# ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ И МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА

УДК 537.622.4:539.213.27:53.096:53.098

# ТЕРМООБРАТИМОСТЬ МАГНИТНОГО ИМПЕДАНСА АМОРФНЫХ ЛЕНТ CoFeSiB

© 2021 г. Д. А. Букреев<sup>*a*, \*, М. С. Деревянко<sup>*a*</sup>, А. А. Моисеев<sup>*a*</sup>, З. Лотфолахи<sup>*b*</sup>, Г. В. Курляндская<sup>*b*, *c*</sup>, А. В. Семиров<sup>*a*</sup></sup>

<sup>а</sup>Иркутский государственный университет, ул. К. Маркса, 1, Иркутск, 664003 Россия <sup>b</sup>Университет Страны Басков, Лейоа, 48940 Испания <sup>c</sup>Уральский федеральный университет, ул. Мира, 19, Екатеринбург, 620002 Россия \*e-mail: da.bukreev@gmail.com Поступила в редакцию 08.02.2021 г. После доработки 22.03.2021 г. Принята к публикации 22.03.2021 г.

Представлены результаты исследования термообратимости магнитоимпедансного эффекта в лентах Co<sub>68.5</sub>Fe<sub>4</sub>Si<sub>15</sub>B<sub>12.5</sub>. Для объяснения полученных результатов принимаются во внимание температурные изменения магнитоупругих свойств. Также обсуждается необходимость учета совместного влияния температуры и механических напряжений для решения вопросов повышения термообратимости сенсоров на основе магнитного импеданса.

*Ключевые слова:* магнитоимпеданс, аморфные сплавы, сенсоры, термостабильность сенсоров, термообратимость сенсоров

DOI: 10.31857/S0015323021080039

### введение

Высокочастотные электромагнитные свойства аморфных магнитомягких сплавов проявляют высокую чувствительность к разнообразным внешним воздействиям, вызывающим изменение их магнитной проницаемости [1]. В частности, в проволоках, лентах и пленках при определенных условиях наблюдается высокий магнитоимпедансный эффект (МИ) [2, 3], который заключается в изменении полного электрического сопротивления (импеданса) под действием внешнего магнитного поля.

Несмотря на достаточно продолжительную историю изучения МИ, внимание исследователей к нему не ослабевает и в настоящее время, что обусловлено перспективами создания на основе этого эффекта высокочувствительных сенсоров магнитного поля [4-6], предназначенных, в том числе, для применения в биологии и медицине [7]. В последнее время уделяется повышенное внимание особенностям температурного поведения МИ [8, 9]. Исследования в этом направлении важны для определения температурных диапазонов термостабильности и термообратимости МИ-элементов [10, 11]. Последнее связано не только с релаксационными процессами при нагреве, но и с параметрами эффективной магнитной анизотропии в быстрозакаленных материалах, где существенное влияние могут иметь наведенная магнитная анизотропия, анизотропия формы и поверхностная магнитная анизотропия [12].

Под термостабильностью МИ в некотором диапазоне температур принято понимать отсутствие его значительных изменений при изменении температуры в этом диапазоне. Кроме того, важна термообратимость МИ, т.е. повторяемость значений при температуре *T* независимо от того, до какой температуры из температурного диапазона исследований нагревался или охлаждался МИ-элемент предварительно.

При обсуждении термостабильности и термообратимости МИ необходимо принимать во внимание, что МИ-сенсор – это сложное устройство, состоящее из разнородных материалов [5, 6, 13], имеющих в общем случае отличающиеся температурные коэффициенты теплового расширения. По этой причине изменение температуры будет приводить к изменению механических напряжений в МИ-элементе, влияя на его магнитную проницаемость, а значит – на выходной сигнал и термостабильность всего устройства [14, 15]. Например, в работе [15] было установлено, что в присутствии механических напряжений МИ ленты CoFeSiB термостабилен только при температурах, не превышающих 325 К. Последнее, вероятно, связано с тем, что магнитострикция при рассматриваемых температурах невелика.

Действие механических напряжений при повышенных температурах способно, в числе прочего, приводить к формированию наведенной магнитной анизотропии [16]. Это может значительно изменить МИ-отклик после охлаждения, влияя не только на термостабильность, но и на термообратимость характеристик МИ-элемента. К сожалению, вопросу влияния механических напряжений на термообратимость МИ не уделяется достаточное внимание.

В настоящей работе представлены результаты исследований термообратимости МИ аморфных лент CoFeSiB. Исследования проведены в широком диапазоне частот переменного тока.

