

Korngrößenabhängigkeit der Ummagnetisierungsvorgänge im Reineisen

P. Deimel, B. Röde und R. Wislaug

Physik-Department der Technischen Universität München

(Z. Naturforsch. 31 a, 163–168 [1976]; eingegangen am 20. Dezember 1975)

Grain Size Dependence of the Processes of Remagnetization in Pure Iron

The Barkhausen-Spectra of pure iron have been measured for four recrystallized wire specimens of different grain size. The pulse size distributions show a strong dependence on this parameter. The number of the Barkhausen-pulses increases with decreasing grain size. The comparison of the spectra measured at an external field in the vicinity of the coercive force with those measured at a field where domain rotation begins shows that in the latter region the size and number of jumps is larger. Measurements of the counting rate of the Barkhausen jumps versus the external magnetic field show two maxima instead of normally one at the coercive force. This unusual behaviour could be explained with the successive change of Bloch wall types in certain sections of the hysteresis loop and their different interaction with dislocations.

1. Ziel der Untersuchung

Die Ummagnetisierungsvorgänge in einem Ferromagnetikum hängen in komplizierter Weise von einer Reihe von Einflüssen (wie z. B. innere Spannungen, Verunreinigungen, Korngröße usw.) ab. Im Fall von geglühtem und rekristallisiertem Reineisen wurde eine unmittelbare Abhängigkeit der Koerzitivfeldstärke und der Anfangspermeabilität von der Korngröße festgestellt^{1–3}. Diese für die Magnettechnologie sehr wichtigen Größen allein erlauben noch keine differenzierte Aussage über den speziellen Ummagnetisierungsmechanismus und seine Abhängigkeit von der Korngröße. Eine solche Aussage kann man aus dem Barkhausen-Effekt gewinnen. Orientierende Experimente zur Korngrößenabhängigkeit des Barkhausen-Effektes von technischem Stahl wurden von Säynäjäkangas und Mitarb.^{4, 5} angestellt, wobei hauptsächlich die Verwendung des Barkhausen-Effektes zur Korngrößenbestimmung geprüft wurde.

Das Ziel der vorliegenden Arbeit war es, die Größenverteilung der Barkhausen-Sprünge von geglühtem Reineisen hinsichtlich einer möglichen Korngrößenabhängigkeit zu untersuchen. Um Rückschlüsse auf die mikroskopischen Ummagnetisierungsprozesse ziehen zu können, wurde die Abhängigkeit der Barkhausen-Spektren vom jeweiligen Magnetisierungszustand (Umgebung der Koerzitivfeldstärke, Einmündungsgebiet) gemessen. Darüber

Sonderdruckanforderungen an Dr. P. Deimel, Physik-Department, E 18, Technische Universität München, D-8046 Garching, Germany.

hinaus wurde die Korngrößenabhängigkeit der Zählrate der Barkhausen-Sprünge als Funktion des äußeren Magnetfeldes ermittelt.

2. Meßanordnung und Durchführung der Messungen

Zur Erzeugung eines homogenen, in der Stärke veränderlichen Magnetfeldes dient eine Feldspule von 50 cm Länge und 8,5 cm mittlerem Durchmesser mit 580 Windungen. Den variablen Feldspulenstrom (maximal 10 A) liefert ein Netzgerät der Firma Heinzinger mit einer Langzeitkonstanz von 10^{-5} vom Endwert. Im Zentrum der Feldspule befindet sich die Suchspule von 5 cm Länge und 30 000 Windungen aus teflonisiertem Kupferdraht von 0,063 mm Durchmesser. Durch Parallelschaltung eines Kondensators von 10 nF und eines Dämpfungswiderstandes von 6,8 k Ω wird eine Zeitkonstante τ_s von 200 μ s bei aperiodischer Dämpfung erreicht. Die durch Wirbelströme bedingte Sprungdauer τ_B der Barkhausen-Sprünge wurde experimentell zu $\leq 70 \mu$ s ermittelt. Für einen Teil der Sprünge ist die ballistische Bedingung $\tau_B \ll \tau_s$, die zur Messung der magnetischen Momentenänderung ΔM verwendet wird, nicht in Strenge erfüllt. Der dadurch entstehende maximale relative Fehler in der von der Suchspule abgegebenen Spannungsamplitude ist $-2,2\%$. Die Suchspulenimpulse werden in einem rauscharmen Vorverstärker (Verstärkung 46 dB, 3 dB-Bandbreite 8,5 Hz – 570 kHz) und anschließend in einem Hauptverstärker um insgesamt 91 dB verstärkt, um dann in 5 μ s breite Rechteckimpulse analoger Höhe umgewandelt und schließlich im Vielkanalanalysator in Abhängigkeit von ΔM ge-



