

## ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ И МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА

УДК 539.213.2:537.622.4

### ВЛИЯНИЕ ТЕРМООБРАБОТКИ НА МАГНИТОИМПЕДАНС АМОРФНЫХ МАГНИТОМЯГКИХ ЛЕНТ СПЛАВА $\text{Co}_{68.5}\text{Fe}_4\text{Si}_{15}\text{B}_{12.5}$

© 2020 г. М. С. Деревянко<sup>а, \*</sup>, Д. А. Букреев<sup>а</sup>, А. А. Моисеев<sup>а</sup>,  
Г. В. Курляндская<sup>б</sup>, А. В. Семиров<sup>а</sup>

<sup>а</sup>Иркутский государственный университет, ул. К. Маркса, 1, Иркутск, 664001 Россия

<sup>б</sup>Уральский федеральный университет им. первого Президента России Б.Н. Ельцина,  
ул. Мира, 19, Екатеринбург, 620002 Россия

\*e-mail: mr.derevyanko@gmail.com

Поступила в редакцию 10.05.2019 г.

После доработки 13.08.2019 г.

Принята к публикации 19.08.2019 г.

Изучено влияние термообработки на магнитоимпедансный эффект (МИ) аморфных магнитомягких лент сплава  $\text{Co}_{68.5}\text{Fe}_4\text{Si}_{15}\text{B}_{12.5}$ , полученных быстрой закалкой из расплава на вращающийся барабан. Выявлено, что после термического воздействия при температурах 100°C и выше происходят необратимые изменения МИ в широком интервале частот переменного тока возбуждения. Показано, что изменение магнитоимпедансного отклика лент на действие упругих растягивающих напряжений связано с изменением знака константы магнитострикции насыщения ( $\lambda_s$ ), происходящим в результате термообработки.

*Ключевые слова:* магнитоимпеданс, термообработка, магнитострикция

DOI: 10.31857/S0015323020010052

#### ВВЕДЕНИЕ

Магнитомягкие аморфные сплавы на основе железа и кобальта интенсивно исследуются магнитологами и металловедомы уже несколько десятилетий [1]. Для данных материалов характерно сочетание высоких магнитомягких, механических и коррозионностойких свойств, что немаловажно для их практического применения [2]. Кроме того, в магнитомягких аморфных сплавах обнаружен ряд эффектов, открывающих возможности для создания на их основе высокочувствительных датчиков разнообразных внешних воздействий. В частности, в датчиках магнитного поля на основе магнитоимпедансного эффекта (МИ), заключающегося в изменении модуля полного электрического сопротивления на переменном токе (импеданса) под действием внешнего магнитного поля, достигнута чувствительность до 200%/Э [3–5]. Сильное изменение импеданса вызывают также деформационное и температурное воздействия, что делает возможным использование данных материалов в температурных и деформационных датчиках [6–8].

Для улучшения магнитомягких свойств аморфных ферромагнетиков и увеличения чувствительности МИ к внешним воздействиям прибегают к различного вида термообработкам [9, 10]. В свою очередь, термообработка приводит к необратимым

изменениям магнитных и электрических свойств, что необходимо учитывать при всестороннем исследовании материалов данного типа.

В данной работе исследуется влияние термообработки на магнитные и высокочастотные электрические свойства аморфных магнитомягких лент сплава  $\text{Co}_{68.5}\text{Fe}_4\text{Si}_{15}\text{B}_{12.5}$ .

#### ЭКСПЕРИМЕНТ

Образцы в виде лент были получены методом быстрой закалки из расплава на вращающийся барабан, их толщина составляла 24 мкм, ширина 0.71 мм. Рентгенофазовый анализ показал, что все образцы находились в аморфном состоянии как сразу после их получения, так и после термообработок. Намагниченность насыщения при комнатной температуре  $M_s$  составляла 0.7 Тл, коэрцитивная сила  $H_c = 39$  А/м, температура Кюри  $T_c = 357^\circ\text{C}$ , магнитострикция насыщения  $\lambda_s = -0.6 \times 10^{-7}$  [11]. Для исследований из ленты изготавливали образцы длиной 3 см.

