

PACS numbers: 68.37.Lp, 72.15.Gd, 73.50.Jt, 75.47.Np, 75.50.Kj, 78.20.Ls, 85.70.Sq

Магнитотранспортные, магнитооптические и магнитные свойства аморфных сплавов на основе Co

В. Г. Кравец, Д. Ю. Манько, Л. В. Поперенко*, И. В. Юргелевич*

*Институт проблем регистрации информации НАН Украины,
ул. Шпака, 2,
03113 Киев, Украина*

**Киевский национальный университет имени Тараса Шевченко,
ул. Владимирская, 60,
01033 Киев, Украина*

Исследовано усиление магнитоимпедансного эффекта путём термической и лазерной обработок аморфного сплава $\text{Co}_{59}\text{Fe}_5\text{Ni}_{10}\text{Si}_{11}\text{B}_{15}$. При помощи магнитооптических измерений показано, что в результате лазерной и термической обработок аморфных металлических сплавов происходят необратимые изменения в структуре скин-слоя ленты и её магнитных свойствах. Исследования объёмных магнитных свойств показали существенное влияние внешнего магнитного поля при лазерной обработке. Результаты электронной микроскопии убеждают в существенном различии образовавшихся наногранул в аморфных лентах после лазерного и термического отжига.

Досліджено посилення магнетоімпедансного ефекту шляхом термічного і лазерного оброблень аморфного стопу $\text{Co}_{59}\text{Fe}_5\text{Ni}_{10}\text{Si}_{11}\text{B}_{15}$. За допомогою магнитооптичних вимірювань показано, що в результаті лазерного і термічного оброблень аморфних металевих стопів відбуваються незворотні зміни в структурі скин-шару стрічки та її магнетних властивостях. Дослідження об'ємних властивостей показали істотний вплив зовнішнього магнетного поля при лазерному обробленні. Результати електронної мікроскопії переконують в істотній різниці наногрануль, що утворилися в аморфних стрічках після лазерного і термічного відпалів.

The enhancement of the giant magnetoimpedance effect in amorphous $\text{Co}_{59}\text{Fe}_5\text{Ni}_{10}\text{Si}_{11}\text{B}_{15}$ alloy via the thermal and laser treatments is investigated. Magneto-optical investigations reveal irreversible changes in both the skin-layer structure of a ribbon and its magnetic properties because of the thermal and laser treatments. Studies of bulk magnetic properties reveal substantial influence of an external magnetic field under the laser treatment. The essential difference of formed nanogranules in amorphous ribbons after laser and

thermal treatments is found out using the electron microscopy.

Ключевые слова: аморфные металлические сплавы, магнитоимпеданс, магнитооптические характеристики, лазерный и термический отжиг.

(Получено 17 ноября 2010 г.)

1. ВВЕДЕНИЕ

Аморфные металлические сплавы (АМС) обладают улучшенными по сравнению с кристаллическими аналогами магнитными свойствами, благодаря которым находят свое применение в устройствах магнитоэлектроники [1, 2]. В этой связи важными представляются исследования магнитоимпедансного эффекта (МИЭ), обнаруженного в середине 90-х годов в аморфных лентах и проволоках [3]. В последующие годы исследователи прилагали усилия для выяснения физической сущности МИЭ и стремились повысить этот эффект в вышеуказанных материалах технологическим путем. Так, в литературе можно найти данные о влиянии термического и лазерного отжига [4–6] или джоулевого тепла при прохождении переменного тока через образец [7], а также о воздействии различных деформаций и ударных волн [8] на МИЭ. Анализ накопленных данных показывает, что эффект увеличения магнитоимпеданса (МИ) можно достигнуть наиболее эффективно путем термического отжига при соответствующем выборе состава образца. В результате такого отжига аморфные материалы становятся наноструктурированными. Размеры, полученных таким образом наногранул и их структура, существенно влияют на величину МИЭ. В работе выполнен анализ влияния термического и лазерного отжига на величину МИЭ. Для этого был выбран образец ленты АМС $\text{Co}_{59}\text{Fe}_5\text{Ni}_{10}\text{Si}_{11}\text{B}_{15}$ со значительным эффектом МИ в исходном состоянии. Важно, что этот сплав характеризуется предельно малой величиной магнитострикции. Величина МИ зависит от глубины δ проникновения электромагнитной волны в ленту (δ — порядка 1–5 мкм). В этой связи модификация поверхностного слоя при помощи лазерного отжига способствует существенному увеличению МИ. Выполненные магнитные и магнитооптические исследования позволили выяснить роль образовавшихся ферромагнитных гранул в процессе эволюции магнитоимпедансного эффекта.

