АКУСТИЧЕСКИЙ ЖУРНАЛ

Том XVII 1971 Вып. 2

УДК 534.232

К ВОПРОСУ О ТЕРМОМАГНИТНОЙ ОБРАБОТКЕ МАГНИТОСТРИКЦИОННЫХ ФЕРРИТОВ

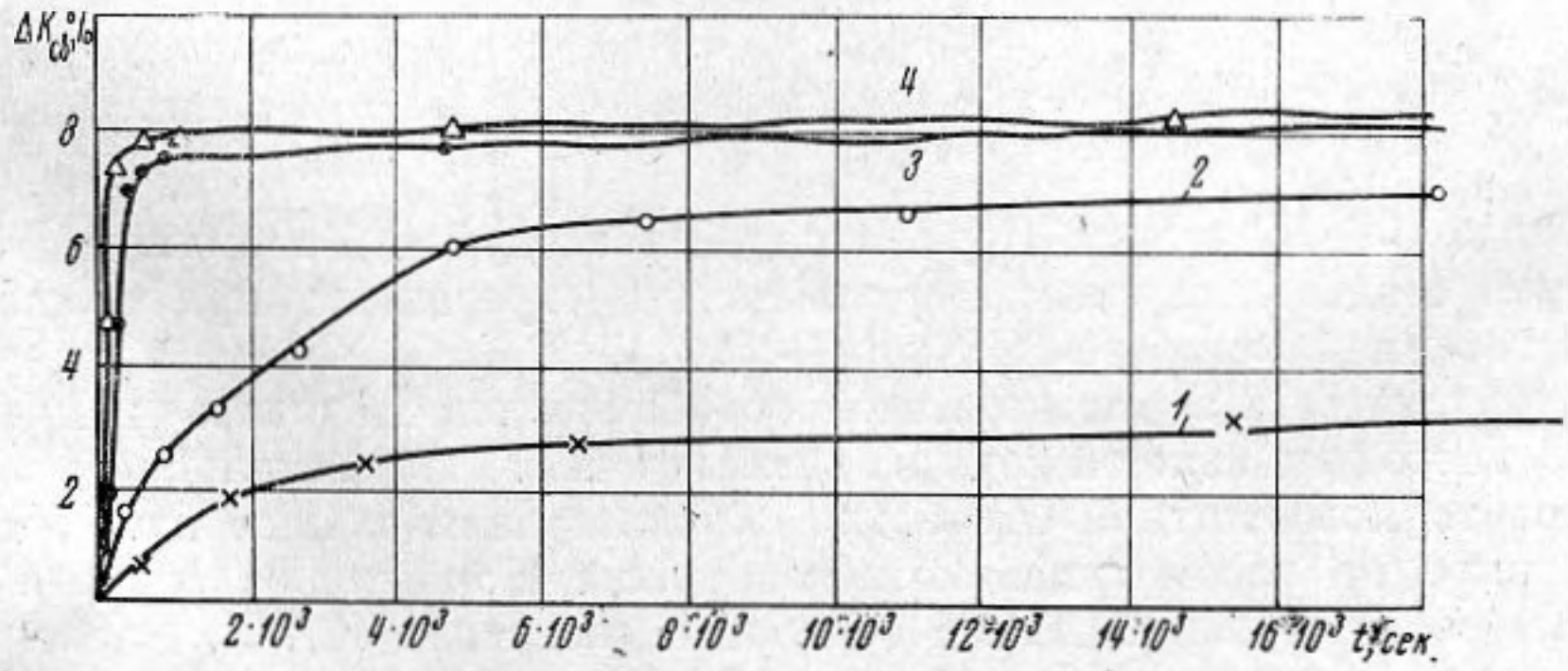
Р. И. Понкратьева, Л. А. Преснова

Рассмотрен механизм повышения в результате термомагнитной обработки основной константы магнитомеханического преобразователя — коэффициента магнитомеханической связи ($K_{св}$). Приведены данные об устойчивости $K_{св}$ ферритовых преобразователей, работающих на остаточной намагниченности, по отношению к внешнему магнитному полю. По полученным значениям энергии активации и времени релаксации процесса дана оценка временной устойчивости параметров таких преобразователей.