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitalized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

Tab. 1. Zusammenstellung der verwendeten Verformungsgrade, geometrischen Abmessungen, Korngröße und charakteristischen magnetischen Kennwerte.

Verformungsgrad [%]	Ausgangsdurchmesser [mm]	Probenlänge [mm]	Korngröße [μ]	H_c [mOe]	$\left(\frac{N_g}{4\pi}\right) \cdot 10^4$	Maximale reversible Permeabilität
9	0,524	35	353	200	7,5	520
20	0,559	36	250	329	7,3	595
52	0,722	37	43	645	6,8	495
96	2,500	38	30	724	6,6	474

speichert zu werden. Zur Aufzeichnung der Zählraten dN/dt der Barkhausen-Sprünge in Abhängigkeit vom äußeren Magnetfeld H werden die $5\ \mu\text{s}$ breiten Rechteckimpulse einem Zählratenmeßgerät mit angeschlossenem Zweikoordinatenschreiber zugeführt. Die dabei erreichte untere Nachweisempfindlichkeit beträgt $1,15 \cdot 10^{-6}$ magnetische cgs-Einheiten und ist mit derjenigen bei der Messung der Barkhausen-Spektren erreichten identisch. Die Änderungsgeschwindigkeit des äußeren Magnetfeldes dH/dt bei der Aufnahme der Barkhausen-Spektren betrug $11,6\ \text{mOe/s}$. Bei den untersuchten Proben handelt es sich um Drähte aus Reineisen VACOFER S 2 der Vakumschmelze Hanau AG (Drahtdurchmesser $0,5\ \text{mm}$, $0,0050\% \text{C}$, $0,0015\% \text{S}$, $0,0100\% \text{Mo, Ni}$). Um Drahtproben unterschiedlicher Korngröße zu erhalten, wurde das Ausgangsmaterial zunächst verschiedener Dicke auf jeweils $0,5\ \text{mm}$ Durchmesser kalt gezogen und anschließend bei $630\ ^\circ\text{C}$ drei Stunden in reiner Wasserstoffatmosphäre geglüht. Für jeden Verformungsgrad wurden je vier Drähte gleicher Länge hergestellt, wobei, um Verwechslungen auszuschließen, für verschiedene Verformungsgrade die Proben unterschiedlich lang zugeschnitten wurden. Tabelle 1 gibt eine Übersicht über die verwendeten Verformungsgrade, Ausgangsdurchmesser, Probenlängen, Korngrößen und einige charakteristische magnetische Kenngrößen. Die Hystereseschleifen wurden zu jeder Probe nach einer von Förster beschriebenen Methode ermittelt⁶.

3. Experimentelle Ergebnisse

In Abb. 1 sind die Hysteresekurve einer rekristallisierten Drahtprobe und die zur Messung der Korngrößenabhängigkeit des Barkhausen-Spektrums verwendeten gleich großen Magnetisierungsintervalle A, B und C dargestellt. Die für das Magnetisierungsintervall A, B und C erhaltenen Barkhausen-Spektren mit der Korngröße als Parameter zeigt Abbildung 2. Die gemessenen Sprunggrößen wurden auf den Einfluß des Entmagnetisierungsfaktors N_g kor-

