

粘结巨磁致伸缩颗粒复合材料的 磁致伸缩性能及涡流损耗*

贾傲 张天丽 孟皓 蒋成保

(北京航空航天大学材料科学与工程学院, 北京 100191)

摘要 采用模压成型、室温固化的粘结方法制备了各向同性的粘结 TbDyFe 巨磁致伸缩颗粒复合材料. 对其组织形貌、磁致伸缩性能、动态特性、涡流损耗特性和电阻率进行了测试和分析. 结果表明, TbDyFe 合金颗粒尺寸为 74—150 μm 以及 150—300 μm 时, 树脂与颗粒结合相对紧密, 浸润性良好; 而颗粒尺寸为 0—74 μm 时, 出现明显的不良浸润和颗粒团聚现象. TbDyFe 合金的颗粒尺寸和质量分数对材料的磁致伸缩性能影响较大, TbDyFe 合金颗粒尺寸为 74—150 μm , 质量分数为 90% 时, 该复合材料磁致伸缩率在 400 kA/m 磁场下可达 723.0×10^{-6} . 相比于取向生长的 TbDyFe 合金, 粘结巨磁致伸缩颗粒复合材料的电阻率提高了 5 个数量级, 在 32.7 mT 偏置磁场下声速降低 1/3 以上, 涡流损耗因子在 2×10^5 Hz 条件下的降幅超过 90%, 在 1×10^7 Hz 的高频条件下仍可降低近 50%.

关键词 TbDyFe 合金, 磁致伸缩, 涡流损耗

中图分类号 TG132.2+7

文献标识码 A

文章编号 0412-1961(2009)12-1473-06

MAGNETOSTRICTION AND EDDY CURRENT LOSS OF BONDED GIANT MAGNETOSTRICTIVE PARTICLE COMPOSITES

JIA Ao, ZHANG Tianli, MENG Hao, JIANG Chengbao

School of Materials Science and Engineering, Beihang University, Beijing 100191

Correspondent: JIANG Chengbao, professor, Tel: (010)82338780, E-mail: jiangcb@buaa.edu.cn

Supported by National Natural Science Foundation of China (No.60534020) and Specialized Research

Fund for the Doctoral Program of Higher Education (No.20080061026))

Manuscript received 2009-05-26, in revised form 2009-09-29

ABSTRACT Rare-earth-iron alloy TbDyFe is an advanced magnetostrictive material to date because of its giant magnetostriction, high energy density, and rapid response at room temperature and low magnetic field. Due to the high sound velocity and eddy current losses of TbDyFe alloy under high frequency, its applications are limited. The bonded giant magnetostrictive materials are expected to exhibit high resistivity to reduce the eddy current loss. In the present study, the bonded giant magnetostrictive materials were prepared by mixing TbDyFe alloy particles with epoxy resin. The electrical resistivity, impedance and eddy current losses of the bonded materials have been primarily analyzed. The optimized magnetostriction is observed to be 723.0×10^{-6} at magnetic field of 400 kA/m in the bonded material with particle mass fraction of 90% and particle size of 74—150 μm . TbDyFe particle size and mass fraction show a significant influence on the magnetostriction of the bonded materials. Compared to the advanced oriented TbDyFe alloy, the electrical resistivity is 5 orders of magnitude greater, and the sound velocity is 1/3 lower under the applied magnetic field of 32.7 mT, and the eddy current loss factor is reduced by 90% at 2×10^5 Hz, and by nearly 50% at 1×10^7 Hz.

KEY WORDS TbDyFe alloy, magnetostriction, eddy current loss

* 国家自然科学基金项目 60534020 和高等学校博士学科点专项科研基金项目 20080061026 资助

收到初稿日期: 2009-05-26, 收到修改稿日期: 2009-09-29

作者简介: 贾傲, 男, 1984 年, 硕士生

以 TbDyFe 合金为代表的巨磁致伸缩材料具有众多优异性能, 如磁致伸缩应变量大、居里温度高、工作性能稳定、机电耦合系数大、机械响应速度快等^[1-3]. 20 世纪末, 为了解决 TbDyFe 合金在外加高频交变磁场作用下产生的巨大的涡流效应, Sandlund 等^[4] 利用粘结方法制

备了巨磁致伸缩颗粒复合材料 (giant magnetostrictive particle composite, 简称 GMPC). 粘结相树脂可限制涡流的产生, 同时可使材料的力学性能大幅提高; 此方法制备的粘结 GMPC 容易被加工成复杂的形状, 其磁致伸缩性能可接近取向生长的 TbDyFe 合金^[5-8]. McKnight 和 Carman^[9] 采用 $\langle 112 \rangle$ 取向 TbDyFe 合金作为原料, 在真空环境下制备出粘结 GMPC 材料, 其磁致伸缩率可达到 950×10^{-6} . 此外, 粘结 GMPC 还具有优良的高频性能^[10,11].