Магнитострикционный преобразователь, работающий на остаточной намагниченности, имеет ряд преимуществ по сравнению с работающим при внешнем подмагничивающем поле. Основной задачей при конструировании этого типа преобразователей является повышение устойчивости их параметров [1, 2]. Наиболее эффективный способ повышения устойчивости магнитострикционных параметров заключается в проведении термомагнитной обработки, в результате которой в поликристаллическом материале возникает наведенная анизотропия, вызванная направленными диффузионными процессами [1].

Характер протекания процесса термомагнитной обработки описывается известным уравнением: $\tau = \tau_\infty e^{E/kT}$, где E — энергия активации процесса, k — постоянная Больцмана, T — температура термомагнитной обработки, τ — время, необходимое для полного (или частичного) прохождения диффузионного процесса при температуре T, τ_∞ — постоянная.

Как правило, энергия активации при термомагнитной обработке определяется либо по измерению крутящих моментов, либо по измерению прямоугольности петли гистерезиса. В работе [3] для ферритов, не содержащих ионов кобальта, получена энергия активации 1,6—1,9 *эв*. Энергия активации кобальтзамещенного магнетита оказывается более низкой (0,9—1 *эв*) [4].

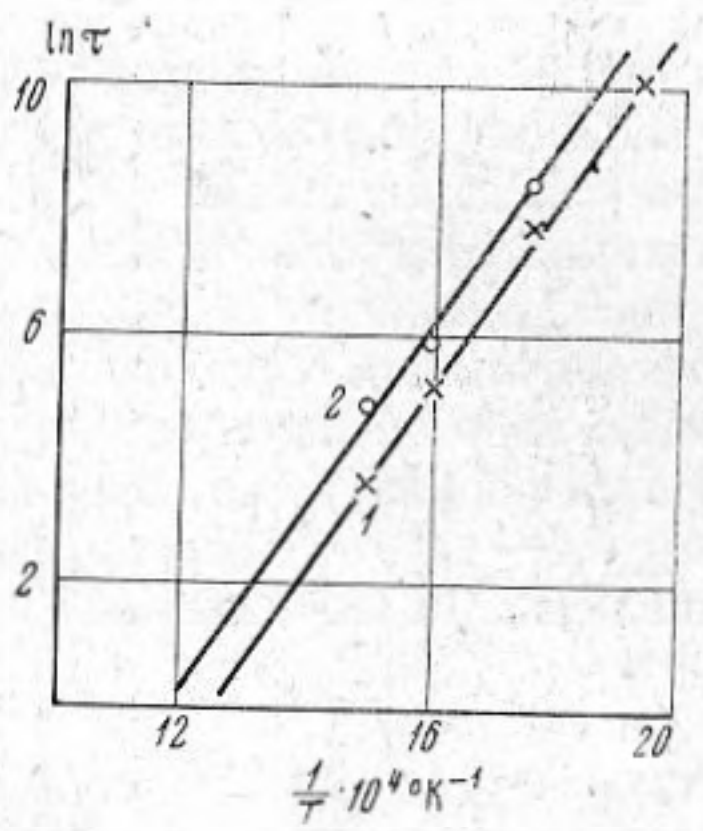


Фиг. 1

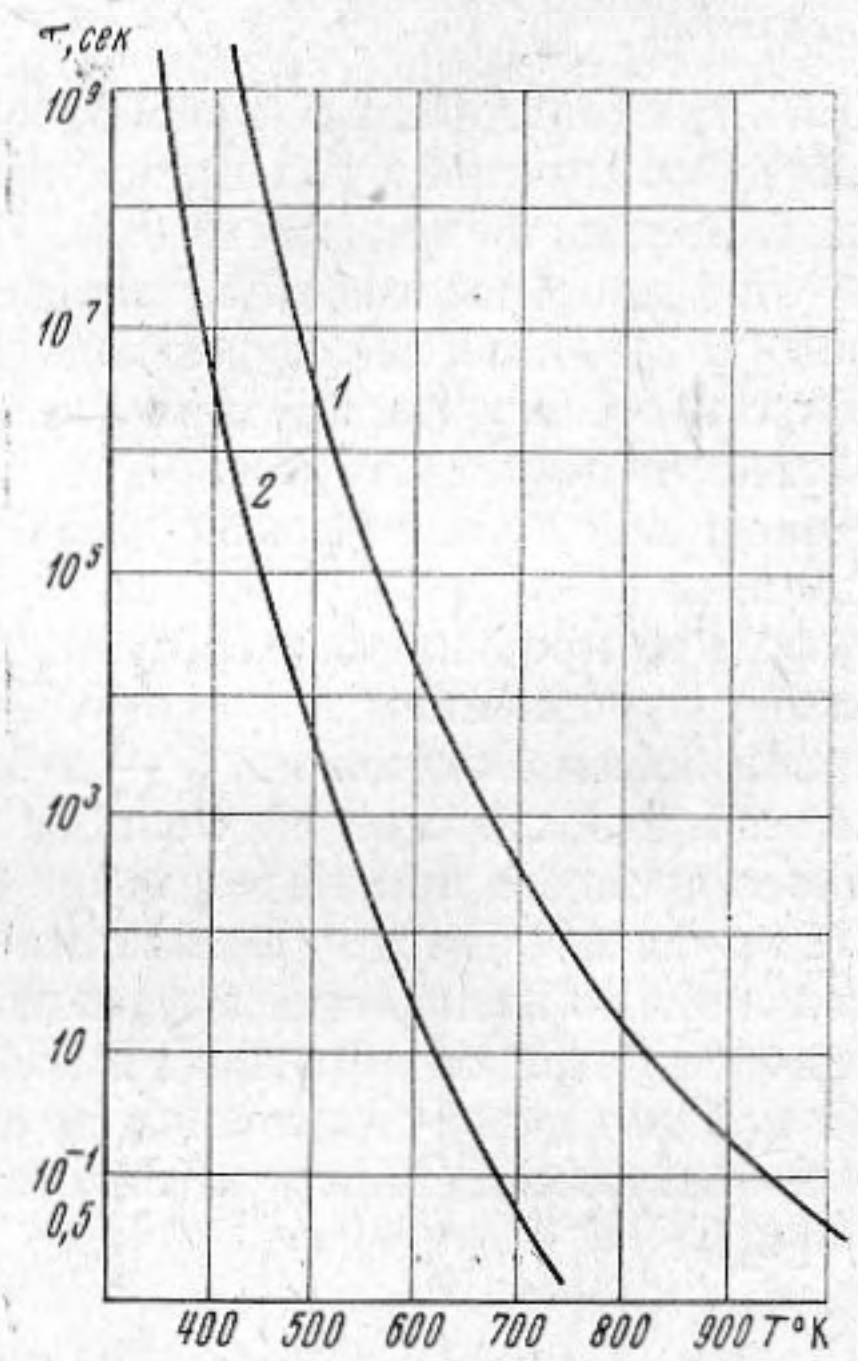
В работе [5] уменьшение энергии активации на кобальтсодержащих ферритах с избытком ионов Fe сверх стехиометрии объясняется тем, что одновременно с диффузией иона Co происходит электронный обмен между двух- и трехвалентными ионами железа. Гуман и Гордиев [6], исследуя Ni—Co феррит и кобальтзамещенный магнетит установили, что при больших концентрациях кобальта $\ln \tau$ зависит от $1/T$ нелинейно. Для объяснения процессов, проходящих при термомагнитной обработке, наиболее плодотворной теорией является теория направленного упорядочения [7, 8].

