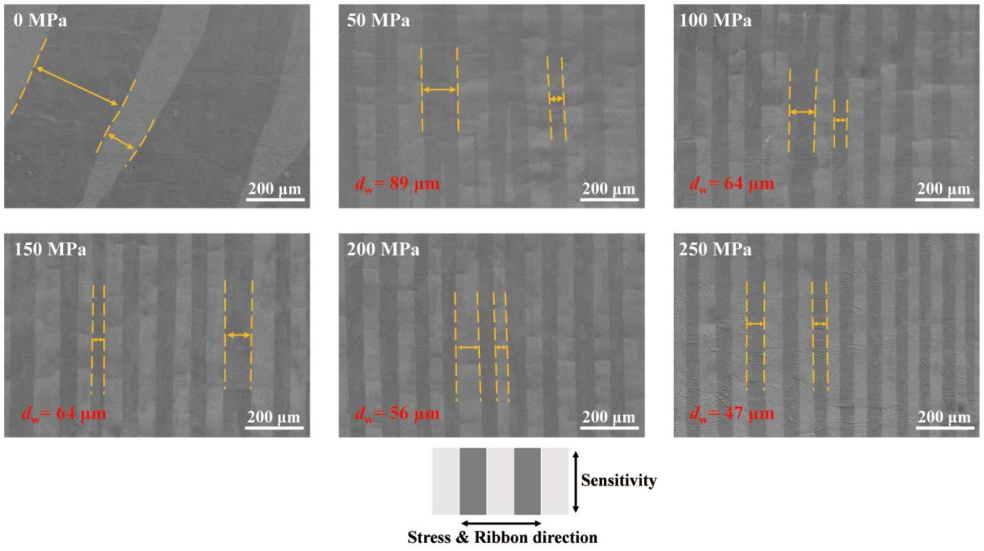

图 9　(网络版彩图)在0–250 MPa下热处理后纳米晶合金样品的退磁态磁畴图像
Figure 9　(Color online) Magnetic domains in the demagnetized state of nanocrystalline alloys subjected to annealing under 0–250 MPa.

且平直度增加，磁畴结构转变为沿带材横向排列的条形畴，表明应力感生磁各向异性贡献相对有效磁晶各向异性贡献逐渐占据主导[27,28]. 当张应力为50 MPa时，磁畴出现明显分叉现象, 磁畴宽度差异较大, 表明此时样品内部的磁各向异性分布不均. 随着张应力的进一步增加，条带样品的磁畴宽度不断减小且趋于一致, 当张应力为250 MPa时，平均宽度仅为47 μm，此时条带样品中局部磁晶及磁弹各向异性导致的各向异性涨落与磁化波动减小. 本文分别随机统计了不同张应力下热处理后纳米晶条带样品在相同面积内磁畴数量、最大磁畴宽度与最小磁畴宽度差值($\Delta d_w = d_{max} - d_{min}$)及平均磁畴宽度$d_w$, 如表1所示.

图10为0，50和250 MPa下热处理得到的纳米晶条带样品的动态磁畴演变图像. 由图10(a)可以看出, 0 MPa制备的纳米晶合金样品呈现出明显的波纹状畴, 反映出由随机磁晶各向异性导致的磁化不均匀. 观察磁化过程发现, 其磁化过程主要通过畴壁位移(图中黄色虚线标出)进行, 随着外场的增大, 磁畴出现分叉. 通过图10(b)可以发现，50 MPa张应力下热处理得到的纳米晶条带样品在规则磁畴内部出现微米级磁化波动现象(图中白色圆圈标出). 其磁化过程显示出磁畴成核、磁畴分裂与不均匀转动磁化，这些特征是局部磁弹性各向异性与随机磁晶各向异性共同作用的结果[29]，表明经50 MPa张应力热处理样品具有较弱的均匀感生磁各向异性. 此外, 还观察到明显的畴壁位移过程, 表明磁化过程由不均匀转动磁化和畴壁位移共同作用. 如图10(c)所示，经250 MPa张应力热处理得到的条带样品在960 A/m外场下磁畴结构与宽度基本保持不变, 在1800 A/m外场下仅观察到部分转动磁化行为，此时样品的磁化过程由磁畴转动主导，强应力感生各向异性使磁化矢量旋转难以进行, 从而降低磁导率.