rigiert. Gemäß Parzeval und Stierstadt⁷ gilt für die korrigierte Sprunggrößenverteilung $n(\Delta M)$

$$n(\Delta M) = \frac{n_g(\Delta M_g)}{1 + \bar{\chi} N_g} \quad (1)$$

mit $n_g(\Delta M_g)$ gemessene Zahl der Barkhausen-Sprünge pro cm^3 und ΔM -Einheit, $\Delta M_g = \Delta M / (1 + \bar{\chi} N_g)$ gemessene Momentenänderung, ΔM wahre Momentenänderung, $\bar{\chi}$ reversible Suszeptibilität (gemittelt über das jeweilige Magnetisierungsintervall).

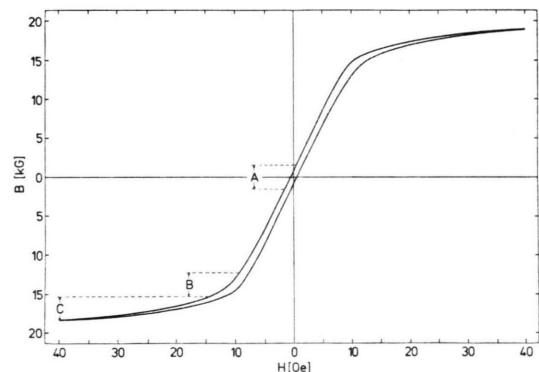


Abb. 1. Hysteresekurve von Reineisen VACOFER S 2 (Drahtdurchmesser $0,5\ \text{mm}$, Korngröße $30\ \mu$). A, B und C sind die bei der Messung der Abhängigkeit der Barkhausen-Spektren vom Magnetisierungszustand gewählten gleich großen Magnetisierungsintervalle.

Man erkennt eine ausgeprägte Korngrößenfolge im gemessenen ΔM -Bereich. Dabei weisen die stärker verformten Proben wesentlich mehr Sprünge auf als die geringer verformten. Darüber hinaus nimmt mit steigender Verformung die Zahl der größeren Sprünge zu. Im Bereich A bzw. C kann die Abhängigkeit der für eine bestimmte Momentenänderung ΔM gemessene Anzahl $dN/d\Delta M$ der Barkhausen-Sprünge von der Korngröße d durch $dN/d\Delta M \sim d^{-x}$ mit $0,80 \leq x \leq 1,25$ im Intervall A und $0,50 \leq x$

