



POLISH ACADEMY OF SCIENCES - COMMITTEE OF MATERIALS SCIENCE
SILESIA UNIVERSITY OF TECHNOLOGY OF GLIWICE
INSTITUTE OF ENGINEERING MATERIALS AND BIOMATERIALS
ASSOCIATION OF ALUMNI OF SILESIA UNIVERSITY OF TECHNOLOGY

Conference
Proceedings

12th INTERNATIONAL SCIENTIFIC CONFERENCE
ACHIEVEMENTS IN MECHANICAL & MATERIALS ENGINEERING

Ferromagnetyczne kompozytowe rdzenie nanokrystaliczne*

R. Nowosielski^a, S. Griner^a, I. Wnuk^b, P. Sakiewicz^a, P. Gramatyka^a

^aZakład Materiałów Funkcjonalnych, Nanokrystalicznych i Zrównoważonych Technologii Proekologicznych, Instytut Materiałów Inżynierskich i Biomedycznych, Politechnika Śląska ul. Konarskiego 18a, 44-100 Gliwice

^bInstytut Fizyki, Wydział Inżynierii Procesowej, Materiałowej i Fizyki Stosowanej, Politechnika Częstochowska, Al. Armii Krajowej 19, 42-200 Częstochowa

W pracy przedstawiono niektóre wyniki badań dotyczące opracowania materiału kompozytowego o regulowanych właściwościach ferromagnetycznych, opartego na kompozycji silikonowej osnowy i nanokrystalicznych proszków $\text{Fe}_{73,5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13,5}\text{B}_9$. Określono wpływ wielkości cząstek proszku oraz jego udział masowy w osnowie na właściwości kompozytu.

1. WPROWADZENIE

Nanokrystaliczne stopy na osnowie żelaza, otrzymywane na drodze kontrolowanej krystalizacji szkieł metalicznych, charakteryzują się dobrymi właściwościami magnetycznymi, jednak wadą jest ich znaczna kruchość utrudniająca ich praktyczne zastosowanie [1, 2]. Wykorzystując procesy technologiczne, takie jak wysokoenergetyczne mielenie uzyskuje się proszki stopów magnetycznych [3, 4], które przez różnego rodzaju konsolidację można dowolnie kształtować w określone wyroby znajdujące szerokie zastosowanie m.in. w elektronice i elektrotechnice. Metastabilny charakter materiałów nanokrystalicznych w pewnym stopniu ogranicza stosowanie technik spajania proszków wykorzystujących działanie wysokiej temperatury np. spiekania, czy prasowania na gorąco. Następujący w podwyższonej temperaturze wzrost ziaren prowadzi do utraty własności magnetycznych charakterystycznych dla tych materiałów. Dlatego też do najczęstszych metod spajania proszków zalicza się wiązanie materiałem polimerowym, termo lub chemoutwardzalnym [5]. Wytworzone w ten sposób proszkowe rdzenie magnetyczne charakteryzują się m.in. dużą stabilnością czasową, możliwością zmiany wartości współczynnika temperaturowego przenikalności materiału poprzez odpowiedni dobór materiału ferromagnetycznego oraz możliwością regulowania właściwości magnetycznych rdzenia przez zmianę wielkości cząstek, materiału magnetycznego i polimerowej osnowy [6]. Wielkość cząstek proszku dobiera się mając głównie na uwadze zakres częstotliwości pracy (straty na prądy wirowe rosną z kwadratem częstotliwości), jak również wartość

* Część badań została sfinansowana w ramach projektu KBN Nr PBZ/KBN-013/T08/46

przenikalności magnetycznej (w przypadku małych cząstek występuje wewnętrzne od magnesowanie) [7].

Celem niniejszej pracy jest określenie właściwości magnetycznych wytworzonych kompozytów, w zależności od wielkości cząstek nanokrystalicznego proszku $\text{Fe}_{73,5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13,5}\text{B}_9$ oraz ich udziału objętościowego w silikonowej osnowie.