表 1　不同张应力σ下热处理后纳米晶条带样品磁畴数量n、最大磁畴宽度与最小磁畴宽度差值$\Delta d_w = d_{max} - d_{min}$和平均磁畴宽度$d_w$
Table 1　Domain quantity n, difference between the maximum and minimum widths $\Delta d_w = d_{max} - d_{min}$, and average width of domain structure d_w of nanocrystalline alloys annealed under different tensile stresses σ

σ (MPa)	n	Δd_w (μm)	d_w (μm)
0	4	191	–
50	11	69	89
100	16	46	64
150	16	51	64
200	17	36	56
250	21	27	47

3.4　连续张应力热处理调控磁各向异性

纳米晶合金的软磁性能和磁畴结构随张应力热处理的变化规律与其磁各向异性分布相关联. 基于随机

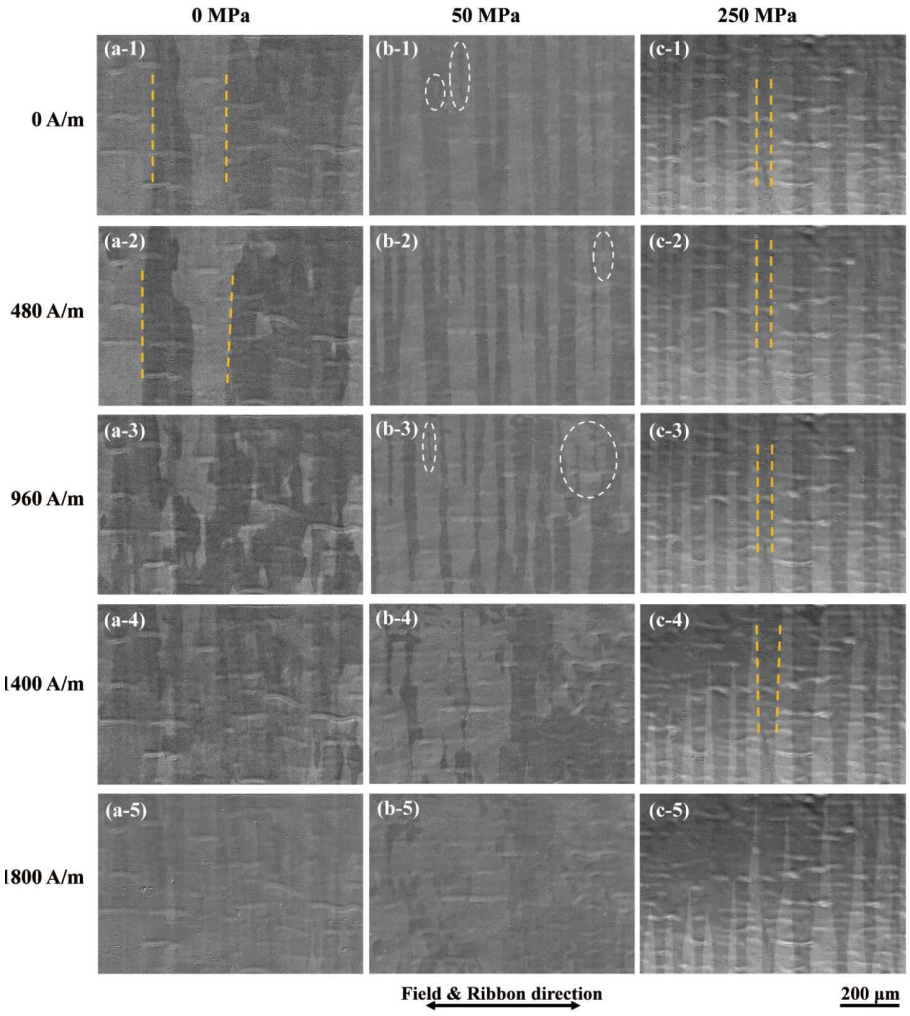

图 10　(网络版彩图) (a) 0 MPa, (b) 50 MPa和(c) 250 MPa下热处理的纳米晶条带样品磁化过程的磁畴演变图像

Figure 10　(Color online) Magnetic domain evolution of nanocrystalline alloys subjected to annealing under (a) 0 MPa, (b) 50 MPa, and (c) 250 MPa during the magnetization process.