2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Образцы АМС были получены методом спиннингования расплава в виде лент шириной 10–20 мм и толщиной 20–25 мкм. Образцы подвергались термической обработке в вакууме (10^{-6} мм рт. ст.) при

температурах $T = 350\text{--}475^\circ\text{C}$ и лазерному отжигу, методика выполнения которого детально описана в работах [6, 9]. Отжиг выполнялся лазерным излучением с длиной волны 1064 нм и плотностью энергии порядка 2,5–3,5 кВт/см² при приложении внешнего магнитного поля ($H \approx 2300$ Э) вдоль оси ленты АМС. Температура нагрева поверхностного слоя ленты в результате лазерного отжига была оценена расчетным путем и составляла порядка 350°C. Именно такому отжигу присущи быстрое варьирование энергетических параметров и возможность осуществления его на воздухе или в атмосфере аргона, когда устраняется окисление поверхности.

Эффект магнитоимпеданса исследовался в магнитных полях до 100 Э и частотах переменного тока, протекающего через образец, от 10 до 220 кГц. В ходе выполняемых измерений внешнее магнитное поле было ориентировано в плоскости образцов. Измерение величины магнитоимпеданса осуществлялось по схеме, состоящей из последовательно соединенного низкоомного резистора и исследуемого образца. Величина эффекта магнитоимпеданса $\Delta Z/Z$ определялась как

$$\Delta Z / Z = (Z_{H=0} - Z_H) / Z_{H=0} \cdot 100 \% = (U_{H=0} - U_H) / U_{H=0} \cdot 100\%, \quad (1)$$

где $Z_{H=0}$ и Z_H — импеданс образца при $H = 0$ и в магнитном поле величиной H соответственно, а $U_{H=0}$ и U_H — величины падения напряжения на образце в отсутствие поля и при приложении поля H .

Структура лент была исследована методами рентгеновской дифракции и электронной просвечивающей микроскопии высокого разрешения. Магнитное состояние аморфных и отожженных образцов определялось с помощью керровского магнитометра в геометрии полярного эффекта Керра на длине волны лазера $\lambda = 632,8$ нм, объёмные магнитные свойства определялись с помощью вибрационного магнитометра. Исследования микрорельефа поверхности выполнялись с помощью атомно-силового микроскопа TopoMetrix SPM. Эксперименты выполнялись в контактном режиме в воздушной атмосфере. Параметры шероховатости вычислялись с помощью программы TopoMetrix SPMLab.

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

На рисунке 1 представлены зависимости величин падения напряжения при прохождении переменного тока через ленту АМС $\text{Co}_{59}\text{Fe}_5\text{Ni}_{10}\text{Si}_{11}\text{B}_{15}$, помещенную в магнитное поле. Полученные зависимости свидетельствуют о влиянии термических обработок АМС на величину $\text{Re}(\Delta Z/Z)$.

