

Available online at www.sciencedirect.com**SciVerse ScienceDirect**

Procedia Engineering 27 (2012) 1426 – 1433

**Procedia
Engineering**www.elsevier.com/locate/procedia

2011 Chinese Materials Conference

Production of Fe-Si-Al-Ni-Ti soft magnetic alloy powder by inert-gas atomization

Xin Liu^{*}, Huanwen Xie^a, Lei Wang^a, Jiewen Luo^a, Yixiang Cai^a*Department of Powder Metallurgy, Guangzhou Research Institute of Non-ferrous Metals, Guangzhou 510651, China*

Abstract

Fe-3%Si-0.5%Al-2%Ni-2%Ti soft magnetic alloy powders were prepared by inert-gas atomization. The composition, phase structure, size distribution, surface morphology and cross-sectional microstructure of the powder were characterized by chemical analysis, X-ray diffractometer, laser scattering particle size distribution analyzer and electron probe microanalyzer, respectively. The effects of gas atomization pressure and temperature on the powder size and morphologies were also investigated. The results indicate that when the gas atomization pressure is 5.5 MPa and the temperature is 1550 °C, the median diameter of the powder, which appears rough surface and low sphericity, is 54.38 μm. When the gas atomization temperature is 1550 °C, with the gas atomization pressure increasing from 5.5 to 6.5 MPa, the powder size decreases from 54.38 to 35.51 μm whereas the satellite ball of the surface increases. When the gas atomization pressure is 5.5 MPa, with the gas atomization temperature increasing from 1550 to 1650 °C, the powder size decreases from 54.38 to 36.63 μm but the powders possess smooth surface and high sphericity. The phase structure of the powder is single α-Fe phase, and the solidification structure in the powder is mainly equiaxed grain along with a small amount of dendrite.

© 2011 Published by Elsevier Ltd. Selection and/or peer-review under responsibility of Chinese Materials Research Society. Open access under [CC BY-NC-ND license](https://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/).

Keywords: Gas atomization; Fe-Si-Al-Ni-Ti; soft magnetic alloy powder

惰性气体雾化法制备 Fe-Si-Al-Ni-Ti 软磁合金粉末

^{*} Corresponding author. Tel.: +86-20-61086128; fax: +86-20-37238669.
E-mail address: shaneliu118@gmail.com.

刘辛^{*}, 谢焕文^a, 王蕾^a, 骆接文^a, 蔡一湘^a

广州有色金属研究院, 粉末冶金研究所, 广州 510651, 中国

摘要

采用惰性气体雾化法制备 Fe-3%Si-0.5%Al-2%Ni-2%Ti 软磁合金粉末, 通过化学分析、X 射线衍射仪、激光粒度分析仪、电子探针等手段分别对粉末的成分、物相结构、粒度分布、表面形貌和截面组织进行表征, 研究雾化压力和雾化温度对粉末粒度和形貌的影响。结果表明: 当雾化压力为 5.5 MPa、雾化温度为 1550 °C 时, 粉末中值粒径为 54.38 μm, 颗粒表面粗糙且球形度不高; 当雾化温度为 1550 °C、雾化压力由 5.5 MPa 增大至 6.5 MPa 时, 粉末中值粒径由 54.38 μm 减小至 35.51 μm, 颗粒表面卫星粉末增多; 当雾化压力为 5.5 MPa、雾化温度由 1550 °C 提高至 1650 °C 时, 粉末中值粒径由 54.38 μm 减小至 36.63 μm, 粉末表面光滑且球形度增大; 粉末的物相结构为单一的 α-Fe 相, 粉末内部组织形态主要是等轴晶, 并伴有少量枝晶。

关键词: 气雾化; Fe-Si-Al-Ni-Ti; 软磁合金粉末

1. 引言

Fe-Si 系合金是目前用途最广、用量最大的软磁材料, 也是最具商业用途的二元合金体系之一^[1]。Fe-Si 系合金由于具有优良的磁学性能, 已成为电力、电讯和电子工业中不可缺少的软磁材料。随着电子技术的迅猛发展, 对电子器件的高频化、高功率密度化以及小型化的要求日益提高, 传统的 Fe-Si 系合金的低电阻率所导致的大的涡流损耗限制了它在高频段的使用范围, 为此人们将 Fe-Si 系合金制成粉末并进行绝缘包覆后压制磁粉芯材料来降低其在高频下的涡流损耗^[2]。