2. PRZEBIEG BADAŃ

Do badań wykorzystano amorficzne taśmy szkła metalicznego $\text{Fe}_{73,5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13,5}\text{B}_9$ o grubości 0,029 mm i szerokości 9 mm, otrzymane metodą ciągłego odlewania stopu na powierzchnię wirującego walca.

W celu uzyskania struktury nanokrystalicznej, stop $\text{Fe}_{73,5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13,5}\text{B}_9$ poddano wygrzewaniu izotermicznemu w temperaturze 823 K przez 1 godzinę w piecu elektrycznym komorowym firmy Thermolyne typu F6020C w atmosferze argonu. Obrobione cieplnie taśmy zostały wstępnie pocięte na odcinki o długości 5 mm, a następnie poddane wysokoenergetycznemu mieleniu w młynku typu „sheaker” (8000 SPEX CertiPrep Mixer/Mill).

Otrzymany w ten sposób proszek rozdzielono na sitach na trzy frakcje: drobne 25÷75 μm , średnie 300÷500 μm oraz duże cząstki 750÷1200 μm , które posłużyły do wykonania kompozytów. Jako środek wiążący wykorzystano dwuskładnikową masę silikonową Dublisil 20 wyprodukowaną przez Dreve-Dentamid GMBH. Komponenty po zmieszaniu i umieszczeniu w formie poddano zagęszczaniu na wibratorze elektromechanicznym. W wyniku tego procesu uzyskano toroidalne rdzenie o średnicy zewnętrznej 34 mm, wewnętrznej 28 mm i wysokości 8,0 mm o następujących udziałach masowych proszku: 85, 80 i 75 %.

Zmiany struktury towarzyszące nanokrystalizacji termicznej oraz mechanicznej, badano na dyfraktometrze rentgenowskim XRD 7 firmy SEIFERT-FPM z zastosowaniem lampy o anodzie miedziowej oraz w transmisyjnym mikroskopie elektronowym Tesla BS 540. Cienkie folie z materiału proszkowego uzyskano poprzez ścienianie elektrochemiczne i ścienianie jonowe.

Obserwacje mikroskopowe kształtu i wielkości materiału proszkowego przeprowadzono w elektronowym mikroskopie skaningowym OPTON DS 540.

Pomiar właściwości magnetycznych (pętle histerezy) proszków oraz uzyskanych kompozytów przeprowadzono na magnetometrze wibracyjnym VSM firmy Lake Shore Cryotronics Inc., natomiast pomiar przenikalności magnetycznej w funkcji indukcji magnetycznej i natężenia pola wykonano przy użyciu systemu pomiarowego FERROMETR.

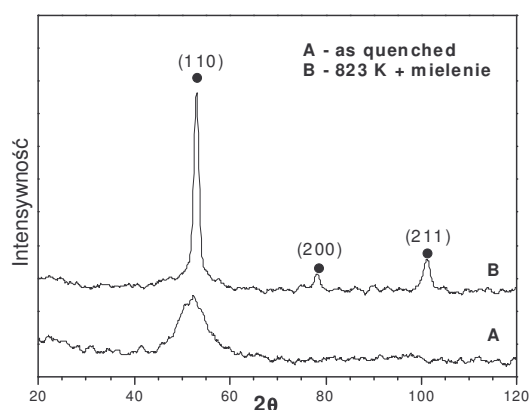
3. WYNIKI BADAŃ I ICH OMÓWIENIE

Badania rentgenowskie pokazały, że struktura szkła metalicznego $\text{Fe}_{73,5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13,5}\text{B}_9$ w stanie wyjściowym była całkowicie amorficzna, co na dyfraktogramie ujawnia się jako szeroko kątowy pik pochodzący od fazy amorficznej (rys. 1). Po procesie wysokoenergetycznego mielenia obrobionej cieplnie taśmy na dyfraktogramie materiału proszkowego (rys. 1) zaobserwowano nanokrystalizację amorficznej osnowy, o czym