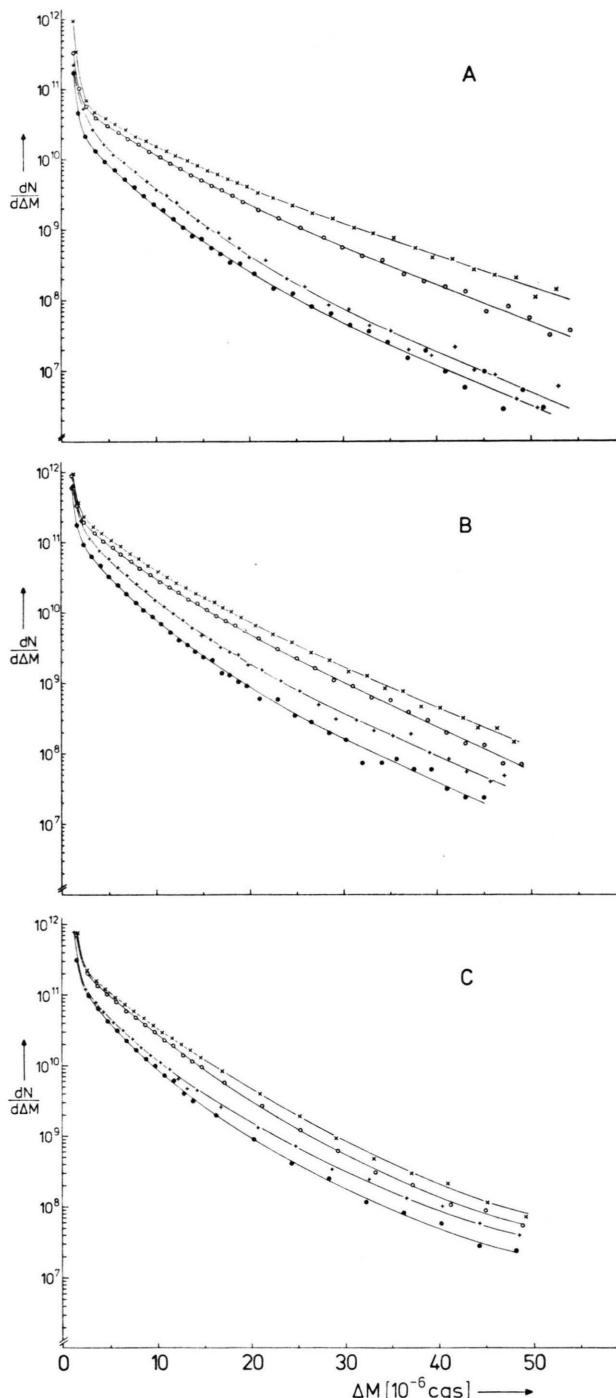


Abb. 2. Barkhausen-Spektren (gemittelt über jeweils mehrere Messungen) von rekristallisiertem Reineisen für die Magnetisierungssintervalle A, B und C mit der Korngröße als Parameter. Aufgetragen ist $dN/d\Delta M$, die Anzahl der Barkhausen-Sprünge pro cm^3 und ΔM -Einheit als Funktion von ΔM , gemessen in magnetischen cgs-Einheiten. ($\times \dots 30 \mu$, $\circ \dots 43 \mu$, $+\dots 250 \mu$, $\bullet \dots 353 \mu$).

$\leq 0,62$ im Intervall C beschrieben werden. Im Intervall B ist es nicht in dieser einfachen Form möglich, da die hier ablaufenden Ummagnetisierungsvorgänge komplizierterer Natur sind (siehe Abschnitt 4).

Beim Vergleich der Sprunggrößenverteilungen, die für das Magnetisierungssintervall A erhalten wurden, mit den für B gemessenen, ist festzustellen, daß die Sprungzahl im Intervall A für alle Korngrößen geringer ist als für dieselben Korngrößen im Intervall B. Ein solches Verhalten ist recht ungewöhnlich und es erschien notwendig, die Abhängigkeit der Zährate dN/dt der Barkhausen-Sprünge als Funktion des ummagnetisierenden äußeren Feldes H sowohl für hartgezogenes als auch geglühtes Reineisen gleichen Verformungsgrades festzustellen.

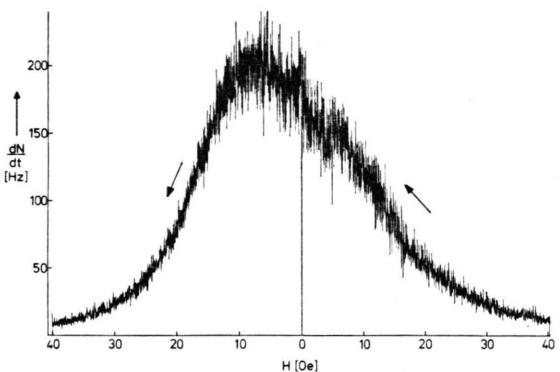


Abb. 3. Zählraten dN/dt der Barkhausen-Sprünge für 96% kaltverformtes Reineisen (Drahtdurchmesser 0,5 mm, Koerzitivfeldstärke 3,8 Oe) gemessen längs eines ganzen Hystereseastes. Die Pfeile geben die Richtung an, in der die Hysteresekurve durchlaufen wurde.