Fe-Si 系磁粉芯由于具有优异的磁学性能和广阔的应用前景, 国内外对该类材料在高频下的涡流损耗及相关磁特性的研究和开发一直都十分活跃。人们尝试通过调整合金成分以及改变粉末特性等因素来提高电阻率, 进而降低涡流损耗并改善材料的磁性能。1937 年 Masumoto 等^[3]在合金中添加 Al, 得到 Fe-9.6%Si-5.4%Al 合金, 称为仙达斯特 (Sendust) 合金, 其磁导率、饱和磁感应强度和电阻率均得到显著提高; 1976 年 Yamamoto 等^[4]添加 Ni 并调整 Si 和 Al 的含量, 得到 Fe-9.6%Si-5.4%Al-3.2%Ni 四元合金, 称为超仙达斯特 (Super Sendust) 合金, 其磁导率和电阻率得到进一步改善; 1994 年 Otomo^[5]在 Fe-Si-Al 合金中添加 Cr 和 Ti 并调整 Si、Al 的含量, 提高了合金的磁导率和电阻率, 并降低了矫顽力。2010 年 Liu 等^[6]研究了 Fe-Ti-Si-Al 软磁复合材料的电磁波吸收性能, 发现 Ti 元素的添加能使得合金的电阻率提高三倍左右, 进而有利于涡流损耗的降低, 其原因一方面可能与 Ti 原子的掺杂减少了共价电子数有关, 另一方面则归因于 Ti、Fe 原子半径的差异所造成的晶格畸变导致了电子散射可能性的增加。文献^[7]报道了用三种雾化制粉方法制得的 Fe-Si-Al 合金粉末, 发现电阻率以气体雾化粉、特殊水雾化粉、水雾化粉的顺序而减小, 其原因与颗粒外形密切相关, 气雾化制备的球形粉末更有利于绝缘包覆处理。本文采用惰性气体雾化法制备 Fe-Si-Al-Ni-Ti 软磁合金粉末, 研究雾化工艺参数对粉末特性的影响, 并对粉末微观组织特性进行表征。

2. 实验

实验采用铁、硅、铝、镍和钛锭为原料, 其纯度均在 99%以上。将原料按 Fe : Si : Al : Ni :

Ti=92.5 : 3 : 0.5 : 2 : 2 (质量分数) 配比后在中频感应熔炼炉内熔化, 熔化前先抽真空, 然后充入氩气保护。待原料充分熔化并达到一定过热度后, 将得到的合金熔液浇入中间包开始雾化。所用雾化介质为纯氩气, 雾化结束后, 将雾化罐和旋风分离器内粉末混合, 经标准筛筛分后称取-200目粉末作为样品。

采用 Horiba LA-950 激光粒度分析仪对粉末的粒度分布进行测试, 采用 JEOL JXA-8100 型电子探针观察粉末的表面形貌和被 4%硝酸酒精腐蚀后的截面组织形态, 采用化学分析法对粉末的化学成分进行表征, 采用 Rigaku D/MAX-RC 型 X 射线衍射仪 (Cu K α 辐射) 对粉末的物相结构进行分析。