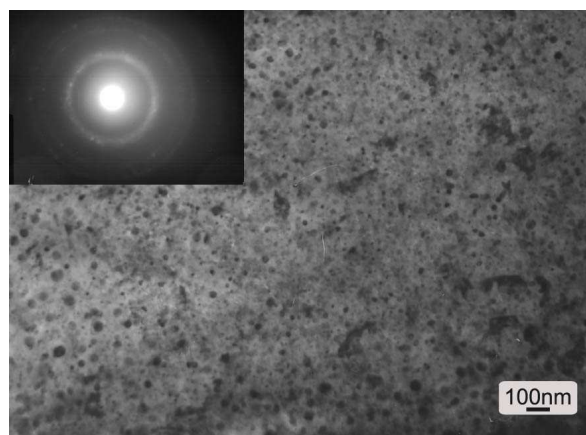
świadczą wąski i wysoki pik (110) od fazy α -Fe o dużej intensywności dla kąta $2\theta = 52,8^\circ$ oraz piki (200) i (211) pochodzące również od fazy α -Fe.

Z przeprowadzonych badań w transmisyjnym mikroskopie elektronowym wynika, że badany stop $\text{Fe}_{73,5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13,5}\text{B}_9$ w stanie bezpośrednio po odlaniu wykazuje strukturę amorficzną, o charakterystycznym kontraście rozproszeniowym. Po wygrzaniu taśmy w temperaturze 823 K przez 1 godzinę, a następnie rozdrobnieniu materiału w procesie wysokoenergetycznego mielenia zaobserwowano powstanie nanokrystalicznej struktury składającej się z licznych sferycznych nanokryształów α -Fe w osnowie amorficznej (rys. 2).

W oparciu o metodę Scherrera, wyznaczono średnią wielkość kryształitów α -Fe w otrzymanym proszku, która wynosi 20 nm.

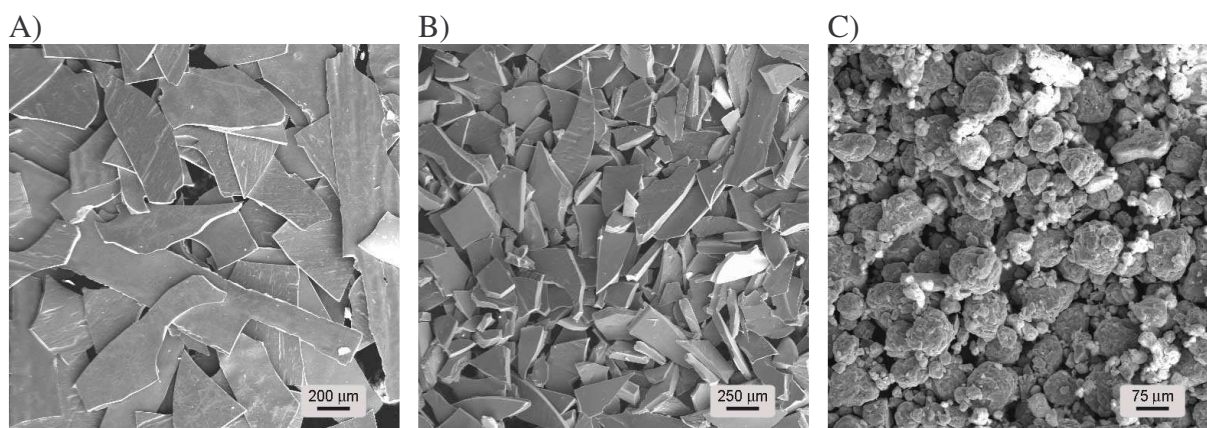


Rys.1. Dyfraktogramy rentgenowskiej analizy fazowej stopu $\text{Fe}_{73,5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13,5}\text{B}_9$



Rys.2. Struktura oraz dyfraktogram proszku $\text{Fe}_{73,5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13,5}\text{B}_9$, TEM

Obserwacje w elektronowym mikroskopie skaningowym materiału proszkowego, rozdzielonego uprzednio na trzy frakcje, wykazały wyraźne różnice w wielkości i kształcie cząstek proszku (rys. 3).