目前对粘结 GMPC 的研究主要集中在磁致伸缩性能方面, 而对电阻率和声速等方面的研究却少有报道, 对涡流损耗的研究也局限于对截止频率的测定^[12,13], 粘结 GMPC 在交变磁场下涡流损耗特性随频率的变化规律尚不清楚.

本文主要研究了 TbDyFe 合金颗粒尺寸、质量分数和成型压力对粘结 GMPC 磁致伸缩性能的影响; 对粘结 GMPC 的电阻率、交流阻抗和交流磁导率等特性进行了测试和计算, 得到了粘结 GMPC 材料的电阻率、声速和涡流损耗等的量化值, 并将它们与取向生长的 TbDyFe 合金进行了比较.

1 实验方法

实验所用原料为纯度 99.9% 的 Fe 以及纯度 99.99%

的 Tb 和 Dy, 按照 $Tb_{0.3}Dy_{0.7}Fe_{1.95}$ 合金的目标成分 (考虑稀土元素 Tb 和 Dy 在熔炼时的烧损以及热处理时的挥发损失, 增加 5%) 配料后, 在真空度为 4×10^{-3} Pa 的非自耗真空电弧炉中反复熔炼 4 次, 制备成 TbDyFe 母合金锭. 将铸锭在 Ar 保护下进行 $900\text{ }^{\circ}\text{C}/4\text{ h}$ 热处理后随炉冷却. 将热处理后的铸锭在真空手套箱中使用研磨钵手工破碎, 并将合金颗粒按 $0-74\text{ }\mu\text{m}$, $74-150\text{ }\mu\text{m}$ 和 $150-300\text{ }\mu\text{m}$ 3 种不同粒度范围筛分. 以多乙烯多胺为固化剂, E-44 环氧树脂为粘结剂, 将 TbDyFe 合金颗粒与粘结剂按照不同的质量配比装入模具, 在 769YP-60E 压型机上压制成型, 压力分别为 200, 300 和 450 MPa, 保压时间为 30 min. 压制后在室温下固化 24 h 后脱模得到巨磁致伸缩颗粒复合材料. 利用 BM51X 型金相显微镜 (OM) 观察粘结 GMPC 的微观组织形貌; 采用 WKCZ-1 型磁致伸缩测试系统对试样的磁致伸缩性能进行测试; 用 SI1260 型阻抗分析仪分析试样的动态特性; 用 Agilent-4294A 型磁谱仪和 UT33A 型万用表分析测量粘结 GMPC 的涡流损耗特性和电阻率.

2 实验结果及讨论

2.1 粘结 GMPC 的显微组织分析

图 1 是用颗粒尺寸为 $0-74\text{ }\mu\text{m}$ 的 TbDyFe 合金颗粒为原料, 在 450 MPa 成型压力下制备得到的 TbDyFe