Температурные исследования МИ были проведены на автоматизированном измерительном комплексе магнитоимпедансной спектроскопии [12] в диапазоне частот переменного тока  $f$  от 100 кГц до 100 МГц при действующем значе-

нии силы тока 1 мА. Внешнее магнитное поле  $H$  было ориентировано вдоль длины ленты, его максимальная напряженность  $H_{\max}$  в эксперименте составляла 12 кА/м.

Термообработка заключалась в поэтапном воздействии температуры на образец. Каждый этап включал в себя: 1) нагрев до температуры  $T$  со средней скоростью  $4^\circ\text{C}/\text{мин}$ ; 2) выдержку при температуре  $T$  в течение 25 мин; 3) охлаждение до комнатной температуры со средней скоростью  $4^\circ\text{C}/\text{мин}$ . Температура  $T$  включала в себя следующие значения: 50, 100, 150, 200 и  $250^\circ\text{C}$ .

Измерения МИ выполняли во время выдержки образца при температуре  $T$  и после его охлаждения до комнатной температуры.

Отметим также, что МИ образца измеряли как в недеформированном состоянии, так и при целенаправленном создании в нем упругих растягивающих напряжений ( $\sigma$ ) величиной 575 МПа. В последнем случае измерения проводили только при комнатной температуре для исключения термомеханического отжига [13].

Магнитоимпедансный эффект рассчитывали по формуле

$$\frac{\Delta Z}{Z} = \frac{Z - Z_{H_{\max}}}{Z_{H_{\max}}} \times 100\%, \quad (1)$$

где  $Z$  – модуль импеданса образца во внешнем магнитном поле  $H$ ,  $Z_{H_{\max}}$  – модуль импеданса образца во внешнем магнитном поле  $H_{\max}$ .

Магнитострикция насыщения исследована методом малоуглового вращения намагниченности (SAMR-метод) [14].

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 1 представлены частотные зависимости максимального значения МИ –  $(\Delta Z/Z)_{\max}$ , соответствующего максимуму на зависимости  $(\Delta Z/Z)(H)$ .

Из частотных зависимостей видно, что наибольшие значения  $(\Delta Z/Z)_{\max}$  обнаружены вблизи частоты 10 МГц при всех температурах термообработки (рис. 1а). Во всем исследованном диапазоне частот с повышением температуры эффект МИ уменьшается. Наибольшие изменения, связанные с температурой, при этом отмечаются на частоте 10 МГц – величина МИ эффекта снижается от 270 до 180% (рис. 1).

После каждого этапа термообработки зависимость  $(\Delta Z/Z)(H)$  измеряли повторно во всем частотном диапазоне при комнатной температуре и сравнивали с исходной зависимостью, полученной до нагрева образцов. Результаты данных измерений приведены на рис. 1а и 2а. Из них видно, что после нагрева до температуры  $100^\circ\text{C}$  и выше происходят необратимые изменения МИ. Так, на частоте 10 МГц изменение МИ образцов по сравнению с