Rys.3. Zdjęcia SEM proszku Finemet rozdzielonego na sitach na frakcje:
A) $750 \div 1200 \mu\text{m}$, B) $300 \div 500 \mu\text{m}$, C) $25 \div 75 \mu\text{m}$.

Największe cząstki proszku badane w eksperymencie mają kształt wydłużonych płatków oraz płytek o ostrych krawędziach, których grubość jest znacznie mniejsza od wymiarów w

dwóch pozostałych kierunkach. Proszki o cząstkach $25\div 75\ \mu\text{m}$ charakteryzują się bardzo zróżnicowanym kształtem - od nieregularnych cząstek po sferyczne o gładkiej powierzchni.

Badania właściwości magnetycznych proszków $\text{Fe}_{73,5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13,5}\text{B}_9$ oraz uzyskanych kompozytów, analizowano na podstawie charakterystyk pętli histerezy (rys. 4). Porównanie właściwości proszków o różnych frakcjach (tablica 1) wskazuje, że najkorzystniejsze wartości uzyskuje materiał o dużych cząstkach. Natężenie pola koercji oraz indukcja nasycenia wynosi $H_C = 13,75\ [\text{A/m}]$, $B_S = 1,21\ [\text{T}]$, natomiast materiał o cząstkach z przedziału $25\div 75\ \mu\text{m}$ charakteryzują się koercją $H_C = 163,2\ [\text{A/m}]$ oraz indukcją maksymalną $B_S = 0,64\ [\text{T}]$.

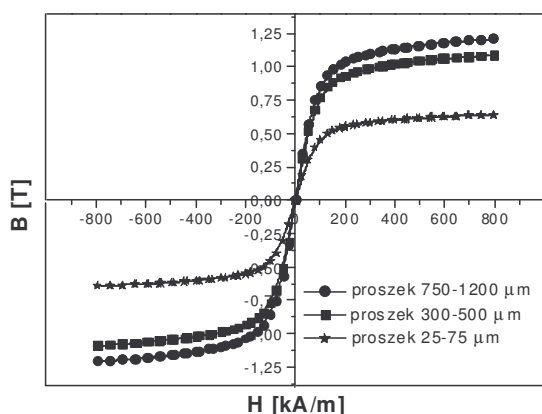
Pomiary przenikalności magnetycznej również wskazują na lepsze właściwości proszków płatkowych (tablica 1). Wartość przenikalności maksymalnej przy natężeniu pola magnetycznego $H = 3\ [\text{kA/m}]$ dla proszków o dużych i średnich cząstkach wynosi odpowiednio $\mu_{\text{max}} = 175$ i $\mu_{\text{max}} = 143$.

Tablica 1

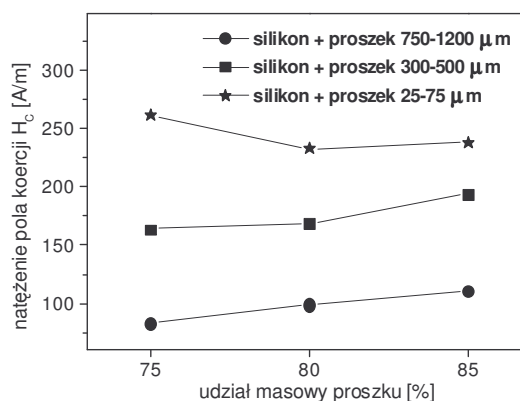
Właściwości magnetyczne proszków $\text{Fe}_{73,5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13,5}\text{B}_9$

Wielkość cząstek proszku [μm]	B_S [T]	B_r [T]	H_C [A/m]	H_{max} [kA/m]	μ_{max} przy $H=3\ [\text{kA/m}]$
750÷1200	1,21	0,0070	13,75	800	175
300÷500	1,06	0,0061	115,3	800	143
25÷75	0,64	0,0038	163,2	800	74

Analiza właściwości magnetycznych wytworzonych rdzeni (tablica 2) pozwala stwierdzić, że kompozyty zbrojone cząstkami o frakcji $750\div 1200\ \mu\text{m}$ charakteryzują się dużą indukcją nasycenia oraz natężeniem pola koercji porównywalnym z niezestalonymi proszkami. W zależności od udziału wagowego spoiwa indukcja wynosi od 1,09 do 0,98 [T], natomiast koercja $83,2\div 110,8\ [\text{A/m}]$ (rys. 5).