各向异性模型，纳米晶合金的平均各向异性常数可表示为[26]

$$\langle K\rangle = \sqrt{K_{\mathrm{u}}{}^2+\sum\nolimits_{\mathrm{v}} x_{\mathrm{v}}\beta_{\mathrm{v}}^2 K_{1,\mathrm{v}}^2\cdot\left(\frac{D_{\mathrm{v}}}{L_{\mathrm{ex}}}\right)^3}, \tag{2}$$

式中，K_{u}代表外界势场(如外力、磁场等)作用下的感生磁各向异性，x_{v}为晶粒所占体积分数，β_{v}为常数，$K_{1,\mathrm{v}}$为晶粒的磁晶各向异性常数，D_{v}为晶粒尺寸，L_{ex}为交换相关作用长度. 在无应力热处理条件下K_{u}可忽略不计，合金的各向异性能主要与其成分及微观结构相关，此时合金的平均各向异性以磁晶各向异性为主. 当形成纳米晶且存在外加磁场或张应力时，式(2)中K_{u}远大于后一项，且使<K>的绝对值增加，此时合金的平均各向异性以感生磁各向异性为主.

对不同张应力下热处理后纳米晶条带样品的各向异性场H_{k}与感生磁各向异性能K_{u}进行分析，如图11所示. 将饱和磁感应强度外推至H = 0, H_{k}为饱和磁感应强度与初始磁化曲线原点处切线的交点. K_{u}根据式(3)计算得到(即图中粉色三角形面积)[23]:

$$K_{\mathrm{u}} = \frac{B_{\mathrm{s}}^2}{2\mu_0\mu_{\mathrm{e}}}, \tag{3}$$

其中μ_0为真空磁导率. 连续张应力热处理后纳米晶合金样品的H_{k}为822–4138 A/m, K_{u}为497–2503 J/m^3. 随着外加张应力的增大, H_{k}与K_{u}数值随之增加.