В настоящей работе постоянные E и τ определялись для феррита состава Fe_2O_3 — 53%, NiO — 46,4%, CoO — 0,6% *мол*, который широко применяется в качестве материала для сердечников преобразователей, работающих при остаточной намагниченности. В качестве критерия эффективности, как и в работе [1], принималось изменение в результате термомагнитной обработки коэффициента магнитомеханической связи ($K_{св}$). Образцы изготавливались в форме трубок внешним диаметром 5,5 и внутренним диаметром 2,5 *мм*. Термомагнитная обработка проводилась на установке, описанной в работе [9], в «насыщающем» поле, при котором достигается максимальное значение $K_{св}$, измеренного при остаточной намагниченности.

Из одной партии ферритов 80 сердечников вначале было намагничено в холодном состоянии. Они были разбиты на четыре группы по 20 шт в каждой. Среднее значение $K_{св}$ в каждой из групп составило 4,3% ÷ 4,5%. Группы сердечников проходили термомагнитную обработку при определенных температурах: 400, 350, 300 и 250°. При этих температурах сердечники проходили выдержку в поле, после чего охлаждались, также в поле, до температуры 100° со скоростью 10—15° в *мин*. Перед каждой последующей термомагнитной обработкой сердечники размагничивались прогреванием при температуре 650° в течение 30 *мин* (точка Кюри — 590°).



Фиг. 2



Фиг. 3

Эффективность термомагнитной обработки определялась как изменение среднего для каждой группы значения $K_{св}$. «Максимальной эффективностью» термомагнитной обработки считалось наибольшее изменение $K_{св}$, полученное на рассматриваемом материале. Наибольшее среднее значение $K_{св}$ после термомагнитной обработки составило 12,7%. Иначе говоря, в результате этой операции $K_{св}$ при остаточной намагниченности увеличился почти в три раза.

Результаты измерения, представленные на фиг. 1, являются средними значениями по каждой партии сердечников. Кривые *1*, *2*, *3* и *4* показывают изменение $K_{св}$ в зависимости от времени выдержки в поле при температурах соответственно 250, 300, 350 и 400°. По полученным данным рассчитаны зависимости $\ln \tau_{1/2}$ от $1/T$ (кривая *1* фиг. 2) и $\ln \tau_{3/4}$ от $1/T$ (кривая *2*). Здесь $\tau_{1/2}$ — время, необходимое для получения половины максимальной эффективности термомагнитной обработки, $\tau_{3/4}$ — время, необходимое для получения $^3/_4$ от максимальной эффективности ее; T — температура выдержки.

Как видно из фигуры, для обоих случаев зависимость $\ln \tau$ от $1/T$ имеет линейный характер и, следовательно, энергия активации рассматриваемого состава не зависит от температуры в отличие от результатов, полученных на Ni—Co ферритах с большой концентрацией кобальта [6]. По полученным данным энергия активации составляет 1,35 *эв*; коэффициент τ_∞, характеризующий время, необходимое для получения максимальной эффективности термомагнитной обработки при бесконечно большой температуре, составляет $8 \cdot 10^{-8}$ *сек*; $\tau_{\infty_{1/2}}$ — для половинной эффективности — $2{,}2 \cdot 10^{-9}$ *сек*; $\tau_{\infty_{0,5}}$ — для получения 5% от полной эффективности — $5{,}5 \cdot 10^{-11}$ *сек*.

На фиг. 3 изображено семейство кривых, соответствующих уравнению (1), построенных на основании приведенных данных. Кривая *1* определяет зависимость времени, необходимого для получения максимальной эффективности термомагнитной обработки, от температуры, кривая *2* — зависимость от температуры, времени, необходимого для получения 5% от полной эффективности.