3. 结果与分析

3.1. 雾化压力和雾化温度对粉末粒径的影响

图 1 是不同雾化工艺条件下所获得的粉末粒度累积分布曲线。由图 1 可见, 在雾化压力为 5.5 MPa、雾化温度为 1550 °C 条件下, 大部分粉末粒度在 47.24~60.71 μm (47.24 μm 和 60.71 μm 分别对应累积分布曲线上 10%和 90%处的粒度) 范围内, 以累积分布曲线 50%处的粒度作为中值粒径 D_{50} , 其值为 54.38 μm 。与此类似, 在雾化压力为 6.5 MPa、雾化温度为 1550 °C 条件下, 大部分粉末粒度在 21.36~50.30 μm 范围内, 中值粒径 D_{50} 为 35.51 μm ; 在雾化压力为 5.5 MPa、雾化温度为 1650 °C 条件下, 大部分粉末粒度在 31.07~42.16 μm 范围内, 中值粒径 D_{50} 为 36.63 μm 。图 2 是不同雾化工艺条件下所获得的粉末粒度微分分布曲线。由图 2 可见, 粉末粒度均呈单峰并且近似于正态分布, 而传统气雾化所得粉末粒度多呈双峰或多峰分布, 这与雾化过程中金属熔滴的破碎过程有关。粉末的粒度分布主要受熔体雾化过程中的初始破碎和二次破碎阶段的影响。当气液相对速度足够大时, 初次破碎产生的熔滴将全部发生二次破碎, 形成细小熔滴, 使得粉末粒度呈单峰分布。由于本实验采用了较高的雾化压力 (5.5~6.5 MPa), 使得雾化喷嘴产生高速气流, 从而导致初始破碎后的熔滴几乎全部得到二次破碎, 形成细小熔滴, 并最终得到如图 2 所示的单峰分布曲线。

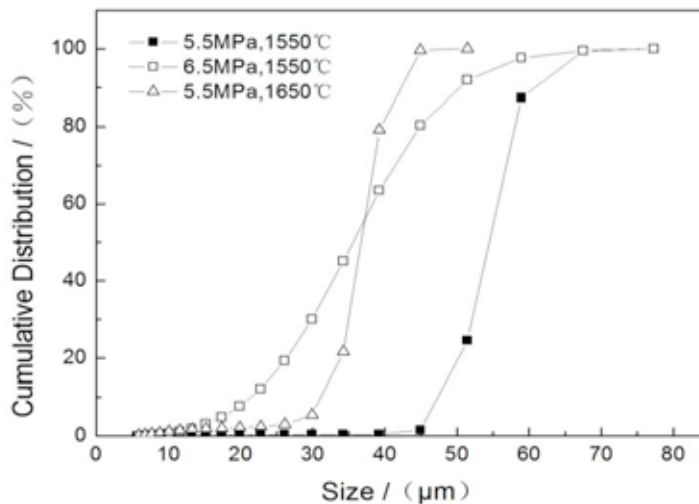


图 1 不同工艺条件下制备的粉末粒度累积分布曲线

Fig. 1 Cumulative distribution curves of the powders under different process conditions

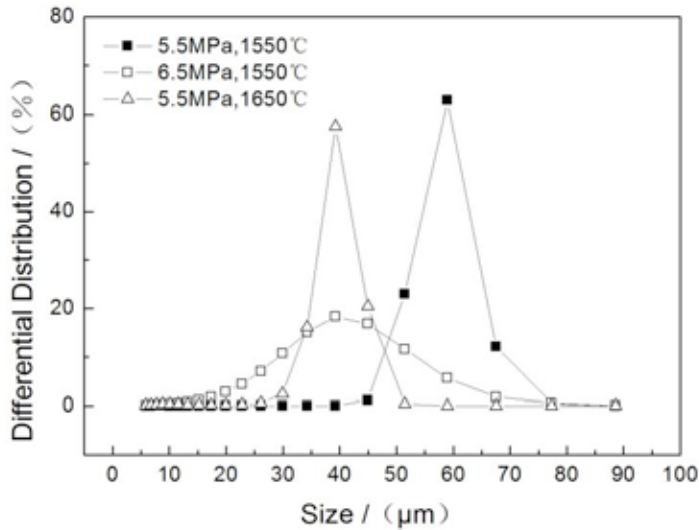


图2 不同工艺条件下制备的粉末粒度微分布曲线

Fig. 2 Differential distribution curves of the powders under different process conditions