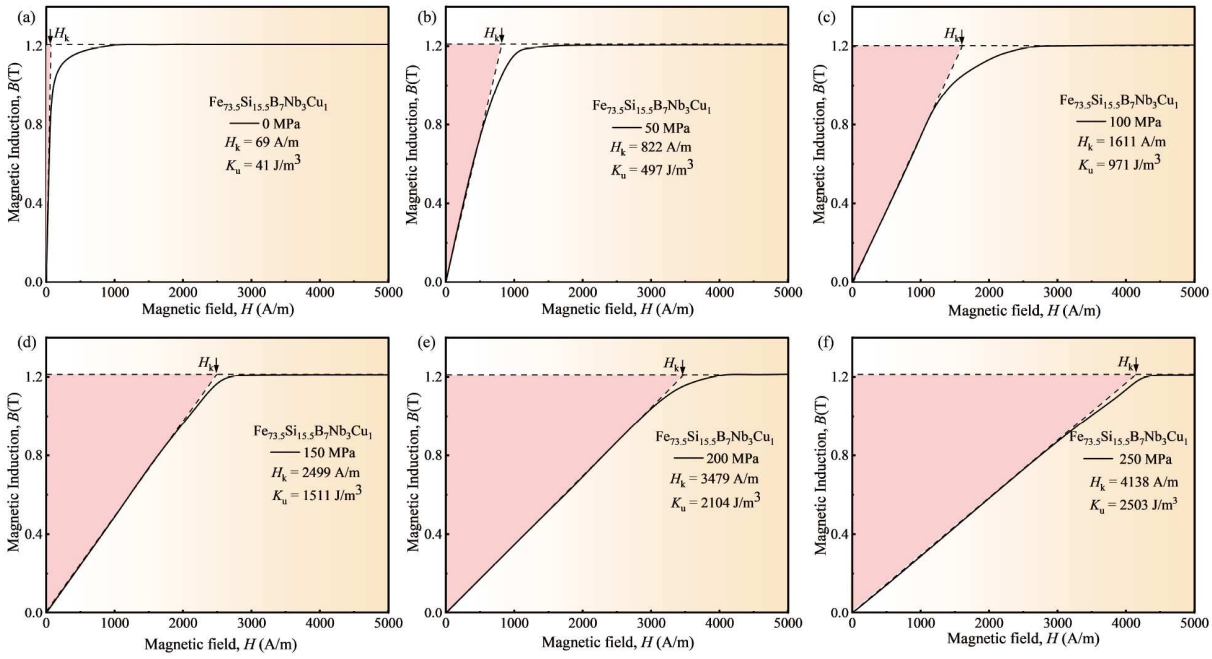

图 11　(网络版彩图) (a) 0 MPa, (b) 50 MPa, (c) 100 MPa, (d) 150 MPa, (e) 200 MPa, (f) 250 MPa下热处理后纳米晶带材的初始磁化曲线

Figure 11　(Color online) Initial magnetization curves of nanocrystalline ribbons subjected to annealing under (a) 0 MPa, (b) 50 MPa, (c) 100 MPa, (d) 150 MPa, (e) 200 MPa, and (f) 250 MPa.

图12给出了不同张应力下热处理后纳米晶条带样品的K_u和μ_e随张应力σ的变化关系. 从图中可以看出, K_u随着σ的增大而增大, 并与σ呈线性关系, 与式(4)相符[15]. 根据TEM明场像得到的晶化体积分数x_{cr}可进一步计算得到α-FeSi相饱和磁致伸缩系数λ_s^{FeSi}为~−8 ppm, 略小于文献所报道数值−1.5–−4 ppm[21].

$$K_u = -\frac{3}{2}\lambda_s^{FeSi}\sigma x_{cr}. \tag{4}$$

在张应力热处理过程中, 张应力越大, 平行张应力方向产生的应变越大, 非晶相与晶相的耦合使α-FeSi相的应变得以保留, 最终在α-FeSi相中产生结构各向异性, 显著影响各向异性场H_k和感生各向异性常数K_u[30]. K_u增大使磁化矢量旋转过程克服横向各向异性所面临的能量势垒提升, 从而降低纳米晶合金的磁导率, 因此μ_e与σ成反比关系.

由图9与表1可知, 平均磁畴宽度d_w随σ增大而减小, 这是由于K_u增大所致. K_u, d_w与畴壁能γ_w之间的关系可表示为[23,26,31]

$$\gamma_w = 4\sqrt{AK_u} = K_u d_w^2 / 2b, \tag{5}$$

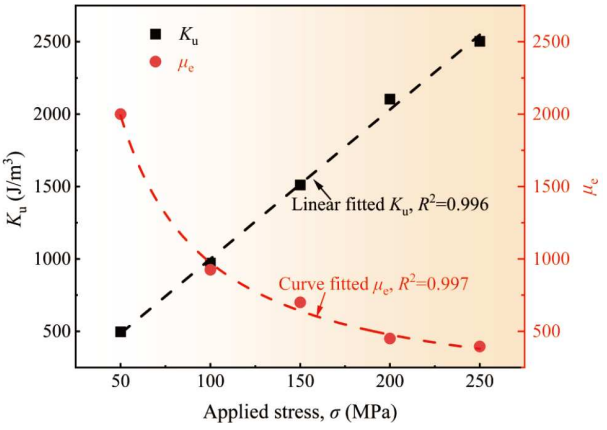

图 12　(网络版彩图)经连续张应力热处理后纳米晶合金的感生磁各向异性K_u与μ_e随张应力σ的变化曲线

Figure 12　(Color online) Variation of induced magnetic anisotropy K_u and μ_e with tensile stress σ for the continuous tension annealed nanocrystalline alloys.