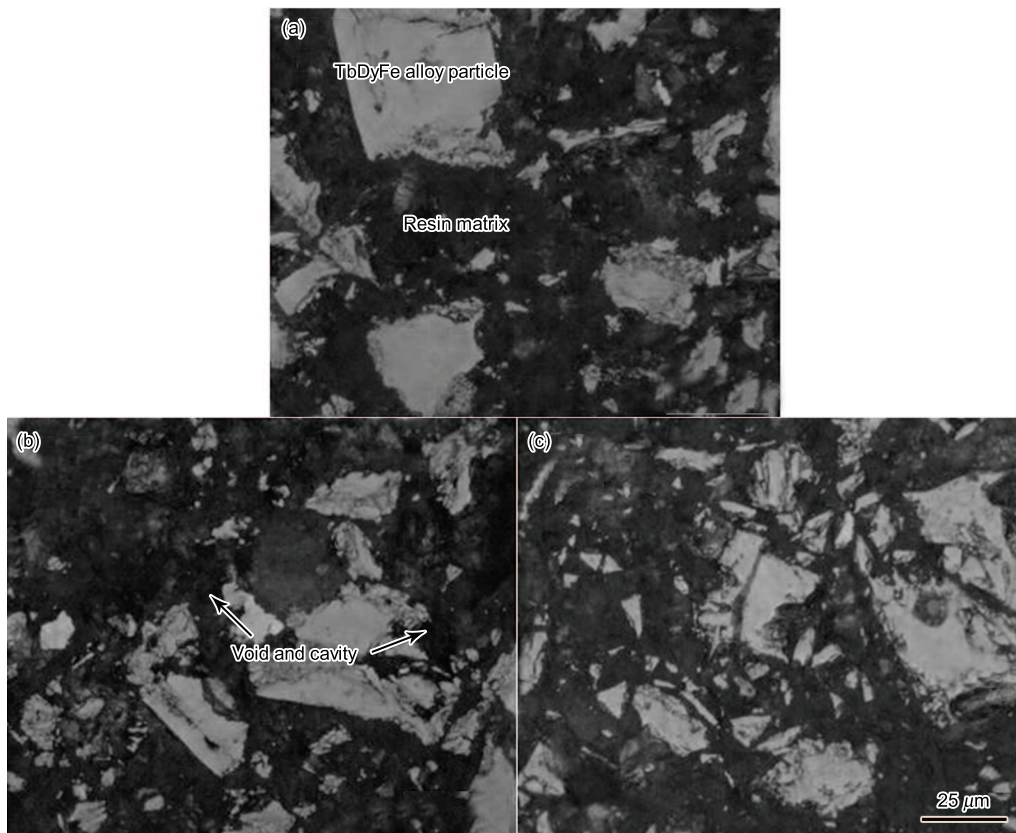


图 1 TbDyFe 合金含量 (质量分数) 不同的粘结 GMPC 的金相照片

Fig.1 Metallographs of bonded GMPC samples with 85%(a), 90%(b)and 93%(c)mass fractions of TbDyFe alloy particles with diameters of $0-74\text{ }\mu\text{m}$

合金含量(质量分数)不同的粘结 GMPC 的金相照片. 图中颜色较浅的部分为 TbDyFe 合金颗粒, 颜色较深的部分为树脂基体. 可以明显观察到, 图 1a 显示由于试样中树脂含量较高, TbDyFe 颗粒浸润性相对较好; 而图 1b 和 c 显示部分合金颗粒存在不良浸润现象, 存在如图 1b 中所显示的孔洞.

图 2 是用不同尺寸的 TbDyFe 合金颗粒在 450 MPa 成型压力下制备的合金质量分数为 90% 的粘结 GMPC 的金相照片. 从图 2a 中可明显观察到, 颗粒较细的合金润湿不良, 产生孔洞及疏松; 而从图 2b 和 c 中可以看出, 在合金颗粒尺寸较大时, 颗粒分布相对均匀, 与树脂结合紧密, 浸润性良好. 此外, 较细的合金颗粒出现团聚现象, 这些团聚的颗粒由于没有被树脂包裹, 因而结合力较弱, 呈脆性特征.

2.2 粘结 GMPC 的磁致伸缩性能

本文采用标准应变片法对粘结 GMPC 的磁致伸缩性能进行了测试, 测量方向与磁场方向一致. 图 3 示出的是在 450 MPa 的成型压力下制备得到的不同合金含量、不同颗粒尺寸的粘结 GMPC 的磁致伸缩性能与磁场强度的关系曲线. 可以看出, 当合金含量较低(质量分数 85%)时, 磁性颗粒间距过大, 树脂阻碍了磁致伸缩的传递, 导致试样整体磁致伸缩性能较差; 而当合金含量过高(质量分

数 93%) 时, 由于颗粒在低含量粘结剂中的润湿行为很差、结合力弱且不易混合均匀, 因此产生大量孔洞, 导致材料整体磁致伸缩性能的降低; 合金颗粒质量分数为 90% 时, 合金颗粒和环氧树脂质量配比适中, 粘结 GMPC 表现出最优的磁致伸缩性能.