Эти кривые позволяют получить ряд практически важных сведений, относящихся к выбору некоторых элементов режима термомагнитной обработки, и оценке временной устойчивости наведенной анизотропии (а следовательно, и магнитострикционных параметров).

По кривой *1* фиг. 3 можно определить максимальную температуру, при которой следует снимать поле. Считая, что процесс диффузии протекает быстрее при наличии направляющего действия магнитного поля, можно по этим же кривым оценить временну́ю устойчивость параметров, которая определяется устойчивостью остаточной намагниченности. Так, для рассматриваемых ферритов, при температуре 60° величина $K_{св}$ может изменяться в течение 150 лет не больше, чем на 5%.

Эта оценка показывает, что временная нестабильность параметров практически исключена.

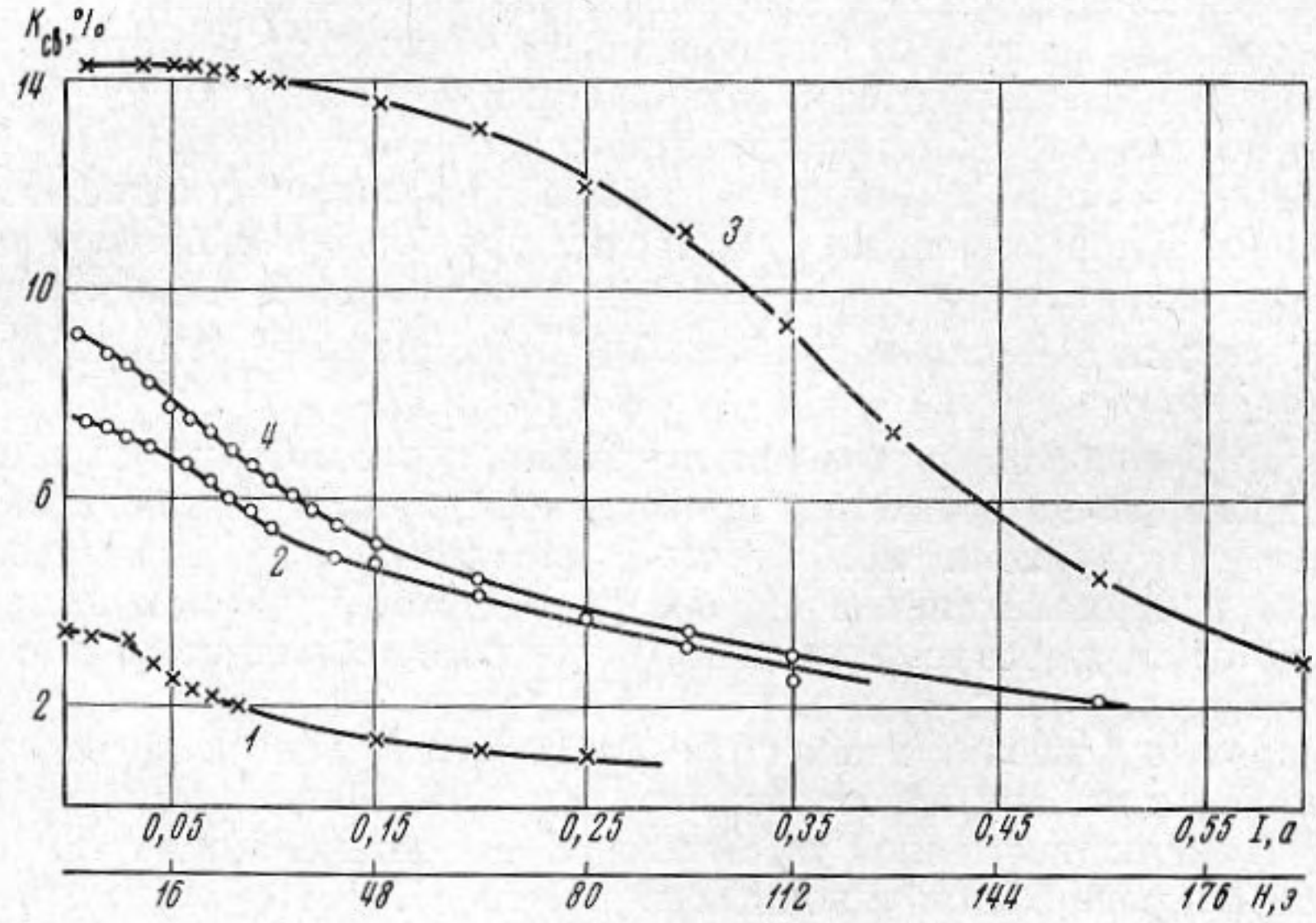
Рассмотрим теперь устойчивость магнитострикционных параметров сердечников, работающих на остаточной циркулярной намагниченности по отношению к воздействию внешнего аксиального магнитного поля. Эксперимент проводился следующим образом. Исследуемые сердечники вместе с измерительным каркасом помещались в соленоид и производились измерения начального значения $K_{св}$. Затем в соленоид подавался постоянный ток, создававший аксиальное поле, в котором сердечники выдерживались в течение одной минуты, после чего ток выключался и вновь измерялся $K_{св}$. Операция повторялась несколько раз при возрастающих значениях напряженности аксиального поля. Были исследованы сердечники из феррита никеля с недостатком и избытком ионов железа, содержащие и не содержащие ионы Co.