其中, A为合金交换作用系数, 数值为6×10^{-12} J/m, b为带材宽度. 根据实验所测得的d_w与K_u值绘制了d_w与$K_u^{-1/4}$的变化关系, 对其进行线性拟合, 如图13(a)所示. 从图中可以发现, d_w与$K_u^{-1/4}$成正比, 与式(5)相符, 实验测得d_w与理论估计值基本吻合. 图13(b)显示了d_w和γ_w随

张应力σ的变化曲线. 当σ从50 MPa增加至250 MPa时, 相应K_u从497 J/m^{3}增加至2503 J/m^3, 纳米晶合金样品的磁畴宽度d_w从89 μm减小至47 μm, 而畴壁能γ_w从0.7×10^{-3} J/m^{2}增加至1.0×10^{-3} J/m^2. 此时γ_w包含交换能、磁晶各向异性能与退磁能, γ_w增大使交变磁场作用下阻碍畴壁移动的回复力增大, 导致畴壁动态移动的弹性回复系数增大以及畴壁运动弛豫频率增大, 提高恒导磁频率至10 MHz[32]. 此外, 在磁化过程中不同宽度和方向的磁畴转动所需能量不同, 当磁畴结构宽度与取向较为一致时磁化过程磁畴运动对应的阈值磁场接近, 磁畴运动趋于统一, 表现出更好的恒导磁特性[33].

4　结论

本研究采用自主设计制造连续张应力热处理炉实现了对$Fe_{73.5}Si_{15.5}B_7Nb_3Cu_1$合金条带的高频磁特性优化, 探索了连续张应力热处理作用下合金软磁性能与微观结构、磁化过程、磁各向异性间的内在关联性, 主要结论如下.

(1) 连续张应力热处理可有效抑制$Fe_{73.5}Si_{15.5}B_7Nb_3Cu_1$纳米晶合金磁导率的衰减, 提升其恒导磁性能. 当热处理温度为640°C、条带运行速度为1 m/min时, 随着施加张应力增大至250 MPa, 合金μ_e显著降低, 且在1 kHz–10 MHz保持恒定磁导率~400, 高频特性显著增强.

(2) 连续张应力热处理促进晶粒形核并抑制晶粒长大, 提高晶粒数密度并细化晶粒. 当张应力为50–250 MPa时, 感生横向各向异性, 能量密度达2503 J/m^3, 促进规则磁畴形成并沿带材横向排列, 磁化过程由磁畴转动主导.

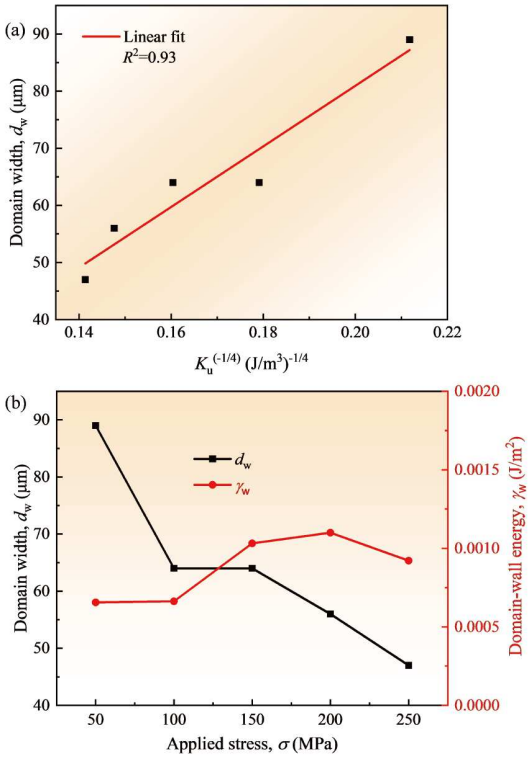

图 13　(网络版彩图)经连续张应力热处理后纳米晶合金的(a)平均磁畴宽度d_w与$K_u^{-1/4}$的线性拟合和(b) d_w与畴壁能γ_w随张应力σ的变化曲线

Figure 13　(Color online) (a) Linear fit between the average domain width d_w and $K_u^{-1/4}$ and (b) variations of d_w and domain-wall energy γ_w with the tensile stress σ for the continuous tension annealed nanocrystalline alloys.

(3) 纳米晶合金的应力感生各向异性K_u与张应力σ呈单调线性递增关系, K_u增大引起畴壁能增加, 并使磁畴宽度减小且趋向一致, 提升磁畴动态运动能量势垒的同时使转动磁化趋于统一, 有效改善高频恒导磁特性.