由图 3 还可以看出, 当合金颗粒的质量分数为 90% 时, 合金颗粒尺寸范围为 74—150 μm 和 150—300 μm 时粘结 GMPC 均表现出较好的磁致伸缩性能, 在外磁场为 400 kA/m 时, 磁致伸缩率分别达到 723.0×10^{-6} 和 711.1×10^{-6} , 而颗粒尺寸 0—74 μm 的试样磁致伸缩性能较差, 同样条件下磁致伸缩率仅为 515.8×10^{-6} . 这是由于颗粒尺寸为 74—150 μm 以及 150—300 μm 的试样浸润性良好(图 2b 和 c), 而颗粒尺寸 0—74 μm 的试样中, 细颗粒的不良浸润和团聚行为导致试样磁致伸缩性能降低. 另外, 制备过程中合金颗粒的氧化也会对磁致伸缩性能产生一定的影响, 而颗粒细小的合金更容易被氧化.

图 4 为 TbDyFe 合金颗粒尺寸范围为 97—200 μm , 质量分数 90%, 成型压力分别为 200, 300 和 450 MPa 时粘结 GMPC 磁致伸缩性能与磁场强度的关系曲线. 由图可见, 随着成型压力增大, 试样的磁致伸缩率仅有小幅增加, 在 400 kA/m 的外磁场下分别为 598.8×10^{-6} , 599.2×10^{-6} 和 623.8×10^{-6} . 说明在成型压力为

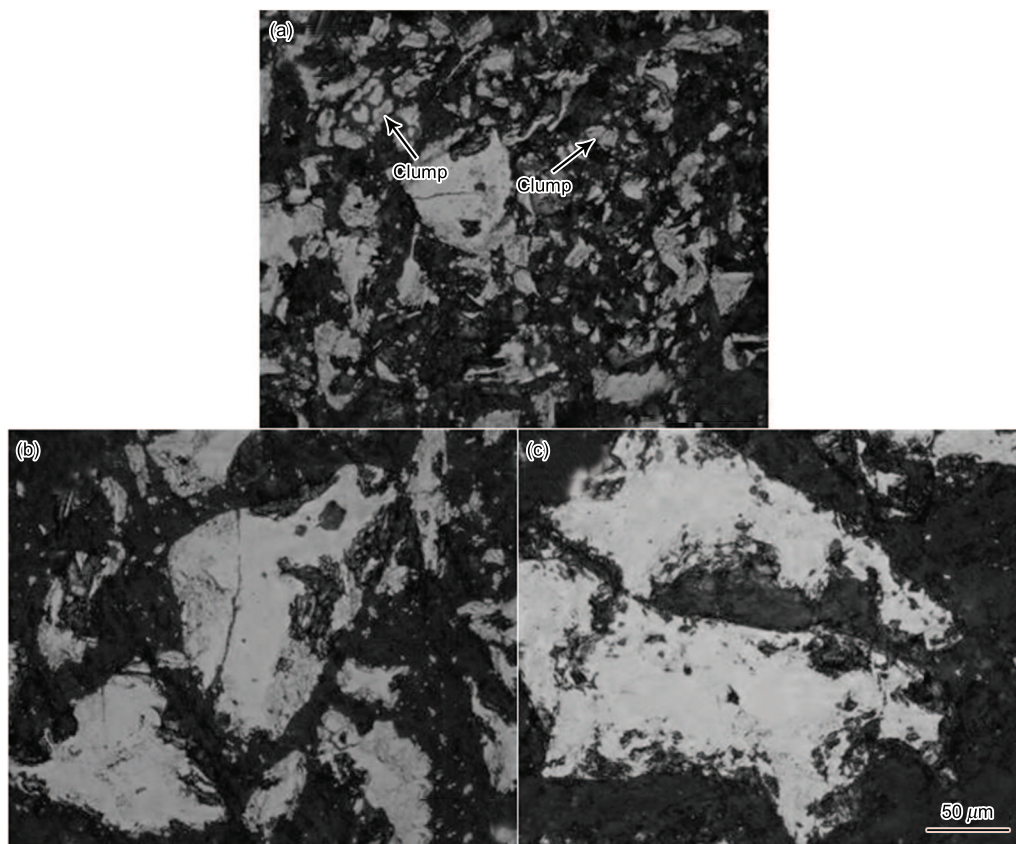


图 2 合金颗粒尺寸不同的粘结 GMPC 金相照片

Fig. 2 Metallographs of bonded GMPC samples with 90% mass fraction of TbDyFe particles with diameters of 0—74 μm (a), 74—150 μm (b) and 150—300 μm (c)