Rys.4. Pętle histerezy magnetycznej proszków wykorzystanych do zbrojenia kompozytu



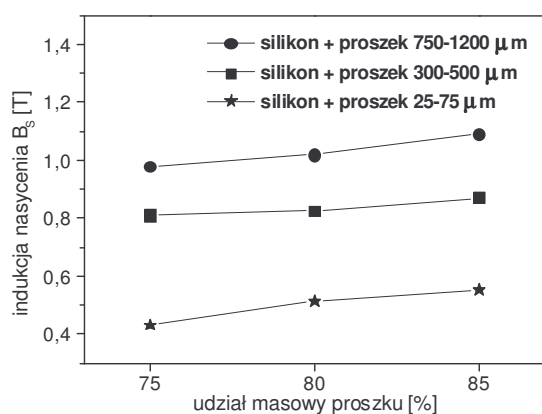
Rys.5. Wpływ udziału masowego proszku na natężenie pola koercji kompozytów

Tablica 2
Własności magnetyczne wytworzonych kompozytów

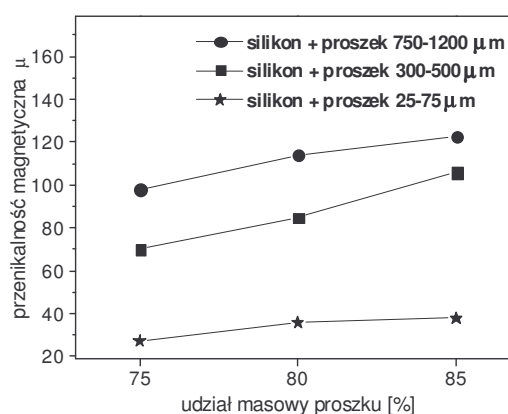
Charakterystyka kompozytów		B_S [T]	B_r [T]	H_c [A/m]	H_{max} [kA/m]	μ_{max} przy $H=3$ [kA/m]
Wielkość cząstek proszku [μm]	Udział masowy proszku [%]					
750÷1200	85	1,09	0,0058	110,8	800	123
	80	1,02	0,0053	98,7	800	114
	75	0,98	0,0052	83,2	800	98
300÷500	85	0,87	0,0054	194,1	800	106
	80	0,82	0,0052	168,5	800	85
	75	0,81	0,0052	164,2	800	70
25÷75	85	0,55	0,0032	238,1	800	38
	80	0,51	0,0032	232,7	800	36
	75	0,43	0,0028	261,3	800	27

Kompozyty wytworzone z drobnych cząstek proszku charakteryzują się znacznie mniejszą niż pozostałe rdzenie, indukcją nasycenia $B_S = 0,43 \div 0,55$ [T] oraz remanencją, której wartość wynosi $B_r = 0,0028 \div 0,0032$ [T] (rys. 6). Ponadto zaobserwowano zwiększenie wartości natężenia pola koercji, która osiąga wartość w przedziale od 232,7 do 261,3 [A/m].

Zwiększenie udziału ferromagnetycznych cząstek w osnowie silikonu prowadzi do uzyskania we wszystkich próbkach większych wartości przenikalności. Najkorzystniejszą wartość przenikalności magnetycznej maksymalnej przy natężeniu pola $H = 3$ [kA/m] uzyskano dla kompozytu zbrojonego największymi cząstkami proszku oraz o najmniejszym udziale masowym silikonu i wynosiła $\mu_{max} = 123$ (rys. 7).