参考文献

1　Zheng K C, Liu L, Chen Y J, et al. PCB-embedded solenoid inductors with different magnetic cores. J Power Electron, 2024, 24: 1990–1999

2　Ding Y, Wang X, Allen M G. A PCB-integrated inductor with an additively electrodeposited laminated NiFe core for MHz DC-DC power conversion. IEEE Trans Power Electron, 2023, 38: 15157–15161

3　Bai G, Sun J, Zhang Z, et al. Vortex-based soft magnetic composite with ultrastable permeability up to gigahertz frequencies. Nat Commun, 2024, 15: 2238

4　Han L, Maccari F, Souza Filho I R, et al. A mechanically strong and ductile soft magnet with extremely low coercivity. Nature, 2022, 608: 310–316

5　Jiles D. Introduction to Magnetism and Magnetic Materials. Boca Raton: CRC Press, 2015

6　Li Z, Yao K, Li D, et al. Core loss analysis of finemet type nanocrystalline alloy ribbon with different thickness. Prog Nat Sci-Mater Int, 2017, 27:

588–592
7 Zang B, Song L, Parsons R, et al. Influence of thermal history on the crystallization behavior of high-B_s Fe-based amorphous alloys. Sci China-Phys Mech Astron, 2023, 66: 256111
8 Xue D S, Li F S, Fan X L, et al. Bianisotropy picture of higher permeability at higher frequencies. Chin Phys Lett, 2008, 25: 4120–4123
9 Xiao H, Dong Y, He A, et al. Magnetic softness and magnetization dynamics of FeSiBNbCu(P,Mo) nanocrystalline alloys with good high-frequency characterization. J Magn Magn Mater, 2019, 478: 192–197
10 Ding Q, Li J, Zhang R, et al. Effect of transverse magnetic field annealing on the magnetic properties and microstructure of FeSiBNbCuP nanocrystalline alloys. J Magn Magn Mater, 2022, 560: 169628
11 Jiang M, Cai M, Zhou J, et al. Superior high-frequency performances of Fe-based soft-magnetic nanocrystalline alloys. Mater Today Nano, 2023, 22: 100307
12 Kraus L, Závěta K, Heczko O, et al. Magnetic anisotropy in as-quenched and stress-annealed amorphous and nanocrystalline $Fe_{73.5}Cu_1Nb_3Si_{13.5}B_9$ alloys. J Magn Magn Mater, 1992, 112: 275–277
13 Herzer G, Flohrer S, Polak C. Effect of stress annealing on the saturation magnetostriction of nanocrystalline $Fe_{73.5}Cu_1Nb_3Si_{15.5}B_7$. IEEE Trans Magn, 2010, 46: 341–344
14 Herzer G, Budinsky V, Polak C. Magnetic properties of FeCuNbSiB nanocrystallized by flash annealing under high tensile stress. Phys Status Solidi B, 2011, 248: 2382–2388
15 Herzer G. Creep induced magnetic anisotropy in nanocrystalline Fe-Cu-Nb-Si-B alloys. IEEE Trans Magn, 1994, 30: 4800–4802
16 Fang Y Z, Zheng J J, Wu F M, et al. Mesostructural origin of stress-induced magnetic anisotropy in Fe-based nanocrystalline ribbons. Appl Phys Lett, 2010, 96: 092508
17 Suzuki Y, Haimovich J, Egami T. Bond-orientational anisotropy in metallic glasses observed by X-ray diffraction. Phys Rev B, 1987, 35: 2162–2168
18 Ohnuma M, Herzer G, Kozikowski P, et al. Structural anisotropy of amorphous alloys with creep-induced magnetic anisotropy. Acta Mater, 2012, 60: 1278–1286
19 Wang J J. Research on Preparation and Soft Magnetic Properties of Fe-based Nanocrystalline Alloys. Dissertation for Master's Degree. Nanjing: Southeast University, 2023. 65–66
20 Huang H, Tsukahara H, Kato A, et al. Effect of magnetostriction on ac initial permeability of amorphous and nanocrystalline alloys. J Magn Magn Mater, 2024, 592: 171810
21 Kuhnt M, Marsilius M, Strache T, et al. Magnetostriction of nanocrystalline (Fe,Co)-Si-B-P-Cu alloys. Scri Mater, 2017, 130: 46–48
22 Chen P B, Wang A D, Zhao C L, et al. Development of soft magnetic amorphous alloys with distinctly high Fe content. Sci China-Phys Mech Astron, 2017, 60: 106111
23 Herzer G, Budinsky V, Polak C. Magnetic properties of nanocrystalline FeCuNbSiB with huge creep induced anisotropy. J Phys-Conf Ser, 2011, 266: 012010
24 Csizmadia E, Varga L K, Palánki Z, et al. Creep or tensile stress induced anisotropy in FINEMET-type ribbons? J Magn Magn Mater, 2015, 374: 587–590
25 Fan X, He X, Nutor R K, et al. Effect of stress on crystallization behavior in a Fe-based amorphous ribbon: An *in situ* synchrotron radiation X-ray diffraction study. J Magn Magn Mater, 2019, 469: 349–353
26 Herzer G. Modern soft magnets: Amorphous and nanocrystalline materials. Acta Mater, 2013, 61: 718–734
27 Cai M, Wang J, Wang Q, et al. Improvement of soft-magnetic properties for Fe-based amorphous alloys with high saturation polarization by stress annealing. Mater Res Lett, 2023, 11: 595–603
28 Cai M, Guo Z, Li L, et al. Obtaining extremely low coercivity of high B_s FeCoBSiCPCu nanocrystalline alloys through modulation of magnetic anisotropy. J Mater Sci Tech, 2025, 207: 105–112
29 Flohrer S, Schafer R, Mccord J, et al. Magnetization loss and domain refinement in nanocrystalline tape wound cores. Acta Mater, 2006, 54: 3253–3259
30 Ohnuma M, Hono K, Yanai T, et al. Origin of the magnetic anisotropy induced by stress annealing in Fe-based nanocrystalline alloy. Appl Phys Lett, 2005, 86: 152513
31 Kronmüller H, Gröger B. Domains, domain walls and the coercive field of amorphous ferromagnets. J Phys France, 1981, 42: 1285–1292