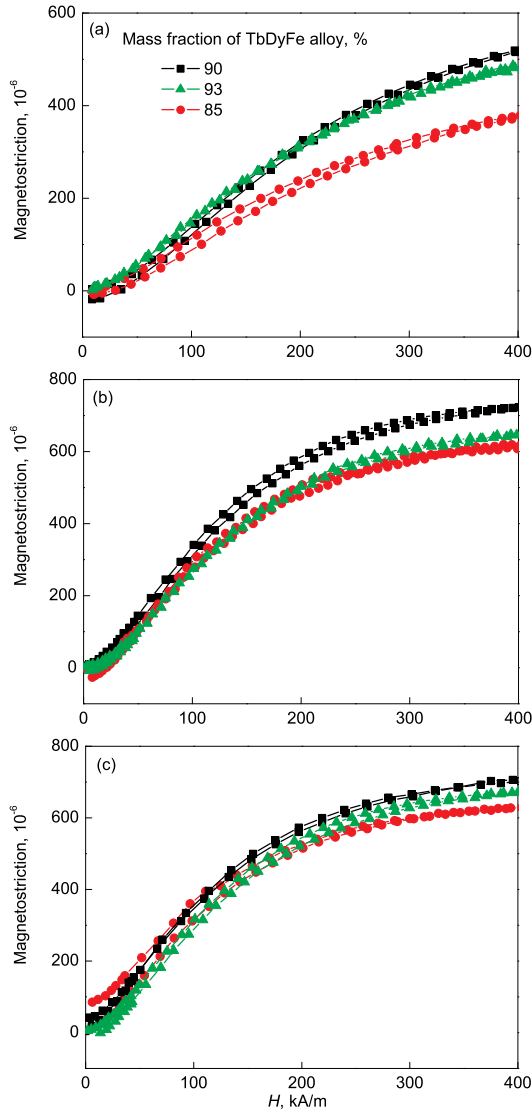


图 3 不同合金含量、不同颗粒尺寸的粘结 GMPC 的磁致伸缩性能曲线
 Fig.3 Magnetostriction vs applied field H curves for bonded GMPC samples with different mass fractions of TbDyFe alloy particles with diameters of 0—74 μm (a), 74—150 μm (b) and 150—300 μm (c)

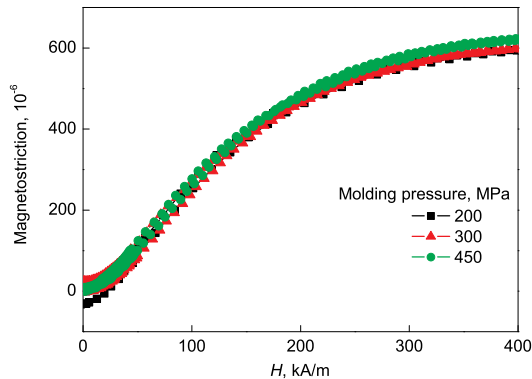


图 4 不同成型压力的粘结 GMPC 磁致伸缩性能曲线
 Fig.4 Magnetostriction vs applied field H curves for bonded GMPC samples with 90% mass fraction of TbDyFe alloy particles with diameters of 97—200 μm molded at different pressures

200 MPa 时, 复合材料中已基本实现合金颗粒与粘结剂之间的密实结合.

2.3 粘结 GMPC 的动态特性

电声共振法^[14]是表征磁致伸缩材料动态特性的一种常用方法. 该方法利用磁致伸缩材料在直流偏置磁场与交流激励磁场的共同作用下发生谐振, 通过阻抗频率特性曲线给出的共振频率 f_r 和反共振频率 f_a , 求得材料的动态机电耦合系数 k_{33} 、声速和弹性模量 E . 图 5 为 Tb-DyFe 合金颗粒尺寸范围为 0—74 μm , 质量分数为 90%, 成型压力为 450 MPa 的粘结 GMPC 在不同偏置电压下的交流阻抗频率特性曲线. 在 15 V 偏置电压下, 由图 5 中曲线获得的 f_r 和 f_a 分别为 1.912×10^4 和 1.987×10^4 Hz.

机电耦合系数 k_{33} 、声速 v 和弹性模量 E 可通过测得的 f_r 和 f_a 分别按下列各式计算:

$$k_{33} = \pi \sqrt{\frac{1}{8} \left(1 - \frac{f_r^2}{f_a^2}\right)} \quad (1)$$

$$V = 2L f_r \quad (2)$$

$$E = 4\rho(L f_r)^2 \quad (3)$$

式中, L 为试样的长度, ρ 为试样的密度.