Результаты измерения представлены на фиг. 4. Здесь кривые *1* и *3* относятся к сердечникам, получившим остаточное циркулярное намагничение в холодном состоянии, а кривые *2* и *4* — в результате термомагнитной обработки в «насыщающем» поле. Кривые *1* и *2* относятся к сердечникам из феррита, состав которого указан выше. Кривые *3* и *4* — к сердечникам из феррита состава: Fe_2O_3 — 49; NiO — 50,4; CoO — 0,6 *мол*%.

Из фиг. 4 видно, что на сердечниках, изготовленных из феррита, содер-

жащего в составе избыточное железо и прошедших термомагнитную обработку, необратимые изменения $K_{св}$ наблюдаются лишь в результате воздействия поля выше 25 *эрст*. Те же сердечники, прошедшие холодное намагничение, дали необратимые изменения $K_{св}$ при поле меньше 8 *эрст*. Сердечники, изготовленные из феррита, имеющего недостаток ионов железа, не показали повышения устойчивости параметров в результате термомагнитной обработки.

Измерения, проведенные на тех же сердечниках, но прошедших термомагнитную обработку в полях много ниже «насыщающего», показали, что устойчивость $K_{св}$ по отношению к воздействию внешнего магнитного



Фиг. 4

поля при этом даже несколько выше, чем после термомагнитной обработки в насыщающем поле. Важным с точки зрения использования преобразователей является тот факт, что в результате термомагнитной обработки коэрцитивная сила не только не увеличивается, но даже несколько понижается.

Существующая теория направленного упорядочения, хорошо описывая явления, связанные с появлением в результате термомагнитной обработки наведенной анизотропии, не дает объяснения этим фактам. Эта теория предполагает равномерное упорядочение ионов Co по всему объему сердечника; но тогда остается открытым вопрос о том, каким образом происходит стабилизация остаточной намагниченности. Представляется, что в существующих теориях не учтена роль свободной энергии доменных границ.

Качественно картину процессов, проходящих в материале, в котором существуют условия для ионной диффузии, можно представить следующим образом. Как известно, с точки зрения минимизации свободной энергии наиболее выгодно расположение доменных границ по включениям или другим неоднородностям материала. Ион кобальта в октаэдрической позиции обладает большей анизотропией, чем ионы Ni^{2+} или Fe^{2+}. Поэтому энергетически выгодно, чтобы ионы Co размещались в месте прохождения доменной границы. Так как осями легкого намагничения в Ni феррите являются оси типа ⟨111⟩, то при охлаждении ниже точки Кюри доменные границы располагаются преимущественно в этих направлениях.