比较不同雾化压力条件下的粉末粒度分布可知，粉末的中值粒径随雾化压力的增大而降低，由 5.5 MPa 时的 54.38 μm 减小至 6.5 MPa 时 35.51 μm ，粉末粒度分布曲线向细粒度方向偏移，但粒度分布区间随雾化压力的增大发生明显宽化。这是由于雾化压力通过雾化气流冲击熔融金属液流的有效动能来影响雾化过程，从而影响粉末粒度。雾化压力越大，雾化气流的速度及动能越大，气流与金属液流的相互作用越强烈，由于平衡受到破坏而引起的二次雾化过程进行得也就越充分，从而得到更多更细的粉末。

比较不同雾化温度的粉末粒度分布可知，粉末的中值粒径随雾化温度的升高而降低，由 1550 $^{\circ}\text{C}$ 时的 54.38 μm 减小至 1650 $^{\circ}\text{C}$ 时 36.63 μm ，粉末粒度分布曲线向细粒度方向偏移，同时仍保持窄粒度分布区间。这是因为雾化温度的提高使得金属熔液粘度和表面张力下降，粘度小的流体在雾化气流剪切应力作用下容易被破碎，而表面张力小的液流由于环境对其所做的表面功减小也有利于破碎。此外，熔体过热度的提高将导致金属熔液冷却凝固时间的延长，因而其发生形变破碎的时间也相应延长，这也有利于金属熔液的破碎。

3.2. 雾化压力和雾化温度对粉末形貌的影响

图 3 是不同雾化气体压力和雾化温度条件下所获得的粉末形貌图。由图 3 可见，在雾化压力为 5.5 MPa、雾化温度为 1550 $^{\circ}\text{C}$ 条件下，粉末球形度较差，部分颗粒呈椭球状，粉末表面粗糙，在雾化压力为 6.5 MPa、雾化温度为 1550 $^{\circ}\text{C}$ 条件下，粉末球形度高，部分颗粒呈水滴状，粉末表面粘附有大量卫星粉末，在雾化压力为 5.5 MPa、雾化温度为 1650 $^{\circ}\text{C}$ 条件下，粉末基本为球形，表面光洁。

随着雾化压力由 5.5 MPa 增大到 6.5 MPa，粉末粒度明显减小，球形度增大，卫星粉末数量增多。气雾化粉末的球形度主要取决于金属熔体破碎后熔滴球化时间和凝固时间的相对大小^[8]。在金属液流的成分和过热度确定的条件下，熔滴的球化时间主要取决于它的表面张力和尺寸，而表面张力又随熔滴尺寸的减小而增大，因此球化时间随着熔滴尺寸的减小而迅速缩短；凝固时间