表 1 为该试样在偏置电压分别为 10 和 15 V (对应的偏置磁场分别为 32.7 和 49.1 mT) 时测得的共振频率 f_r 和反共振频率 f_a , 以及通过计算获得的机电耦合系数 k_{33} 、声速 v 和弹性模量 E . 可以看出, 随着偏置磁场的增加, 粘结 GMPC 的机电耦合系数有所下降, 声速和弹性模量有一定幅度的上升. 白夏冰等^[15,16]及周寿增和赵青^[17]的研究指出, 在偏置磁场分别为 32.7 和 49.1 mT 时, 铸态 TbDyFe 合金的机电耦合系数 k_{33} 分别为 0.319 和 0.326, 而声速 v 超过 2400 m/s. 本文中粘结 GMPC 的机电耦合系数与铸态 TbDyFe 合金相近, 声速则降低

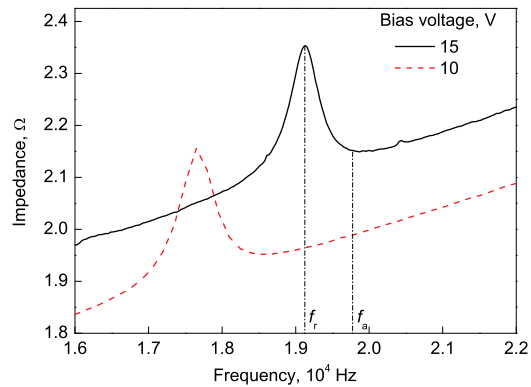


图 5 粘结 GMPC 在不同偏置电压下的交流阻抗曲线
 Fig.5 Impedance curves for bonded GMPC samples with 90% mass fraction of TbDyFe alloy particles with diameters of 0—74 μm (f_r —resonance frequency, f_a —anti-resonance frequency) molded at 450 MPa pressure

表 1 不同偏置电压下粘结 GMPC 的 f_r , f_a , k_{33} , v 和 E
 Table 1 f_r , f_a , k_{33} , v and E of bonded GMPC sample under different bias voltages

Bias voltages	f_r	f_a	K_{33}	v	E
V	10^4 Hz	10^4 Hz		m/s	GPa
10	1.765	1.855	0.342	1588.5	12.455
15	1.912	1.987	0.302	1720.8	14.584

Note: k_{33} —electromechanical coupling coefficient, v —sound velocity, E —Young’s modulus

了 1/3 左右, 这将大幅改善粘结 GMPC 在换能器应用中的低频特性。

2.4 粘结 GMPC 的电阻率及涡流损耗

为了研究合金颗粒的质量分数和颗粒尺寸对试样电阻性能的影响, 将切割后的圆柱状试样上下表面涂抹导电胶, 利用万用表测量了试样的电阻, 并计算电阻率。颗粒尺寸范围为 0—74 μm , 合金含量为 93% 和 90% 的试样的电阻率分别为 0.3363 和 1.1613 $\Omega\cdot\text{m}$ 。可见, 随合金含量提高, 巨磁致伸缩颗粒复合材料的电阻率降低。合金含量为 90%, 颗粒尺寸范围为 0—74 μm , 74—150 μm 和 150—300 μm 的粘结 GMPC 的电阻率分别为 1.1613, 0.3817 和 0.0175 $\Omega\cdot\text{m}$ 。可见, 随着合金颗粒尺寸的增大, 巨磁致伸缩颗粒复合材料的电阻率降低, 这是由于试样中粒度较大的合金颗粒间相互接触并形成电通路的概率较高所致。本文中粘结 GMPC 的电阻率比取向 TbDyFe 合金的电阻率 (6×10^{-7} $\Omega\cdot\text{m}$ ^[18]) 提高了 5 个数量级以上。