Для этой аморфной ленты МИ достигает своего максимума при

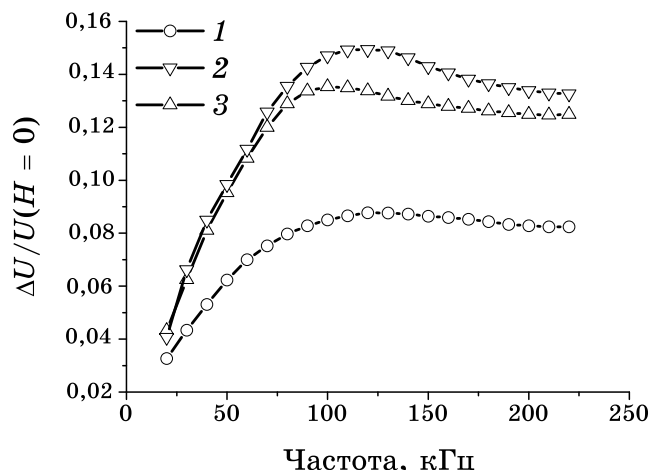


Рис. 1. Зависимости магнитоимпеданса $\text{Re}(\Delta Z/Z)$ для ленты АМС $\text{Co}_{59}\text{Fe}_5\text{Ni}_{10}\text{Si}_{11}\text{B}_{15}$: свежезакаленный образец (1), термический отжиг при $T = 350^\circ\text{C}$ (2), лазерный отжиг (Nd^{3+} лазер) (3).

частоте переменного тока $f \approx 100$ кГц. Термические обработки не изменяют частотную локализацию максимума. Относительная величина падения напряжения в приложенном внешнем магнитном поле H достигает уровня $\cong 8-9\%$. Термическая обработка лент АМС $\text{Co}_{59}\text{Fe}_5\text{Ni}_{10}\text{Si}_{11}\text{B}_{15}$ при 350°C в течение 10 минут приводит к увеличению МИ эффекта более чем в 1,8 раза по сравнению со значением для исходного состояния образца. Также свежезакаленный образец подвергнулся лазерной обработке при помощи Nd^{3+} лазера с длиной волны 1064 нм ($2,5$ кВт/см²). Из рисунка 1 видно, что лазерная обработка приводит к увеличению МИЭ приблизительно в 1,7 раза.

Об отличительном характере влияния термического и лазерного отжигов на физические характеристики материалов, в первую очередь, свидетельствуют результаты исследования структурного состояния образцов. На рисунке 2, а, б представлены результаты исследования структуры образца АМС $\text{Co}_{59}\text{Fe}_5\text{Ni}_{10}\text{Si}_{11}\text{B}_{15}$ как после его термообработки при температуре 350°C , так и после лазерного отжига, полученные при помощи электронного просвечивающего микроскопа.

Можно заметить, что выпадающие кластеры в результате термического отжига не имеют характерного размера, отличаются по форме, и их разброс по размерам очень существенный. Такая структура возникает благодаря эволюционным процессам диффузии атомов к существующим в аморфном состоянии микрокристаллическим зародышам. Медлительность этих процессов способствует созданию неоднородного структурного состояния. Лазерный отжиг дает возможность атомам металла и металлоидов приобрести боль-