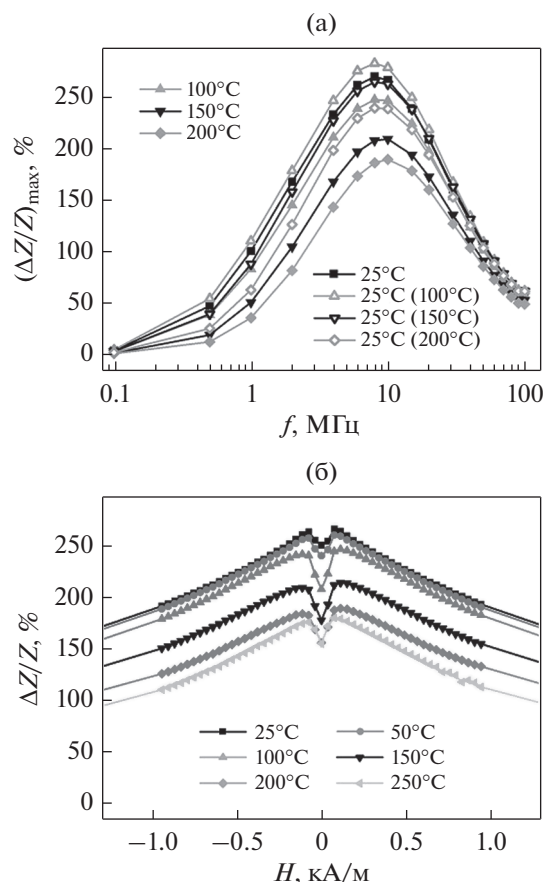
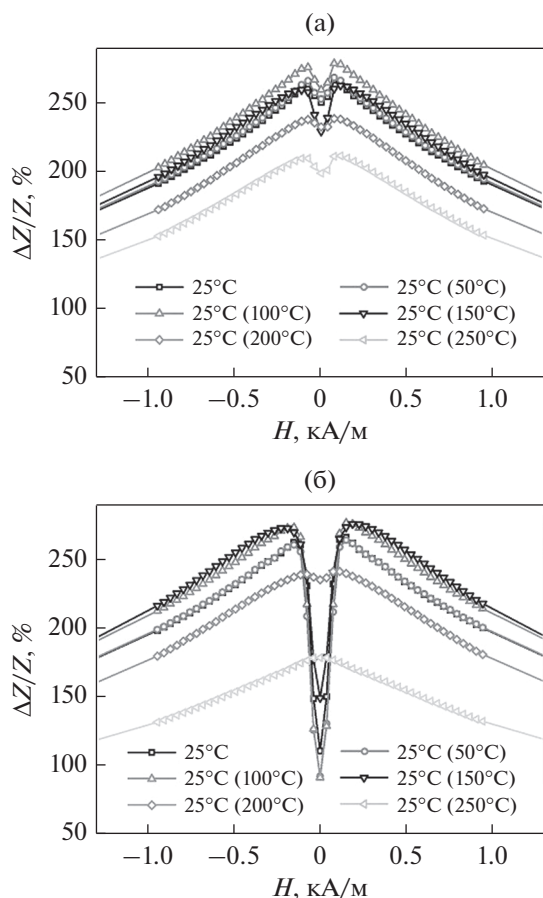


Рис. 1. Частотные зависимости максимального МИ (а) аморфных лент сплава  $\text{Co}_{68.5}\text{Fe}_4\text{Si}_{15}\text{B}_{12.5}$ , полученные при температурах 25, 100, 150 и  $200^\circ\text{C}$  – закрашенные маркеры, и после термообработки при указанных в скобках температурах – пустые маркеры. Полевые зависимости магнитоимпедансного отношения  $(\Delta Z/Z)$  (б), полученные при температурах 25, 50, 100, 150, 200 и  $250^\circ\text{C}$  и частоте переменного тока 10 МГц.

исходным состоянием варьируется в пределах от 12 до 49% в зависимости от температуры. Причем, величина МИ отношения сначала возрастает, а затем уменьшается. Данные изменения могут быть связаны с начавшимися процессами структурной релаксации, протекание которых характерно для аморфных быстрозакаленных магнитомягких ферромагнетиков при нагревании [15, 16].

Эти процессы приводят к изменению магнитных свойств лент. Например, как следует из работ [17–19], термообработка схожих по составу магнитомягких аморфных материалов приводит к необратимому изменению знака константы магнитострикции. Однако нужно отметить, что в этих работах термообработку выполняли при температурах значительно более высоких, чем максимальная температура, до которой нагревали ленты в данной работе.

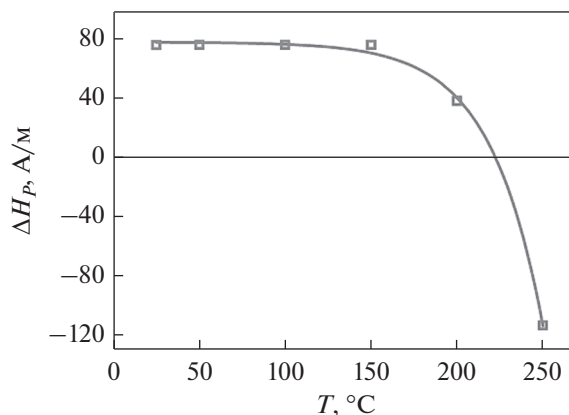


**Рис. 2.** Зависимости величины МИ отношения от внешнего магнитного поля, полученные для аморфных лент сплава  $\text{Co}_{68.5}\text{Fe}_4\text{Si}_{15}\text{B}_{12.5}$  при температуре 25°C до и после термообработки при 50, 100, 150, 200 и 250°C в отсутствие растягивающих напряжений (а) и при упругих растягивающих напряжениях 575 МПа (б). Частота переменного тока составляла 10 МГц.