Abbildung 3 zeigt das mit einer Feldänderung $\dot{H} = 23 \text{ mOe/s}$ geschriebene Zählratenspektrum der Barkhausen-Sprünge gemessen entlang eines ganzen Hystereseastes für einen 96% kaltverformten Reineisendraht. Die maximale Zählrate tritt in der Umgebung der Koerzitivfeldstärke auf. Nach Rekristallisation des gleichen Drahtes bei den im Abschnitt 2 angegebenen Bedingungen stellt sich eine Korngröße von 30μ ein. Das zugehörige Zählratenspektrum ($\dot{H} = 46 \text{ mOe/s}$) besitzt nun zwei weit von der Koerzitivfeldstärke entfernte Maxima und ist in Abb. 4 gezeigt. Eine Zusammenstellung der Zählratenspektren für verschiedene Korngrößen erfolgt in Abbildung 5. Aus Gründen der Übersichtlichkeit sind in Abb. 5 nicht die direkt geschriebenen Zählraten-

spektren dargestellt, sondern die durch graphische Mittelung aus denselben gewonnenen Kurven.

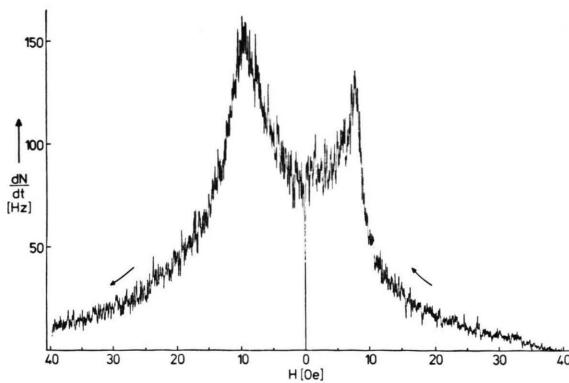


Abb. 4. Zählraten dN/dt der Barkhausen-Sprünge von rekristallisiertem Reineisen (Drahtdurchmesser 0,5 mm, Korngröße 30μ) gemessen längs eines ganzen Hystereseastes. Sonst wie Abbildung 3.

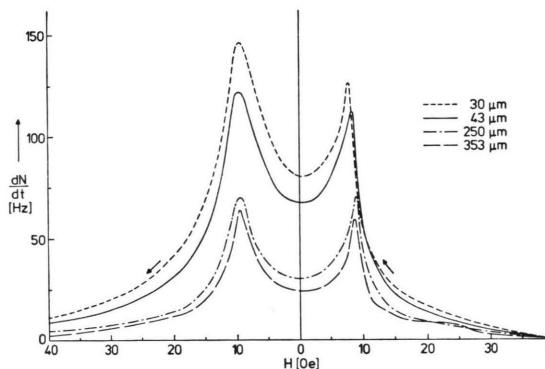


Abb. 5. Zählraten dN/dt der Barkhausen-Sprünge von Reineisen (Drahtdurchmesser 0,5 mm) gemessen längs eines ganzen Hystereseastes mit der Korngröße als Parameter; sonst wie Abbildung 4.

Die schon bei den Barkhausen-Spektren festgestellte Korngrößenfolge ist hier ebenfalls deutlich erkennbar. Qualitativ ergibt sich für die vier Korngrößen ein ähnliches Bild, bei großem Korn erscheint jedoch das Minimum ausgeprägter.

Eine Veränderung des in Abb. 5 dargestellten Kurvenverlaufs durch Variation der unteren Nachweisempfindlichkeit wurde nicht festgestellt. Um weiterhin sicherzustellen, ob die Lage der beiden Zählratenmaxima bezüglich der Hysteresiskurve weitgehend unabhängig von den geometrischen Abmessungen der Drahtproben ist, wurde das Zählratenpektrum für zwei verschiedenen lange Drahtstücke ein und desselben Drahtes gemessen. Die als Funktion

von J/J_s aufgetragenen Zählratenverteilungen zeigt Abbildung 6. Die Zählratenmaxima der kürzeren Probe sind gegen die Maxima der längeren Probe nur geringfügig verschoben, obwohl bei Kürzung der Probe von 36 mm auf 28 mm der Entmagnetisierungsfaktor um 58% zunimmt.