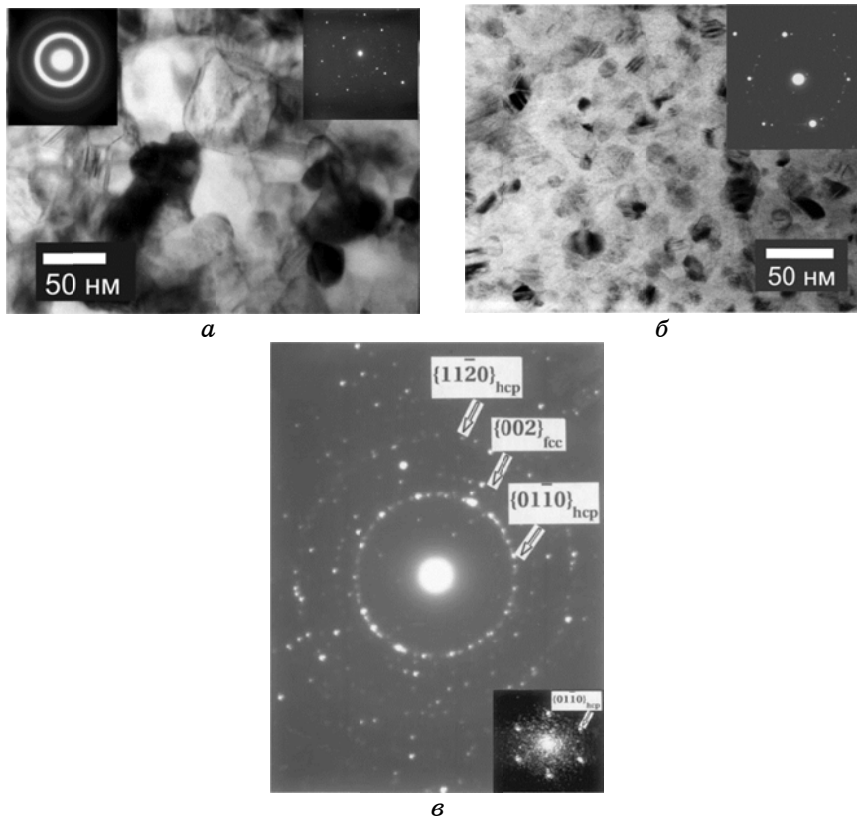


Рис. 2. Электронная просвечивающая микроскопия структуры ленты АМС $\text{Co}_{59}\text{Fe}_5\text{Ni}_{10}\text{Si}_{11}\text{B}_{15}$: (а) термический отжиг при $T = 350^\circ\text{C}$; (б) лазерный отжиг (Nd^{3+} лазер); (в) дифрактограмма нанокристалла, сформированного лазерным отжигом.

шую энергию и, следовательно, переместить их на значительные расстояния. Этот отжиг способствует выпадению кластеров, обогащенных металлическими компонентами (рис. 2), что подтверждают выполненные микронзондовые исследования. На рисунке 2, в представлены результаты микроскопических исследований сплава после лазерного отжига с плотностью энергии $P_w \approx 3,5 \text{ кВт/см}^2$ (рис. 2, б соответствует $P_w \approx 2,5 \text{ кВт/см}^2$).

Этот отжиг был выполнен для создания более упорядоченной структуры в наногранулах с целью определения кристаллических фаз. Видно, что лазерный отжиг приводит к формированию ГПУ-фаз $\alpha\text{-Co}$, о чем свидетельствуют кольца $\{0110\}_{\text{hcp}}$ и $\{1120\}_{\text{hcp}}$ (рис. 2, в). Количество нанокристаллитов, упорядоченных в ГЦК-Со-структуру, — незначительное, о чем свидетельствует малая интенсивность рассеяния света от $\{002\}_{\text{fcc}}$ плоскостей Со. Эксперимен-

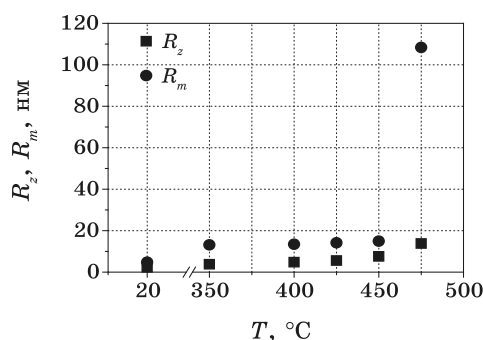


Рис. 3. Зависимости параметров шероховатости R_z , R_m для неконтактной поверхности ленты АС $\text{Co}_{59}\text{Fe}_5\text{Ni}_{10}\text{Si}_{11}\text{B}_{15}$ от температуры отжига.

тальные результаты указывают также на формирование упорядоченных фаз на основе $\alpha\text{-Co} + \text{Co}_3\text{B}$, Co_2B , CoSi , CoFe , CoNi . Анализ полученных дифрактограмм с помощью дифракции рентгеновского излучения на отдельных нанокристаллах подтвердил более предпочтительное упорядочение атомов Co в ГПУ-фазы $\{01\bar{1}0\}_{\text{hcp}}$ с углом между соответствующими плоскостями, равным 60° (вставка рис. 2, в).

Размеры кластеров (гранул) при лазерном отжиге слабо зависят от размеров и расположения зародышей, существующих в аморфной матрице. Следовательно, они имеют близкие размеры в отличие от кластеров, полученных путем термообработки ленты АМС.