Кроме того, была проведена оценка влияния термообработки на величину магнитострикции, исходя из характера изменений магнитополевых зависимостей МИ при создании в образце растягивающих напряжений.

Так, сравнивая магнитополевые зависимости, полученные при создании в образце растягивающих напряжений  $\sigma = 575$  МПа (рис. 2б) с соответствующими зависимостями, полученными при  $\sigma = 0$  МПа (рис. 2а), можно видеть, что после термообработки образцов при 50 и 100°C на зависимостях  $(\Delta Z/Z)(H)$  происходит увеличение возрастающего участка.

После термообработки при 150°C возрастающий участок незначительно уменьшается, тогда как после нагрева до 200 и 250°C происходит резкое уменьшение и исчезновение возрастающего участка, соответственно.



**Рис. 3.** Зависимость величины  $\Delta H_p$  (см. выражение 2) после термообработки ленты сплава  $\text{Co}_{68.5}\text{Fe}_4\text{Si}_{15}\text{B}_{12.5}$  при температуре  $T$ .

Под действием растягивающих напряжений максимум на зависимости  $(\Delta Z/Z)(H)$  смещается в область больших полей после термообработки образца при температурах 200°C и ниже, а после термообработки при 250°C – в область меньших полей. Это удобно проиллюстрировать зависимостью:

$$\Delta H_p(T) = H_p(T, \sigma = 575 \text{ МПа}) - H_p(T, \sigma = 0 \text{ МПа}), \quad (2)$$

где  $H_p(T, \sigma = 575 \text{ МПа})$  и  $H_p(T, \sigma = 0 \text{ МПа})$  – поле, соответствующее максимуму на зависимостях  $(\Delta Z/Z)(H)$ , полученных при  $\sigma = 575$  МПа и  $\sigma = 0$  МПа, соответственно, после термообработки при температуре  $T$ . Зависимость  $\Delta H_p(T)$  приведена на рис. 3.

Основываясь на ранее проведенных нами исследованиях [20, 21], можно сделать вывод, что после термообработки при температурах 150°C и ниже магнитострикция образца остается отрицательной. После термообработки при 200°C магнитострикция принимает значение, близкое к нулю, что хорошо прослеживается при сравнении магнитоимпедансных зависимостей, полученных при  $\sigma = 0$  МПа и  $\sigma = 575$  МПа (рис. 2).

Термообработка при 250°C приводит к изменению знака магнитострикции с отрицательного на положительный. Этот вывод подтверждается измерениями константы магнитострикции насыщения методом SAMR, согласно которым для образцов в исходном состоянии  $\lambda_s = -0.85 \times 10^{-7}$ , а после термообработки при 250°C  $\lambda_s = 3.5 \times 10^{-6}$ .

Магнитоимпедансный эффект с самого начала его исследований рассматривали как очень чувствительный метод оценки особенностей эффективной магнитной анизотропии [22].

Однако в последнее время целый ряд новых технологических и биомедицинских приложений потребовал проведения дополнительных исследований для разработки детекторов нового типа или адаптации уже существующих устройств к новым условиям использования, например для оценки полей рассеяния магнитных наночастиц в биокompозитах [23].

В связи с этим полученные в настоящем исследовании результаты могут представлять дополнительный практический интерес.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе были изучены изменения магнитных и магнитоимпедансных свойств лент аморфного сплава  $\text{Co}_{68.5}\text{Fe}_4\text{Si}_{15}\text{B}_{12.5}$ , вызываемые термообработкой при температурах от 50 до 250°C.