粘结 GMPC 为软磁材料, 其磁滞损耗和剩余损耗可以忽略不计, 因此可以采用表征涡流损耗角 θ 的方法来反映粘结 GMPC 的涡流损耗, 即可定义 $\tan\theta$ 为损耗因子。损耗因子是表征软磁材料涡流损耗的重要参数, 损耗因子越大, 表明软磁材料在交变磁场下涡流损耗越大。制备一定长度的圆环状试样作为磁芯, 利用磁谱仪测量试样的损耗电阻 R_s 和磁芯放入线圈内而引起的电感增量 L_s 。通过以下各式可以计算试样的弹性磁导率 μ' 和粘性磁导率 μ'' , 并进一步求得试样的损耗因子, 即损耗角的正切值 $\tan\theta$ ^[19]

$$\mu' = \frac{\pi D}{\mu_0 N^2 S} L_s \quad (4)$$

$$\mu'' = \frac{\pi D}{\mu_0 N^2 S \omega} R_s \quad (5)$$

$$\tan\theta = \mu'' / \mu' \quad (6)$$

式中, D 为磁芯的横截面平均直径, N 为磁芯上所绕磁化线圈的匝数, S 为磁芯横截面积, ω 为交变磁场的圆频率。

图 6a 为成型压力 450 MPa, 合金颗粒尺寸 150—300 μm , 质量分数分别为 85% 和 90% 的粘结 GMPC 以及铸态 TbDyFe 合金的弹性磁导率 μ' 和粘性磁导率 μ'' 与频率的关系曲线。可以看出, 粘结 GMPC 的弹性磁

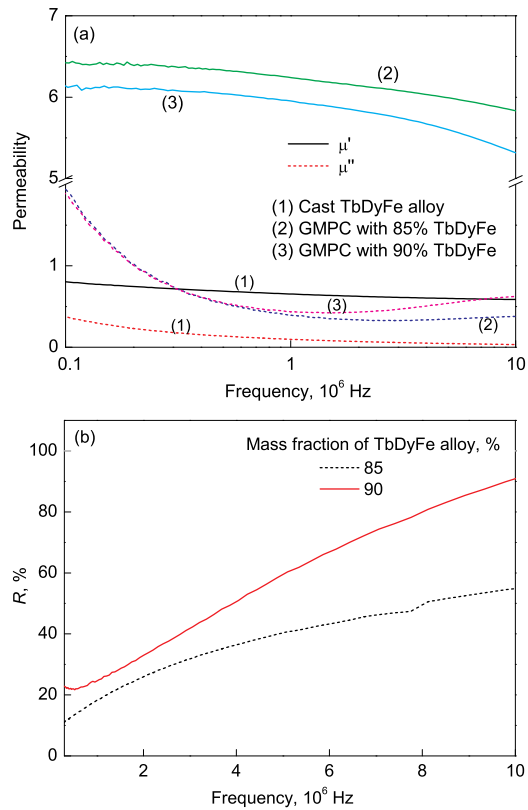


图 6 不同合金质量分数的粘结 GMPC 和 TbDyFe 合金的磁导率及涡流损耗因子的对比

Fig.6 Comparison between the elastic permeability μ' and between the viscous permeability μ'' (a) and between the ratio of eddy current loss factors (b) of bonded GMPC and cast TbDyFe alloy (R —the ratio of $\tan\theta$ of GMPC to $\tan\theta$ of cast TbDyFe alloy)

导率相对于铸态 TbDyFe 合金大幅提高, 且随着树脂含量的增加而增加; 而粘结 GMPC 的粘性磁导率相对于铸态 TbDyFe 合金变化不大。由式 (6) 可知, 粘结 GMPC 的损耗因子相对于铸态 TbDyFe 合金大幅降低。

以铸态 TbDyFe 合金的损耗因子为基准, 合金质量分数为 85% 和 90% 的粘结 GMPC 在不同频率下的损耗因子与铸态 TbDyFe 合金损耗因子的比值 R 如图 6b 所示。由图 6b 可以看出, 随着频率的增加, 粘结 GMPC 的损耗因子与铸态 TbDyFe 合金的差别减小; 在频率为 2.06×10^5 Hz 时, 合金质量分数为 85% 的粘结 GMPC 的损耗因子为铸态 TbDyFe 合金的 9.73%, 即使在 1.03×10^7 Hz 的高频条件下, 粘结 GMPC 损耗因子仍然只有 TbDyFe 合金的 55.35%; 合金质量分数为 90% 的粘结 GMPC 在低频时的损耗因子与铸态 TbDyFe 合金相比下降明显, 而在高频条件下与 TbDyFe 合金涡流损耗区别不明显, 主要是由于合金质量分数较高的试样中合金颗粒之间接触的概率更大, 更容易形成大的涡流回路, 导致了试样整体涡流损耗的大幅上升。

3 结论

(1) 粘结 GMPC 中, TbDyFe 合金颗粒尺寸为 74—

150 μm 以及 150—300 μm 时, 树脂与颗粒结合相对紧密, 浸润性良好; 而颗粒尺寸为 0—74 μm 时, 试样中出现明显的不良浸润和颗粒团聚现象.