### ОБРАЗЦЫ

# И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ МЕТОДИКИ

Аморфные ленты сплава  $Co_{68.5}Fe_4Si_{15}B_{12.5}$  толщиной 24 мкм и шириной 710 мкм были получены методом быстрой закалки из расплава на вращающийся барабан. Для исследований использовали ленты, прошедшие термообработку при температуре 425 К в течение 8 ч в отсутствие дополнительных внешних воздействий [15]. Рентгенофазовый анализ выполнили на установке PANalytical X'Pert PRO X-ray Diffractometer в Cu $K_{\alpha}$ -излучении. Он показал, что образцы находятся в аморфном состоянии как сразу после получения, так и после термообработки.

Для исследования магнитных свойств и магнитного импеданса были подготовлены образцы длиной 30 мм. Магнитные свойства изучали индукционным методом в продольном магнитном поле, изменяющемся с частотой 1 кГц и амплитудой 1.5 кА/м.

Модуль импеданса образцов Z измеряли на разработанной ранее автоматизированной установке, описание которой представлено в работе [15]. Измерения Z проводили в диапазоне частот переменного тока возбуждения f от 0.1 до 100 МГц при действующем значении силы тока 1 мА. Внешнее магнитное поле H было ориентировано вдоль длинной стороны образца, его максимальная напряженность  $H_{\text{max}}$  составляла 12 кА/м.

Величину магнитоимпедансного эффекта рассчитывали следующим образом:

$$MI(H) = \frac{Z(H) - Z(H_{\text{max}})}{Z(H_{\text{max}})} \times 100\%,$$
 (1)

где Z(H) и  $Z(H_{\text{max}})$  — модули импеданса в магнитных полях H и  $H_{\text{max}}$ , соответственно.

При исследовании термообратимости магнитоимпедансных характеристик МИ измеряли только при комнатной температуре в отсутствие механических напряжений. Перед этим образец в присутствии внешних растягивающих напряжений о<sub>h</sub> нагревали до температуры T<sub>h</sub> с последующим охлаждением до комнатной температуры. Как при нагреве, так и при охлаждении температуру изменяли со скоростью 3 К/мин. В результате этой процедуры образец оказывался в состоянии, которое для краткости обозначим  $S(T_h; \sigma_h)$ . Величина  $T_h$  принимала следующие значения: 315, 325, 345, 365, 385 и 405 К, а величина  $\sigma_h - 0$ , 175 и 350 МПа. За исходное принимали состояние S(405; 0), т.е. состояние, в котором оказывался образец после нагрева до 405 К с последующим охлаждением до комнатной температуры в отсутствие механических напряжений ( $\sigma_h = 0$  МПа).

Для определения величины магнитострикции и ее зависимости от температуры измеряли МИ образца, предварительного переведенного в состояние S(405; 0). Измерения проводили в диапазоне температур от 295 до 405 К. При этом к образцу вдоль длинной стороны прикладывали растягивающие механические напряжения  $\sigma$ , максимальное значение которых достигало 410 МПа. Для расчета магнитострикции определяли приращение поля  $H_p$  (напряженность магнитного поля, соответствующая максимуму на зависимости MI(H)), вызванное изменением  $\sigma$  [17]. Предполагалось, что поле  $H_p$  близко к полю анизотропии. Также учитывали, что величина магнитострикции зависит от механических напряжений [18]:

$$\lambda_s = \lambda_{s0} - \beta\sigma, \tag{2}$$

где  $\lambda_{s0}$  — магнитострикция в отсутствие механических напряжений,  $\beta$  — коэффициент, обычно принимающий значение в диапазоне (1–6) ×  $\times 10^{-10}$  МПа<sup>-1</sup>.

### РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Петли магнитного гистерезиса M(H) от состояния к состоянию изменяются очень слабо. Образцы во всех состояниях демонстрируют продольную эффективную анизотропию, их намагниченность насыщения и коэрцитивная сила равны приблизительно 560 кА/м и 65 А/м соответственно (рис. 1).

На рис. 2 приведены зависимости магнитоимпеданса от частоты переменного тока возбуждения. Во всем исследованном диапазоне частот переменного тока значения  $MI_{max}$  от состояния к состоянию изменяются не более чем на 1% ( $MI_{max}$  – это максимальное значение МИ во внешнем магнитном поле (см. рис. 3)). При этом независимо от состояния максимум на зависимости  $MI_{max}(f)$  наблюдается на частотах f от 8 до 10 МГц, где  $MI_{max}$ достигает приблизительно 190%.