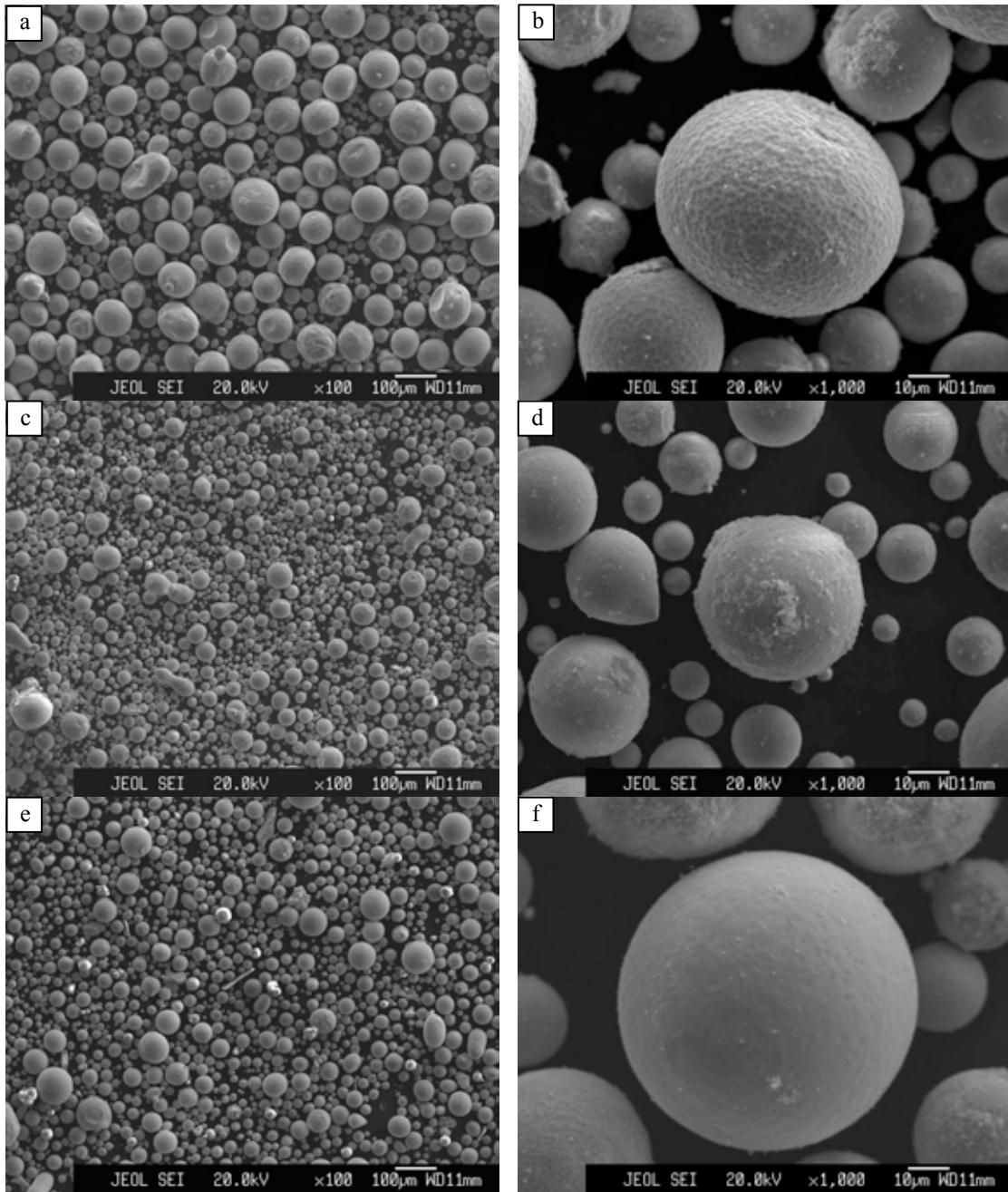


图 3 不同工艺条件下所制备的粉末形貌图. (a) and (b) 5.5 MPa、1550 °C; (c) and (d) 6.5 MPa、1550 °C; (e) and (f) 5.5 MPa、1650 °C.

Fig. 3 Morphologies of the powders under different process conditions. (a) and (b) 5.5 MPa、1550 °C; (c) and (d) 6.5 MPa、1550 °C; (e) and (f) 5.5 MPa、1650 °C.

则主要取决于熔滴的尺寸，凝固时间随着熔滴尺寸的减小也缩短，并与其成正比关系，但凝固时间的变化幅度远没有球化时间的大。因此，小粒径的粉末比大粒径的粉末更容易在凝固前充分球化，导致其球形度更高。粉末表面的形貌主要取决于雾化破碎过程中粉末颗粒之间的相互作用^[9]。由于不同粒度的颗粒冷凝状态不同以及不同位置的颗粒所受的气流冲击不同，这使得颗粒之间的碰撞在空间上成为可能，并形成了不同的粉末形貌。雾化压力越大，气流与金属液滴的相互作用越强烈，引起不同颗粒间的速度和凝固状态差别越大，使得金属液滴发生碰撞的可能性增大，卫星粉末大大增加。

随着雾化温度由 1550 °C 升高到 1650 °C，粉末粒度明显减小，粉末基本为球形，并且表面光洁。雾化温度的提高使得金属液流的粘度和表面张力下降，一方面有助于金属液流的破碎，使得粉末粒度减小，从而提高球形度；另一方面，金属液流粘度的减小使得熔滴的凝固时间延长，从而可以充分球化。因此，在雾化压力保持不变的前提下，雾化温度的提高有利于粉末球形度的增大并且表面光洁。