(2) 粘结 GMPC 中颗粒尺寸、质量分数和成型压力对其磁致伸缩性能均有影响, 当合金颗粒尺寸为 74—150 μm 、质量分数为 90%、成型压力为 450 MPa 的粘结 GMPC 磁致伸缩性能表现最优, 磁致伸缩率达到 723.0×10^{-6} .

(3) 粘结 GMPC 电阻率比 TbDyFe 合金提高 5 个数量级, 且随合金颗粒含量提高而降低, 随颗粒尺寸减小而升高, 粘结 GMPC 的声速较 TbDyFe 合金降低了 1/3 左右.

(4) 在频率为 2.06×10^5 Hz 时, 成型压力 450 MPa, 合金颗粒尺寸 150—300 μm , 质量分数为 85% 的粘结 GMPC 的损耗因子较 TbDyFe 合金降低 90% 以上, 树脂的加入使巨磁致伸缩颗粒复合材料的涡流损耗大幅降低.

参考文献

- [1] Jiang C B, Zhao Y, Xu H B. *Acta Metall Sin*, 2004; 40: 373
(蒋成保, 赵岩, 徐惠彬. 金属学报, 2004; 40: 373)
- [2] Verhoeven J D, Gibson E D, McMaster O D, Ostenson J E. *Metall Mater Trans*, 1990; 21A: 2249
- [3] Jiang C B, Zhao Y, Xu H B. *Acta Metall Sin*, 2004; 40: 378
(蒋成保, 赵岩, 徐惠彬. 金属学报, 2004; 40: 378)
- [4] Sandlund L, Fahlander M, Cedell T, Clark A E, Restorff J B, Wun-Fogle M. *J Appl Phys*, 1994; 75: 5656
- [5] Nersessian N, Or S W, Carman G P. *J Magn Magn Mater*, 2003; 263: 101
- [6] Altin G, Ho K K, Henry C P, Carman G P. *J Appl Phys*, 2007; 101: 33537
- [7] Kwon O Y, Kim H Y, Hong S H. *J Appl Phys*, 2006; 100: 123905
- [8] Duenas T A, Carman G P. *J Appl Phys*, 2000; 87: 4696
- [9] McKnight G P, Carman G P. *Smart Struct Mater*, 2001; 4333: 178
- [10] Or S W, Nersessian N, McKnight G P, Carman G P. *J Appl Phys*, 2003; 93: 8510
- [11] Pasquale M, Lim S H. *J Appl Phys*, 1999; 85: 4633
- [12] Jiang M H, Gu Z F, Cheng G. *Acta Mater Comp Sin*, 2008; 25: 73
(江民红, 顾正飞, 成钢. 复合材料学报, 2008; 25: 73)
- [13] Hudson J, Busbridge S C, Piercy A R. *Sens Actuators*, 2000; 81A: 294
- [14] Zhu X X, Zhang T L, Jiang C B. *Acta Metall Sin*, 2009; 45: 455
(朱小溪, 张天丽, 蒋成保. 金属学报, 2009; 45: 455)
- [15] Bai X B, Jiang C B, Gong S K. *Chin J Mater Res*, 2006; 20: 607
(白夏冰, 蒋成保, 宫声凯. 材料研究学报, 2006; 20: 607)
- [16] Bai X B, Ma T Y, Jiang C B. *Acta Metall Sin*, 2008; 44: 1231
(白夏冰, 马天宇, 蒋成保. 金属学报, 2008; 44: 1231)
- [17] Zhou S Z, Zhao Q. *Chin J Mater Res*, 2001; 15: 135
(周寿增, 赵青. 材料研究学报, 2001; 15: 135)
- [18] McKnight G P. *PhD thesis*, University of California, Los Angeles, 2002
- [19] Mei W Y. *Measurement of Dynamic Magnetic Property*. Beijing: China Machine Press, 1985: 199
(梅文余. 动态磁性测试. 北京: 机械工业出版社, 1985: 199)