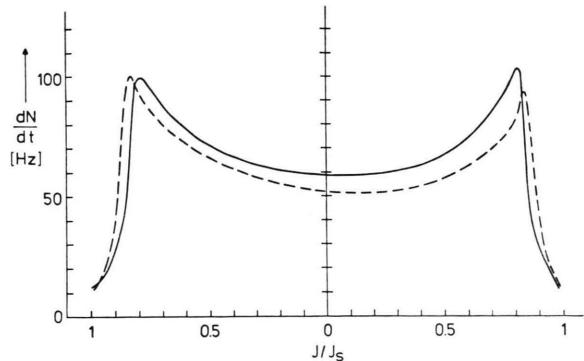


Abb. 6. Zählraten dN/dt der Barkhausen-Sprünge von Reineisen (Durchmesser 0,5 mm) gemessen längs eines ganzen Hystereseastes für zwei Probenlängen (— 36 mm, - - - 28 mm) als Funktion von J/J_s (J = Magnetisierung, J_s = Sättigungsmagnetisierung).

4. Diskussion der Ergebnisse

Bei der Rekristallisation hinterlässt die bewegte Korngrenze ein Gebiet mit einer Versetzungsichte von etwa 10^6 cm^{-2} ⁸. Die Wechselwirkung zwischen Blochwänden und Versetzungen, deren Burgers-Vektor senkrecht zur Blochwand steht, ist proportional zur Zahl der Versetzungen^{2, 9}. Da die Korngrenzen eine wesentlich höhere Versetzungsichte haben als das Korninnere, sind die Blochwände hauptsächlich in den Korngrenzen verankert. Diese Annahme wird im Fall von feinkörnigen Proben durch Untersuchungen von Globus und Duplex¹⁰ bestätigt.

Nach Untersuchungen von Bloor¹¹ an polykristallinem Reineisen nimmt die Anzahl der Domänen pro Korn selbst bei einer Verzehnfachung des Kordurchmessers lediglich um den Faktor 1,5 zu. Es soll daher im folgenden die Anzahl der Domänen pro Korn als annähernd konstant angesehen werden. Vergleicht man feinkörniges Material mit grobkörnigem, so ist also eine Zunahme in der Zahl der Bloch-Wände pro Volumeneinheit festzustellen. Eine weitere Bestätigung dafür sind die Ergebnisse von Mager¹². Diese haben eine Zunahme der Bloch-Wandfläche bei Übergang zu kleinerem Korn ergeben. Die Zunahme der Zahl der Bloch-Wände mit

abnehmendem Korndurchmesser bedingt ein Anwachsen der Zahl der bei der Ummagnetisierung auftretenden Barkhausen-Sprünge (siehe Abbildung 2).

Betrachtet man den bei der Messung der Barkhausen-Spektren überstrichenen ΔM -Bereich, so erhält man unter Zugrundelegung der Annahme von 180° -Wandverschiebungen, was im Gebiet geringer Magnetisierung der Probe sicher erlaubt ist, gemäß der Beziehung

$$\Delta M = 2 I_s \Delta V \quad (2)$$

für die Größe der Ummagnetisierungsvolumina ΔV einen Bereich von $(0,2 - 11,5) \cdot 10^{-10} \text{ cm}^3$.

Darüber hinaus sollen aber Ummagnetisierungsvolumina, die wesentlich größer als $11,5 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^3$ sind, existieren¹². Diese Volumina kann man sich schlauchartig in Richtung der Drahtachse ausgedehnt und aus einzelnen Körnern, die etwas gegeneinander verschwenkt sind, aufgebaut denken. Die Querschnittsfläche des Schlauchs wird dabei durch den jeweiligen Kornquerschnitt bestimmt, d. h. ΔV ist proportional zum Quadrat des Korndurchmessers d . Damit wäre aber gemäß Gl. (2) die Momentenänderung ΔM positiv mit der Korngröße korreliert. Da diese makroskopischen Sprungvolumina große Momentenänderungen bewirken, die weit oberhalb des erfaßten ΔM -Bereiches liegen, konnte eine solche Korngrößenabhängigkeit nicht festgestellt werden.