Частотные зависимости величины  $MI_0 = MI(H = 0)$  от состояния к состоянию изменяются более заметно (рис. 2). Наиболее сильно зависимости  $MI_0(f)$  отличаются друг от друга в диапазоне частот от 8 до 20 МГц. Например, разность зна-



Рис. 1. Петли гистерезиса аморфной ленты Co<sub>68.5</sub>Fe<sub>4</sub>Si<sub>15</sub>B<sub>12.5</sub>.

чений  $MI_0$ , измеренных в состояниях S(405; 350) и S(405; 0), в этом диапазоне частот приближается к 10%.

Магнитоимпедансные полевые зависимости MI(H) на частотах переменного тока 1 МГц и выше независимо от состояния образца имеют восходящий участок в области малых магнитных полей (рис. 3). Это свидетельствует о том, что магнитная анизотропия кроме продольной (см. петли гистерезиса на рис. 1) также имеет и поперечную составляющую [16]. При этом МИ в нулевом поле  $MI_0$  заметно выше нуля (см. также рис. 2). Учитывая это, можно сделать вывод, что поперечная составляющая невелика.

Зависимости MI(H), полученные при различных состояниях образца, заметно различаются в интервале полей от 0 до  $\sim H_p$  (рис. 3). При более высоких напряженностях внешнего магнитного поля различия практически незаметны. Наряду со слабым изменением  $MI_{max}$  от состояния к состоянию (рис. 2) это свидетельствует о достаточно высокой термостабильности магнитоимпедансного эффекта при  $H \ge H_p$ .

Если сравнить состояния с одним и тем же значением  $T_h$  и разными  $\sigma_h$ , то можно видеть, что с увеличением  $\sigma_h$  величина  $H_p$  уменьшается, а  $MI_0$  увеличивается (рис. 3а). То же самое наблюдается при сравнении состояний с одним и тем же значением  $\sigma_h$ , но увеличивающимся значением  $T_h$  (рис. 3б). Наиболее вероятной причиной описанного изменения зависимостей MI(H)от состояния к состоянию в обоих случаях является уменьшение поперечной составляющей эффективной магнитной анизотропии. Так, из результатов работы [15] следует, что чем меньше угол



**Рис. 2.** Частотные зависимости магнитоимпедансного эффекта в нулевом внешнем магнитном поле,  $MI_0$ (закрашенные маркеры), и максимального магнитоимпедансного эффекта,  $MI_{max}$  (пустые маркеры), ленты Co<sub>68.5</sub>Fe<sub>4</sub>Si<sub>15</sub>B<sub>12.5</sub>.

между осью анизотропии и продольным направлением (осью ленты), тем больше  $MI_0$  и меньше  $H_p$ .

Максимальное различие между зависимостями MI(H), полученными в различных состояниях образца, отмечается вблизи H = 0. При этом наименьшее значение  $MI_0$  и наибольшее значение  $H_p$ наблюдается в случае образца, находящегося в состоянии S(405; 0) (рис. За). Принимая это во внимание, введем величину  $\Delta MI_0$ , представляющую собой разность между значением  $MI_0$  в состоянии  $S(T_h; \sigma_h)$  и значением  $MI_0$  в состоянии S(405; 0):

$$\Delta MI_0(T_{\rm h};\sigma_{\rm h}) = MI_0(S(T_{\rm h};\sigma_{\rm h})) - MI_0(S(405;0)).$$
(3)

Зависимость этой величины от  $T_h$  при  $\sigma_h =$ = const  $\neq 0$ , учитывая вышеописанное, позволяет качественно оценить изменение эффективной магнитной анизотропии образца после нагреваохлаждения. Видно, что с ростом  $T_h$  разность увеличивается, свидетельствуя об уменьшении поперечной составляющей эффективной магнитной анизотропии (рис. 4). При этом для всех значений  $T_h$  значение  $\Delta MI_0$  тем больше, чем больше  $\sigma_h$ , как это уже было отмечено для состояний *S*(405; 175) и *S*(405; 350).

Значения  $MI_0$  в состояниях  $S(T_h; 0)$  ( $T_h = 315$ , 325, 345, 365, 385, 405 K) отличаются друг от друга не более чем на 1%. Кроме того, если образец, находящийся в некотором состоянии  $S(T_h; \sigma_h)$ , нагревали без приложения механических напряжений до температуры  $T \ge T_h$  и затем охлаждали до комнатной температуры, то отличие МИ в полученном состоянии от такового в состоянии S(405; 0) не превышало 1% во всем исследованном диапазоне частот переменного тока и напряженностей



**Рис. 3.** Зависимости МИ от напряженности внешнего магнитного поля, H, полученные на частоте переменного тока 8 МГц в состояниях ленты Co<sub>68.5</sub>Fe<sub>4</sub>Si<sub>15</sub>B<sub>12.5</sub>: (a) с одинаковыми  $T_h$ , но разными  $\sigma_h$  (на вставке: в диапазоне H от -12 до 12 кА/м); (б) с одинаковыми  $\sigma_h$ , но разными  $T_h$ .