32 Zhong W D. Ferromagnetism (in Chinese). Beijing: Science Press, 2017 [钟文定. 铁磁学. 北京: 科学出版社, 2017]

33 Coïsson M, Barrera G, Celegato F, et al. Rotatable magnetic anisotropy in $Fe_{78}Si_9B_{13}$ thin films displaying stripe domains. Appl Surf Sci, 2019, 476: 402–411

Modulation of magnetic anisotropy and high-frequency soft-magnetic property of FeSiBNbCu nanocrystalline alloy via continuous tension annealing

GUO Zhijun[1], YANG Xiaoxuan[1], CAI Mingjuan[2*], LI jun[1], FAN Yanzhou[1], LUO Qiang[1] & SHEN Baolong[1*]

[1] *Jiangsu Key Laboratory of Advanced Metallic Materials, School of Materials Science and Engineering, Southeast University, Nanjing 211189, China*

[2] *Anhui Province Key Laboratory of Low-Energy Quantum Materials and Devices, High Magnetic Field Laboratory, Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China*

**Corresponding authors (CAI Mingjuan, email: mjcai@hmfl.ac.cn; SHEN Baolong, email: blshen@seu.edu.cn)*

Soft magnetic materials, playing an important role in integrated transformers and inductors, are crucial in the more-than-Moore era, which contain stable permeability over megahertz (MHz). However, traditional frequency-stable soft magnetic ferrites are unsuitable for integrated circuits due to their low saturation magnetization and temperature instability. Fe-based nanocrystalline alloys exhibit excellent soft-magnetic properties containing the unique nanocrystalline-amorphous dual-phase structure, which shows great potential in strategic emerging industries such as new energy vehicles and 5G communications. Here, continuous tension annealing is utilized to obtain improved nanocrystalline alloy with excellently stable permeability of ~400 when frequencies ranging from 1 kHz to 10 MHz. The uniaxial anisotropy energy is up to 2503 J/m^3 and narrow strip-like domains are formed with equal width and transverse orientation after tension annealing treatment. This study can potentially revolutionize the way for future integrated transformers and induction in modern electronic devices.

Fe-based nanocrystalline alloy, stable permeability, continuous tension annealing, magnetic anisotropy

PACS: 75.50.Tt, 75.75.-c, 81.40.Ef, 75.30.Gw

doi: 10.1360/SSPMA-2024-0415