Зависимость параметров микрорельефа неконтактной поверхности ленты при термическом отжиге указывает на начало кристаллизации АМС на основе Co при температуре отжига $T = 475^\circ\text{C}$ (рис. 3), хотя, согласно данным рентгеноструктурного анализа, температура кристаллизации для этого сплава составляет 492°C [10].

Монотонное возрастание параметров шероховатости для неконтактной поверхности при повышении температуры отжига происходит на фоне структурной релаксации АМС на основе Co , процесс которой активно проходит в интервале температур отжига $T = 350\text{--}475^\circ\text{C}$. Экспериментальным путем установлено, что МИ увеличивается с ростом величины поперечной магнитной проницаемости μ_t . В этой связи исследование магнитных характеристик АМС может дать ответ в отношении роли доменов в формировании зависимости $\text{Re}(\Delta Z/Z)$ от магнитного поля. Выполненные исследования гистерезисных кривых намагниченности M от магнитного поля H показали, что АМС на основе Co в основном характеризуются S -подобной характеристической кривой $M(H)$. Ось легкого намагничивания располагается в плоскости ленты, а величина коэрцитивной силы составляет около 200 А/м . После термического и лазерного отжигов гистерезисные кривые $M(H)$ приобретают форму, характерную для

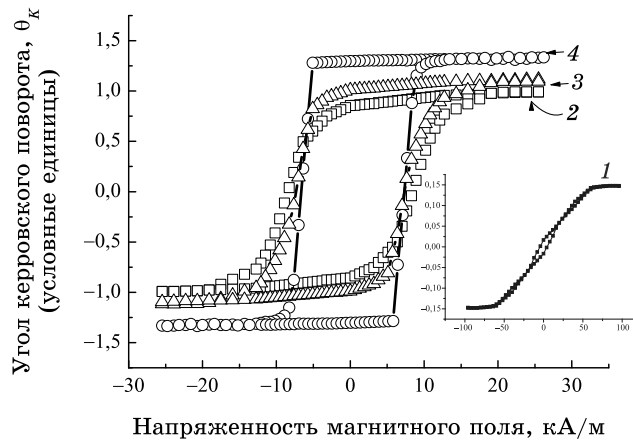


Рис. 4. Магнитооптические гистерезисные кривые $M(H)$ для лент АМС $\text{Co}_{59}\text{Fe}_5\text{Ni}_{10}\text{Si}_{11}\text{B}_{15}$: свежезакаленный образец (1), термический отжиг при $T = 350^\circ\text{C}$ (2), лазерный отжиг (Nd^{3+} лазер) (3), лазерный отжиг (Nd^{3+} лазер) при приложении внешнего магнитного поля 240 кА/м (4).

ферромагнитных материалов (рис. 4).

Форма кривых $M(H)$ приближается к прямоугольной и увеличивается коэрцитивная сила $H_C \cong 5,6-7,2$ кА/м. Следует отметить, что различие магнитных состояний сплава $\text{Co}_{59}\text{Fe}_5\text{Ni}_{10}\text{Si}_{11}\text{B}_{15}$ после термического и лазерного отжигов незначительное. После лазерного отжига во внешнем магнитном поле приповерхностная область ленты сплава глубиной порядка скин-слоя (30 нм), по-видимому, характеризуется однородной доменной структурой, о чем может свидетельствовать прямоугольный характер кривой $M(H)$ (рис. 4). Такое поведение зависимости $M(H)$ для сплава $\text{Co}_{59}\text{Fe}_5\text{Ni}_{10}\text{Si}_{11}\text{B}_{15}$, отожженного при помощи лазера во внешнем поле, указывает на большую величину доменной составляющей магнитной проницаемости μ_{dw} (см. соотношение (2)) в нем по сравнению с термически отожженным.