Если в материале имеются условия для ионной диффузии, то диффузия должна быть направлена на минимизацию свободной энергии, поэто-

му ионы Co будут перемещаться в области, занимаемые доменными границами. Когда на сердечник наложено внешнее магнитное поле, происходит перераспределение доменных границ таким образом, что растут те домены, намагниченность которых ближе всего к направлению приложенного магнитного поля. При этом границы смещаются и занимают некоторые новые положения. Если в материале имеются подходящие условия для диффузии, то ионы Co будут перемещаться в новые положения, соответствующие тому из направлений типа ⟨111⟩, которое становится преимущественным. При этом ионы располагаются не равномерно по объему, как это предполагается теорией направленного упорядочения, а преимущественно в объемах, занятых границами между доменами. В результате доменные границы оказываются помещенными в глубокие «потенциальные ямы», что обеспечивает устойчивость остаточной намагниченности.

Предложенная модель не противоречит модели направленного упорядочения. В то же время она дает хорошее качественное объяснение экспериментальным данным, полученным в настоящей работе. Объясняется повышение устойчивости параметров в результате термомагнитной обработки для составов, в которых возможна диффузия ионов Co, несмотря на то, что коэрцитивная сила остается при этом неизменной. Объясняется высокая устойчивость параметров при проведении термомагнитной обработки в слабых полях. Действительно, в зависимости от величины поля, приложенного к сердечнику, изменяется только расстояние, на которое смещается доменная граница, количество же ионов Co, продиффундировавших в новое положение границы, а, следовательно, и глубина «потенциальной ямы» от поля не зависят.

Авторы благодарны И. П. Голяминой за советы при просмотре рукописи.

ЛИТЕРАТУРА

1. Л. А. Преснова, Р. И. Понкратьева, Л. А. Фоменко. Влияние термомагнитной обработки на коэффициент магнитомеханической связи Ni—Co ферритов в зависимости от концентрации ионов кобальта. Акуст. ж., 1969, **15**, 1, 116—120.
2. И. П. Голямина, А. Д. Соколов, В. К. Чулкова. Испытания опытных ультразвуковых приемников из ферритов. Акуст. ж., 1957, **3**, 3, 288—290.
3. Н. Л. Брюхатов, Н. Л. Пахомова. О роли ионов Fe^{2+} в процессе термомагнитной обработки Ni — Fe ферритов. Физ. метал. и металловед., 1965, **19**, 5, 790—791.
4. S. Jida. Mechanism of dissaccomodation in ferrites. J. Phys. Soc. Japan, 1962, **17**, 1, 123—127.
5. B. Kubota, A. Janase, J. Tavara, J. Neicchi, E. Hirota. Induced anisotrophy in iron — rich nickel ferrite with a small cobalt substitution. Phys. Soc. Japan., 1962, **17**, Suppl B 1, 296—298.
6. Н. М. Гумен, С. И. Гордиев. Исследование эффекта термомагнитной обработки Ni — Co ферритов. Физ. метал. и металловед., 1966, **22**, 2, 187—192.
7. J. Slonczewski. Anisotrophy and magnetostrition in magnetic oxides. J. Appl. Phys., 1961, **3**, Suppl. 32, 253—263.
8. M. Jamamoto, S. Taniguchi, K. Aouagi. The additional magnetic anisotropy induced by magnetic anneal in ferromagnetic fac — sentered cubic solid solution. J. Phys. Soc. Japan, 1962, **17**, Suppl 1, 329—330.
9. Л. А. Преснова, Н. А. Разуваев. Установка для термомагнитной обработки магнитострикционных ферритов. Обмен опытом в электрон. промышлен., 1969, 7, 42.

Ленинград

Поступила в редакцию
25 мая 1970 г.