Было обнаружено, что термообработка при 100°C и выше приводит к необратимому изменению магнитоимпедансных свойств. Термообработка при температуре 250°C приводит к изменению знака константы магнитострикции с отрицательного на положительный. Данный вывод экспериментально подтвержден прямыми измерениями константы магнитострикции насыщения аморфных лент методом SAMR. Полученные результаты необходимо учитывать при использовании лент аморфного сплава  $\text{Co}_{68.5}\text{Fe}_4\text{Si}_{15}\text{B}_{12.5}$  в датчиках магнитного поля и других внешних воздействиях при их использовании в интервале технологических температур.

Работа выполнена по заданию Минобрнауки России на выполнение научно-исследовательских работ, проект 3.1941.2017/4.6.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Panina L.V., Mohri K.* Magneto-impedance effect in amorphous wires // *Appl. Phys. Lett.* 1994. V. 65. № 9. P. 1189–1191.
2. *Makhotkin V.E., Shurukhin B.P., Lopatin V.A., Marchukov P.Y., Levin Y.K.* Magnetic field sensors based on amorphous ribbons // *Sensors Actuators A*. 1991. V. 27. № 1–3. P. 759–762.
3. *Vacher F., Alves F., Gilles-Pascaud C.* Eddy current non-destructive testing with giant magneto-impedance sensor // *NDT and E Int.* 2007. V. 40. № 6. P. 439–442.
4. *García-Arribas A., Gutiérrez J., Kurlyandskaya G., Barandiarán J., Svalov A., Fernández E., Lasheras A., de Cos D., Bravo-Imaz.* Sensor applications of soft magnetic materials based on magneto-impedance, magneto-elastic resonance and magneto-electricity // *Sensors (Switzerland)*. 2014. V. 14. № 5. P. 7602–7624.
5. *Kurlyandskaya G.V., García-Arribas A., Barandiarán J.M., Kisker E.* Giant magnetoimpedance strip and coil sensors // *Sensors Actuators, A Phys.* 2001. V. 91. № 1–2. P. 116–119.
6. *Kurniawan M., Roy R.K., Panda A.K., Greve D.W., Ohodnicki P., McHenry M.E.* Temperature-Dependent Giant Magnetoimpedance Effect in Amorphous Soft Magnets // *J. Electron. Mater.* 2014. V. 43. № 12. P. 4576–4581.
7. *Nabias J., Asfour A., Yonnet J.-P.* Temperature effect on GMI sensor: comparison between diagonal and off-diagonal response // *Sensors Actuators A Phys.* 2019. V. 289. P. 50–56.
8. *Mohri K., Uchiyama T., Shen L., Cai C., Panina L., Honkura Y., Yamamoto M.* Amorphous wire and CMOS IC-based sensitive micromagnetic sensors utilizing magnetoimpedance (MI) and stress-impedance (SI) effects // *IEEE Trans. Magn.* 2002. V. 38. № 5. P. 3063–3068.
9. *Jin F., Zhou L., Cheng W., Zhang Y., Tong B., Xu Y.* Effect of Shape and Annealing on the Giant Magnetoimpedance Properties of FeCoSiB Ribbon // *IEEE Trans. Magn.* 2014. V. 50. № 10. P. 2–5.
10. *Hernando B., Olivera J., Sánchez M., Prida V., Pérez M., Santos J., Gorria P., Belzunce F.* Soft magnetic properties, magnetoimpedance and torsion-impedance effects in amorphous and nanocrystalline FINEMET alloys: Comparison between ribbons and wires // *Phys. Met. Metal.* 2006. V. 102. № S1. P. S13–S20.
11. *Lotfollahi Z., García-Arribas A., Amirabadizadeh A., Orue I., and Kurlyandskaya G. V.* Comparative study of magnetic and magnetoimpedance properties of CoFeSiB-based amorphous ribbons of the same geometry with Mo or W additions // *J. Alloys Compd.* 2017. V. 693. P. 767–776.
12. *Семиров А.В., Моисеев А.А., Букреев Д.А., Кудрявцев В.О., Гаврилюк А.А., Захаров Г.В., Деревянко М.С.* Автоматизированный измерительный комплекс магнитоимпедансной спектроскопии магнитомягких материалов // *Научное приборостроение*. 2010. V. 20. № 2. P. 120–123.
13. *Курляндская Г.В., Дмитриева Н.В., Помапов А.П., Лушкина В.А., Воронова Л.М., Гервасьева И.В., Бибенин Н.Г.* Магнитная анизотропия, наведенная в результате термомеханической обработки аморфного сплава  $\text{Fe}_3\text{Co}_{67}\text{Cr}_3\text{Si}_{15}\text{B}_{12}$  // *ФММ*. 1997. V. 83. № 5. P. 41–46.
14. *Narita K., Yamasaki J., Fukunaga H.* Measurement of Saturation Magnetostriction of a Thin Amorphous Ribbon by Means of Small-Angle Magnetization Rotation // *IEEE Trans. Magn.* 1980. V. 16. № 2. P. 435–439.
15. *Hernando B., Olivera J., Alvarez P., Santos J.D., Sánchez M.L., Pérez M. J., Sánchez T., Gorria P.* The effect of different annealing treatments on magneto-impedance in Finemet wires // *Phys. B Condens. Matter*. 2006. V. 384. № 1–2. P. 165–168.
16. *Chlenova A.A., Stepanova E.A., Golubeva E.V., Lotfollahi Z.* Magnetoimpedance and magnetic properties of  $\text{Co}_{72}\text{Fe}_5\text{Ni}_{10}\text{Cr}_5\text{Si}_7\text{B}_3$  amorphous ribbons in different states // *J. Magn. Magn. Mater.* 2017. V. 440. P. 210–212.
17. *Tejedor M., Hernando B., Sánchez M.L., Prida V.M., Vázquez M.* The magnetostriction and stress dependence of the magneto-impedance effect in ribbons of amorphous  $\text{Fe}_4\text{Co}_{67}\text{Mo}_{1.5}\text{Si}_{16.5}\text{B}_{11}$  // *J. Phys. D. Appl. Phys.* 1998. V. 31. P. 2431–2437.