Die Form der Zählratenpektren lässt sich qualitativ auf folgende Weise interpretieren. Seit den Arbeiten von Träuble¹³ und Dietz et al.¹⁴ ist es als gesichert zu betrachten, daß im Verlauf der Ummagnetisierung eines Ferromagnetikums bestimmte Wandtypen in gewissen Magnetisierungsintervallen bevorzugt auftreten. Die Untersuchungen von Dietz¹⁴ zeigen darüber hinaus, daß die erwähnten Intervalle durch scharf definierte Punkte voneinander getrennt sind. Im Verlauf der reversiblen Permeabilität sind dieselben als deutlich unterscheidbare Kurvenstücke zu identifizieren. Nach Träuble¹³ muß die Aufteilung der Magnetisierungskurve in Bereiche mit hauptsächlich 180° -Wänden, 90° -Wänden und Drehprozessen, sowie nur mit Drehprozessen, unter ähnlichen Versuchsbedingungen auch bei anderen magnetischen Erscheinungen zutage treten, wie z. B. bei Barkhausen-Sprüngen. Eine Deutung der gemessenen Abhängigkeit der Barkhausen- und Zählratenpektren vom Magnetisierungszustand durch die verschiedenen starke Wechselwirkung von 180° - und 90° -

Blochwänden mit den jeweiligen Versetzungsnetzwerken und der dadurch bedingten Aufteilung der Magnetisierungskurve wird durch den Vergleich einiger charakteristischer Meßkurven in Abb. 7 gestützt. Der Punkt, an dem die Drehprozesse aufhören und die weitere Magnetisierungsänderung nur noch von Wandverschiebungen verursacht wird, ist im Verlauf des inneren Feldes H_i deutlich ausgeprägt als Knick zu erkennen (siehe Abbildung 7 b). Das äußere Magnetfeld beträgt in diesem Punkt 9,5 Oe.

Im Fall eines idealen Kristalls würde eine Wandbewegung schon von verschwindend kleinem innerem Feld verursacht werden. Gemessen wurden jedoch $H_i = -0,8$ Oe. Diese Feldstärke wird benötigt,

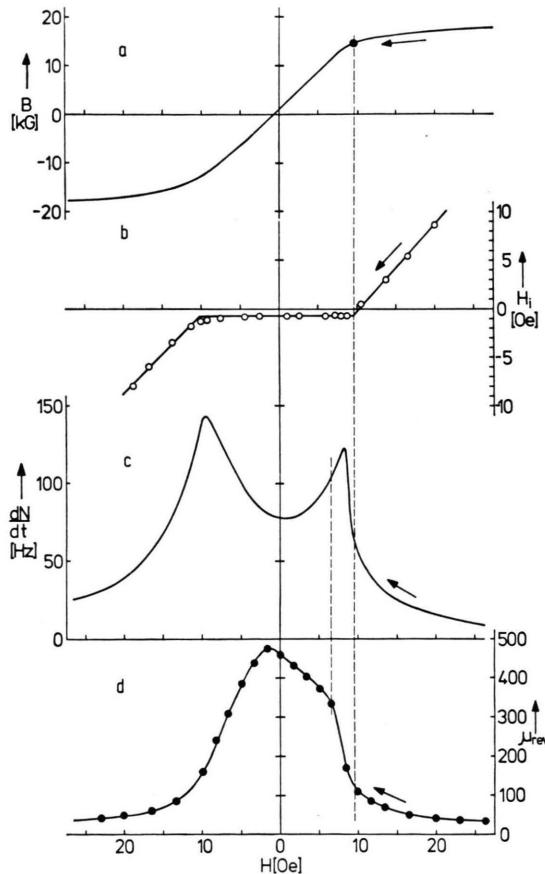


Abb. 7. Vergleichende Zusammenstellung charakteristischer Meßkurven für Reineisen (Drahtdurchmesser 0,5 mm, Korngröße 30μ). a) Hysteresekurve, b) inneres Feld H_i als Funktion des äußeren Feldes H (mit $H_i = H - N_g J$), c) Zählrate dN/dt der Barkhausen-Sprünge gemessen längs eines ganzen Hystereseastes, d) reversible Permeabilität μ_{rev} gemessen längs eines ganzen Hystereseastes.

um die Wände über die Haftstellen im Polykristall hinwegzutreiben, im Grunde also eine dauernde Energiezufuhr, die durch die Wirbelströme verursachenden Barkhausen-Sprünge dissipiert wird.