3.3. 气雾化 Fe-Si-Al-Ni-Ti 合金粉末微观组织特性

图 4 是雾化压力为 5.5 MPa、雾化温度为 1550 °C 时制备的 Fe-Si-Al-Ni-Ti 合金粉末的 X 衍射图。由图 4 可见，气雾化制备的 Fe-Si-Al-Ni-Ti 粉末中只存在单一的 α -Fe 相。与 JCPDS 标准卡片 (06-0696) 比较发现， α -Fe 相的衍射峰向低角发生漂移。这表明， α -Fe 相的晶格发生膨胀，即 Si、Al、Ni、Ti 等元素固溶到 α -Fe 相中，与其发生合金化。图 5 是采用上述工艺条件制备的 Fe-Si-Al-Ni-Ti 合金粉末腐蚀后的横截面组织形态。图 5 (a) 和 (b) 分别为粒度大于 60 μm 和粒度小于 30 μm 的粉末组织形貌。由图 5 可以发现，这两种粒度范围的粉末晶粒尺寸均在 1~3 μm 之间，比较细小。此外，粒度大的粉末内部组织主要是等轴晶，同时伴有少许枝晶组织；而粒度小的粉末则基本上是等轴晶组织。造成上述差别的主要原因是不同粒度粉末颗粒的冷却速率不同，通常冷却速率与粉末的直径成反比，也就是说粉末的粒径越小，其冷却速率越高^[8]。随着合金熔液冷却速率的增大，固液相界面失稳，由平面状逐渐形成凸起，凝固得到的组织依次为平面晶、胞状晶、胞状树枝晶、柱状树枝晶和等轴晶。因此，粒度小的粉末颗粒比粒度大的粉末更容易形成等轴晶。