Следует также отметить, что такой отжиг приводит к сдвигу гистерезисной петли кривых намагниченности $M(H)$ на величину $\Delta H_C \cong 0,80-0,96$ кА/м. Такое поведение может быть объяснено на основе существования дополнительного обменного взаимодействия между верхним слоем, обогащенным атомами Co и B, и более глубокими слоями, содержащими все элементы сплава, а именно: Co, Fe, Ni, Si и B. Подобное смещение петли гистерезиса наблюдалось и в работах [11, 12] для аморфных сплавов на основе Co после их термической обработки в постоянном магнитном поле. Этот дополнительный экспериментальный факт объясняется тем, что термомагнитный отжиг приводит к выделению дисперсионных фаз $\alpha\text{-Co}$ с более высокой коэрцитивной силой по сравнению с аморфной мат-

рицей. Направление намагниченности в этих кластерах, вероятнее всего в α -Со-кластерах, определяется внешним магнитным полем в процессе отжига. Следовательно, в результате обменного взаимодействия между перемгничивающейся магнитомягкой фазой и неперемгничивающейся магнито жесткой фазой [11, 12] происходит смещение петли гистерезиса $M(H)$ (рис. 4).

Подобная физическая картина, вероятно, фиксируется при исследовании гистерезисных кривых $M(H)$ при помощи магнитооптического эффекта Керра, который обладает высокой чувствительностью к поверхностным слоям металлических сплавов. Этот экспериментальный факт также может свидетельствовать о том, что лазерный отжиг в магнитном поле способствует формированию в верхних слоях ленты структурных образований, обладающих отличительными от объемных слоев магнитными характеристиками. Различный характер дипольного взаимодействия пар соседних атомов в сплаве, а именно различие сил связи пар атомов металл-металл типа Со-Со по сравнению с парами атомов Со-Fe (Ni) или металл-металлоид, приводят к возникновению ориентационного, структурного упорядочения при лазерном отжиге в магнитном поле. Это обуславливает появление связанной с таким упорядочением магнитной одноосной анизотропии.

Результаты измерений намагниченности как функции магнитного поля на вибрационном магнитометре (рис. 5) демонстрируют сближение кривых для двух режимов отжигов. Это указывает на то, что в результате термического и лазерного отжигов объемные магнитные свойства нанокристаллических сплавов на основе Со

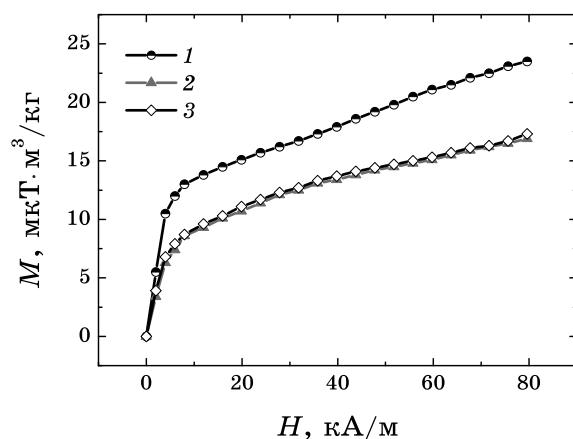


Рис. 5. Намагниченность лент АМС $\text{Co}_{59}\text{Fe}_5\text{Ni}_{10}\text{Si}_{11}\text{B}_{15}$, как функция магнитного поля, полученная на вибрационном магнитометре: свежезакаленный образец (1), термический отжиг при $T = 350^\circ\text{C}$ (2), лазерный отжиг (Nd^{3+} лазер) (3).

имеют много общих черт.

С другой стороны МИЭ является очень чувствительным к частоте переменного тока, протекающего по образцу. Как известно, глубина проникновения электромагнитной волны в объем ленты, т.е. толщина скин-слоя δ , является функцией частоты и может быть записана [13]:

$$\delta = (\rho / \pi f \mu_t)^{1/2}, \quad (2)$$

где ρ — сопротивление ленты АМС, а f — частота протекающего тока. При увеличении частоты величина δ уменьшается, но при этом возрастает импеданс и МИЭ. Изменения же магнитной проницаемости $\Delta\mu_t$ АМС при приложении магнитного поля H будет способствовать изменению $\Delta\delta$ глубины проникновения электромагнитного поля [14]:

$$\frac{\Delta\delta}{\delta} \approx -\frac{1}{2} \frac{\Delta\mu_t}{\mu_t}. \quad (3)$$