Bei weiter abnehmender Magnetisierung erreicht das äußere Feld einen weiteren ausgezeichneten Punkt bei $H = 6,6$ Oe, der sich im Verlauf von μ_{rev} bemerkbar macht und das Einsetzen der Bildung von 180° -Bloch-Wänden auf Kosten von 90° -Bloch-Wänden markiert. Ob jetzt im gesamten Bereich von $+6,6 \text{ Oe} \geq H \geq -6,6 \text{ Oe}$ eine Koexistenz von 180° -Wänden und 90° -Wänden vorliegt, oder ob nur 180° -Wände vorliegen, kann aus den vorliegenden Meßdaten nicht bestimmt werden.

Betrachtet man den Verlauf der Zählrate dN/dt der Barkhausen-Sprünge im Intervall von $H = 9,5$ Oe bis $H = 6,6$ Oe, so ist zu erkennen, daß das Maximum genau in das Intervall fällt, in dem überwiegend 90° -Wände verschoben werden. Da diese infolge ihrer weitreichenden Wechselwirkung von

einem relativ dichten Netz von Haltepunkten aufgespannt und in ihrer reversiblen Bewegung gehemmt werden, müssen sie mehr irreversible Sprünge ausführen, um ein gegebenes Volumen umzumagnetisieren. Andererseits deutet das Anwachsen der reversiblen Permeabilität darauf hin, daß gerade in diesem Gebiet zusätzlich gehäuft Ummagnetisierungskeime sprungartig gebildet werden und sich damit die gesamte Bloch-Wandfläche vergrößert. Da der Prozeß, der zur Bildung von Ummagnetisierungskeimen führt, in wahrscheinlich komplizierter Weise von der Korngröße abhängt, ist kein einfacher Zusammenhang wie z. B. ein Potenzgesetz für die Korngrößenabhängigkeit der im Intervall B gemessenen Barkhausen-Spektren zu erwarten.

Die Verfasser danken Herrn Prof. H. Daniel für seine wohlwollende und stete Unterstützung, Herrn Dr. A. Mager, Vakumschmelze Hanau, für die Bereitstellung der Proben und seine wertvollen Hinweise.

¹ A. Mager, Ann. Physik Lpz. **11**, 15 [1952].

² H. Thomas, Z. Metallkde. **59**, 686 [1968].

³ E. Adler u. H. Pfeiffer, IEEE Trans. MAG **10**, 172 [1974].

⁴ S. Säynäjäkangas u. M. Ottala, IEEE Trans. MAG **9**, 641 [1973].

⁵ S. Säynäjäkangas, IEEE Trans. MAG **10**, 39 [1974].

⁶ F. Förster, Z. Metallkde. **46**, 358 [1955].

⁷ F. Parzeval u. K. Stierstadt, Z. Physik **224**, 126 [1969].

⁸ K. Lücke u. R. Rixen, Z. Metallkde. **59**, 321 [1968].

⁹ K. H. Pfeffer, Phys. Stat. Sol. (b) **21**, 837 [1967].

¹⁰ A. Globus u. P. Duplex, Phys. Stat. Sol. (a) **3**, 53 [1970]; J. Physique **32**, C 1, 261 [1971].

¹¹ D. Bloor, Proc. Phys. Soc. London **81**, 493 [1963].

¹² A. Mager, private Mitteilung.

¹³ H. Träuble, Z. Metallkde. **53**, 211 [1962].

¹⁴ G. Dietz u. P. Wombacher, Z. Angew. Phys. **21**, 346 [1966].