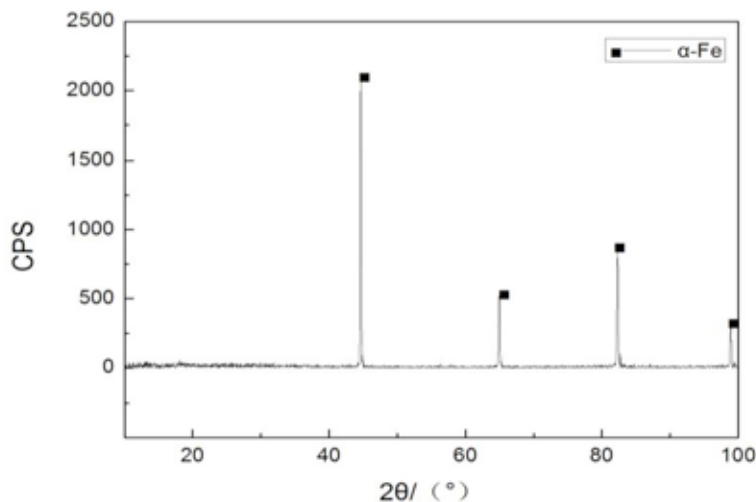


图 4 Fe-Si-Al-Ni-Ti 合金粉末的 X 衍射图

Fig. 4 X-ray pattern of Fe-Si-Al-Ni-Ti alloy powder

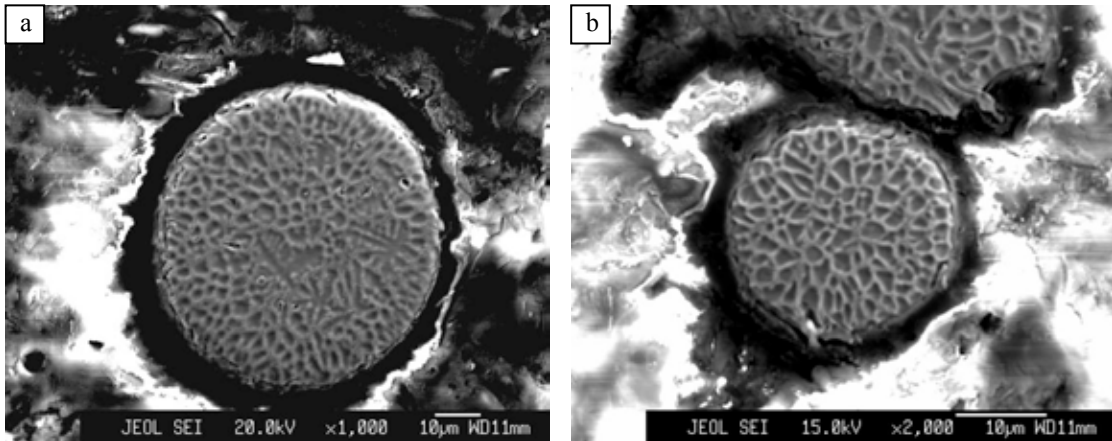


图 5 Fe-Si-Al-Ni-Ti 合金粉末腐蚀后的横截面组织形态. (a)>60 μm ; (b)<30 μm

Fig. 5 Cross-sectional microstructure of the etched alloy powder. (a)>60 μm ; (b)<30 μm

4. 结论

1. 当雾化温度为 1550 $^{\circ}\text{C}$ ，随雾化压力由 5.5 MPa 增大到 6.5 MPa 时，粉末中值粒径由 54.38 μm 减小至 35.51 μm ，粒度分布区间明显变宽，卫星粉末明显增加；当雾化温度为 5.5 MPa，随雾化温度由 1550 $^{\circ}\text{C}$ 升高到 1650 $^{\circ}\text{C}$ 时，粉末中值粒径由 54.38 μm 减小至 36.63 μm ，粒度分布区间没有明显变化，粉末球形度高且表面光洁。
2. 气雾化制备的 Fe-Si-Al-Ni-Ti 粉末中只存在单一的 $\alpha\text{-Fe}$ 相，Si、Al、Ni、Ti 等元素固溶到 $\alpha\text{-Fe}$ 相中与其合金化。
3. Fe-Si-Al-Ni-Ti 粉末的晶粒尺寸在 1~3 μm 之间。粒度大的粉末内部组织主要是等轴晶，同时伴有少许枝晶组织；而粒度小的粉末则基本上是等轴晶组织。

致谢

广州有色金属研究院博士科研启动基金（2009B005）和国家科技部科研院所技术开发研究专项资金（2010EG215058）资助了本文的工作。

References

- [1] Zhong TB, Lin JP, Chen GL. Fabrication and applications progress of Fe_3Si based alloys. *Journal of Functional Materials* 1999; **30**: 337–44. (in Chinese)
- [2] Shokrollahi H, Janghorban K. Soft magnetic composite materials (SMCs). *Journal of Materials Processing Technology* 2007; **189**: 1–12.
- [3] Masumoto H, Yamamoto T. On a new alloy “Sendust” and its magnetic and electric properties. *Journal of the Japan Institute of Metals* 1937; **1**: 127–35.
- [4] Yamamoto T, Utsushikawa Y. Effects of Ni content on magnetic properties of a new high permeability magnetic alloy “Super Sendust” in the Fe-Si-Al-Ni system. *Journal of the Japan Institute of Metals* 1976; **40**: 975–81.
- [5] Otomo S. Effects of Cr and Ti additions on wear resistance and magnetic properties of Fe-Al-Si alloy. *Journal of the Japan Institute of Metals* 1994; **58**: 455–60.

- [6] Liu JH, Ma TY, Tong H, Luo W, Yan M. Electromagnetic wave absorption properties of flaky Fe–Ti–Si–Al nanocrystalline composites. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 2010; **322**: 940–4.
- [7] Saito T, Yahagi SI. Electromagnetic properties of compressed cores with Fe-Si-Al system atomized powders. *Denki-Seiko(Electric Furnace Steel)* 1998; **69**: 181–7.
- [8] Zhu PX, Zhang SM, Xu J, Zhu XX, Zhao XM. Characterization of FeNi30 catalyst powder produced by supersonic gas atomization. *Powder Metallurgy Industry* 2009; **19**: 6–10. (in Chinese)
- [9] Liu WS, Peng F, Ma YZ, Cui P, Chen SQ, Liu YC. Effect of procedure conditions on characteristics of SnAgCu alloyed powder prepared by gas atomization. *The Chinese Journal of Nonferrous Metals* 2009; **19**: 1074–9. (in Chinese)