Следовательно, изменение толщины скин-слоя $\Delta\delta$ будет способствовать и росту магнитоимпеданса. Отжиг в магнитном поле позволяет создать поле наведенной магнитной анизотропии, которое стремится подавить влияние поля внутренней магнитной анизотропии на величину МИЭ. С возникновением индуцированной магнитной одноосной анизотропии в результате термообработки АМС во внешнем магнитном поле связывают и усиление МИЭ [4–6]. В магнитных сплавах после отжига возникают два вида анизотропии: одноосная анизотропия, характерная для аморфной фазы, и анизотропия, индуцированная в кристаллической фазе. Индуцированная магнитная анизотропия, которая возникает в результате магнитной термообработки лент аморфных сплавов, магнитострикция которых близка к нулю (сплавы на основе Co), обусловлена в основном парным взаимодействием атомов типа металл–металлоид. В то же время при помощи лазерной обработки для аморфных сплавов, обогащенных Co, можно достичь значительного смещения коэрцитивной силы H_c и увеличить магнитную проницаемость μ_t .

4. ВЫВОДЫ

Обнаружено влияние термической и лазерной обработок на увеличение магнитоимпедансного эффекта в аморфном сплаве $\text{Co}_{59}\text{Fe}_5\text{Ni}_{10}\text{Si}_{11}\text{B}_{15}$. Такое поведение может быть объяснено на основании экспериментальных фактов с доказательством перераспределения компонентов сплава в приповерхностном слое и изменения магнитного состояния поверхности ленты. Термический отжиг

лент аморфных сплавов на основе кобальта при температурах, что не превышают температуры кристаллизации, приводит к монотонному возрастанию параметров шероховатости на неконтактной стороне, а после их отжига при $T = 475^\circ\text{C}$ в поверхностном слое уже появляются микрообласти с упорядоченной структурой. При лазерной же обработке в магнитном поле в кристаллических фазах $\alpha\text{-Co}$ возникает еще и магнитная анизотропия. Вследствие этого происходит смещение гистерезисных кривых намагничивания. Следовательно, вызванное такими обработками лент Co-содержащего сплава изменение магнитных свойств в их приповерхностных слоях, способствует как возникновению магнитной анизотропии, так и увеличению магнитоимпедансного эффекта.

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. P. Marin and A. Hernando, *J. Magn. Magn. Mater.*, **215–216**: 729 (2000).
2. P. Ripka, *J. Magn. Magn. Mater.*, **215–216**: 735 (2000).
3. L. V. Panina, K. Mohri, K. Bushida, and M. Noda, *J. Appl. Phys.*, **76**: 6198 (1994).
4. M. Knobel and K. R. Pirota, *J. Magn. Magn. Mater.*, **242**: 33 (2002).
5. S. J. Ahn, K. J. Jang, and C. G. Kim, *J. Magn. Magn. Mater.*, **215–216**: 484 (2000).
6. Л. А. Булавин, В. Г. Кравец, К. Л. Винниченко, Д. Ю. Манько, *ЖПС*, **68**: 599 (2001).
7. L. Brunetti, P. Tiberto, F. Vinai, and H. Chiriac, *Mater. Sci. Eng.*, **304–306**: 961 (2000).
8. G. V. Kurylyandskaya, J. M. Barandiaran, M. Vazquez, D. Garcia, and N. V. Dmitrieva, *J. Magn. Magn. Mater.*, **215–216**: 740 (2000).
9. V. G. Kravets, A. K. Petford-Long, and X. Portier, *J. Mater. Science*, **37**: 2773 (2002).
10. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред* (Москва: Наука: 1982).
11. И. Б. Кекало, *Нанокристаллические магнитомягкие материалы* (Москва: МИСиС: 2000).
12. С. Тикадзуми, *Физика ферромагнетизма, магнитные характеристики и практическое применение* (Москва: Мир: 1987).
13. В. А. Полухин, Л. И. Малкина, *Металлы*, **5**: 116 (2000).
14. Н. И. Носкова, В. В. Шулика, А. Г. Лаврентьев, А. П. Потапов, Г. С. Корзунин, *ФММ*, **100**: 34 (2005).