18. *Vazquez M., Ovari T., Hristoforou E., Neagu M., Chiriac H.* Stress dependence of the saturation magnetostriction in  $\text{Co}_{68.15}\text{Fe}_{4.35}\text{Si}_{12.5}\text{B}_{15}$  glass-covered amorphous wires // *J. Magn. Magn. Mater.* 2002. V. 249. № 1–2. P. 122–125.
19. *Costa-Krämer J.L., Rao K.V.* Influence of magnetostriction on magneto-impedance in amorphous soft ferromagnetic wires // *IEEE Trans. Magn.* 1995. V. 31. № 2. P. 1261–1265.
20. *Семиров А.В., Букреев Д.А., Кудрявцев В.О., Моисеев А.А., Гаврилюк А.А., Семенов А.Л., Захаров Г.В.* Влияние температуры на магнитоимпеданс упругодеформированной фольги состава  $\text{Fe}_4\text{Co}_{67}\text{Mo}_{1.5}\text{Si}_{16.5}\text{B}_{11}$  // *Журн. Технической Физики.* 2009. V. 79. № 11. P. 25–29.
21. *Derevyanko M.S., Semirov A.V., Kurlyanskaya G.V., Bukreev D.A., Moiseev A.A.* Magnetoimpedance of Amorphous Ferromagnetic  $\text{CoFeSiB}$  Ribbons in the Wide Temperature Range // *Solid State Phenom.* 2014. V. 215. P. 337–341.
22. *Sommer R.L., Chien C.L.* Role of magnetic anisotropy in the magnetoimpedance effect in amorphous alloys // *Appl. Phys. Lett.* 1995. V. 67. P. 857.
23. *Safronov A., Mikhnevich E., Lotfollahi Z., Blyakhman F., Sklyar T., Larrañaga Varga A., Medvedev A., Fernández Armas S., Kurlyanskaya G.* Polyacrylamide ferrogels with magnetite or strontium hexaferrite: Next step in the development of soft biomimetic matter for biosensor applications. *Sensors (Switzerland)*, 2018. V. 18. № 1.