Rys.6. Wpływ udziału masowego proszku na indukcję nasycenia kompozytów



Rys.7. Wpływ udziału masowego proszku na przenikalność magnetyczną przy $H=3$ [kA/m]

Kompozyt zbrojony drobnymi cząstkami proszku, który zawierał najmniejszy udział materiału magnetycznie miękkiego charakteryzuje się przenikalnością magnetyczną maksymalną $\mu_{max} = 27$ mierzoną przy natężeniu pola $H = 3$ [kA/m].

4. PODSUMOWANIE

Uzyskane wyniki badań wskazują, że możliwe jest opracowania materiału kompozytowego o regulowanych właściwościach ferromagnetycznych i elastycznych, opartego na kompozycji sprężystej silikonowej osnowy i nanokrystalicznych proszków $\text{Fe}_{73,5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13,5}\text{B}_9$. Regulację taką można prowadzić poprzez odpowiedni dobór cząstek proszku oraz jego udział w kompozycji. Uzyskiwane w ten sposób różne wartości własności magnetycznych prowadzą do możliwości zastosowania kompozytowych rdzeni magnetycznych w szerokim zakresie częstotliwości prądu.

Zaobserwowano, że kształt i wielkość proszku w dużej mierze decyduje o właściwościach magnetycznych rozdrobnionego stopu. Drobniejsze cząstki materiału proszkowego powodują pogorszenie własności, co wiąże się z procesem odmagnesowania.

Zastosowanie masy silikonowej jako materiału zestalającego proszek wiąże się z wprowadzeniem nowego, niemagnetycznego składnika. Zwiększenie udziału masowego silikonu prowadzi do wyraźnego obniżenia remanencji materiału, oraz w przypadku proszków płatkowych do nieznacznej poprawy natężenia pola koercji, co może wynikać z lepszej izolacji magnetycznej cząstek.

Najlepsze właściwości magnetycznie miękkie wykazuje rdzeń uzyskany z proszku o frakcji 750÷1200 μm i udziale wagowym proszku $\text{Fe}_{73,5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13,5}\text{B}_9$ 85%. Kompozyt ten, charakteryzuje się dużą indukcją nasycenia $B_S = 1,09$ [T], natężeniem pola koercji porównywalnym z luźnym proszkiem $H_C = 83,2$ [A/m] oraz przenikalnością magnetyczną maksymalną $\mu_{\text{max}} = 123$ mierzoną przy natężeniu pola $H = 3$ [kA/m].

LITERATURA

1. R. Nowosielski, S. Griner, P. Gramatyka, J. Koniczny, L.A. Dobrzański: Minimalizacja czasu wytwarzania proszkowego materiału nanokrystalicznego ze szkła metalicznego Fe-Si-B, Proc. 10th Intern. Sci. Conf. AMME'01, Gliwice 2001, s.373
2. R. Nowosielski, S. Griner, P. Gramatyka, J. Koniczny, L.A. Dobrzański: Przemiany zachodzące podczas kombinowanej nanokrystalizacji termiczno – mechanicznej szkła metalicznego Fe-Si-B, Proc. 10th Intern. Sci. Conf. AMME'01, Gliwice 2001, s.379
3. R. Nowosielski, S. Griner, P. Gramatyka: Badania struktury i własności magnetycznych stopu $\text{Fe}_{73,5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13,5}\text{B}_9$ w postaci proszku, Proc. 11th Intern. Sci. Conf. AMME'02, Gliwice 2002
4. R. Nowosielski, S. Griner, P. Gramatyka: Wpływ procesów nanokrystalizacji szkieł metalicznych typu FeCuNbSiB na własności magnetyczne, Archiwum Nauki o Materiałach, (w druku)
5. F. Mazaleyrat, L.K. Varga: J. of Magn. & Magn. Mater. 215-216 (2000) 253
6. M. Soiński: Materiały magnetyczne w technice, Biblioteka COSiW SEP, Warszawa 2000
7. R. Lebourgeois, S. Berenguer, C. Ramiarinjaona, T. Waeckerl: J. of Magn. & Magn. Mater. 254-255 (2003) 191