внешнего магнитного поля. Таким образом, если на ленту при нагреве—охлаждении не воздействуют механические напряжения, ее МИ показывает достаточно высокую термообратимость. На это также обращали внимание в работе [15]. Более того, это свидетельствует о незначительности необратимых структурных изменений в исследованном диапазоне температур.

По-видимому, важную роль в том, что  $\Delta MI_0$  тем больше, чем больше  $\sigma_h$ , играют магнитоупругие свойства ленты. В свою очередь, рост  $\Delta MI_0$  с увеличением  $T_h$  обусловлен, возможно, соответствующей зависимостью магнитоупругих свойств от температуры.

Для проверки этого предположения были проведены измерения магнитострикции. Измерения показали, что магнитострикция положительна и с ростом температуры ее значение увеличивается (рис. 5). При этом в диапазоне температур от 295 до 325 К, в котором наблюдается наилучшая термообратимость МИ (рис. 4), значение  $\lambda_{s0}$  не превышает  $0.3 \times 10^{-7}$ . Сравнение зависимостей  $\Delta MI_0(T_h)$  и  $\lambda_{s0}(T)$  (рис. 4 и 5), показывает, что они имеют схожий характер.

Из-за положительной магнитострикции намагниченность ориентируется вдоль линии действия растягивающих механических напряжений, т.е. вдоль длинной стороны образца. При фиксиро-



**Рис. 4.** Зависимости величины  $\Delta MI_0$ , рассчитанной по формуле (3), от температуры  $T_h$  для двух значений  $\sigma_h$ .

ванном значении T<sub>h</sub> угол между намагниченностью и длинной стороной образца тем меньше, чем больше  $\sigma_h$ . С другой стороны, магнитострикция с повышением температуры увеличивается, поэтому при фиксированном механическом напряжении увеличение  $T_{\rm h}$  будет иметь тот же результат, что и увеличение о<sub>ь</sub> при фиксированной температуре. По-видимому, ориентация намагниченности, наведенная растягивающими напряжениями, при охлаждении "закрепляется" [16]. Это проявляется как уменьшение поперечной составляющей эффективной магнитной анизотропии. О последнем, как отмечено выше, свидетельствуют характерные изменения магнитоимпедансных зависимостей с ростом  $\sigma_h$  и  $T_h$ , а именно: увеличение  $MI_0$  и уменьшение *H*<sub>р</sub> (рис. 3).

#### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, была исследована термообратимость магнитного импеданса аморфных лент  $Co_{68.5}Fe_4Si_{15}B_{12.5}$  при комнатной температуре, после нагрева до температур из ряда 315, 325, 345, 365, 385, 405 К в присутствии растягивающих напряжений (0, 175 и 350 МПа).

Обнаружено, что после нагрева без приложения механических напряжений магнитный импеданс демонстрирует высокую термообратимость независимо от температуры, до которой нагревали ленту.

После нагрева в присутствии механических напряжений изменение магнитного импеданса тем значительнее, чем больше механические напряжения и выше температура. Так, после нагрева до 405 К при 350 МПа изменение магнитного импеданса достигало 10%.



**Рис. 5.** Температурная зависимость магнитострикции ленты  $Co_{68.5}Fe_4Si_{15}B_{12.5}$ .

Показано, что обнаруженное влияние механических напряжений и температуры нагрева на термообратимость связано с температурной зависимостью магнитострикции, монотонно возрастающей в исследованном диапазоне температур.

Для достижения приемлемой термообратимости функциональных характеристик МИ-сенсора в диапазоне температур, воздействию которых он будет подвергаться при хранении, транспортировке и эксплуатации, можно использовать МИ-элементы с малой магнитострикцией в этом диапазоне температур, либо подбирать для МИ-сенсора материалы, коэффициенты теплового расширения которых близки к таковому у МИ-элемента.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Электродинамика сплошных сред. М.: Наука. 1982. 621 с.
- Beach R.S., Berkowitz A.E. Sensitive field- and frequencydependent impedance spectra of amorphous FeCoSiB wire and ribbon (invited) // J. Appl. Phys. 1994. V. 76. P. 6209–6213.
- Antonov A.S., Gadetskii S.N., Granovskii A.B., D'yachkov A.L., Paramonov V.P., Perov N.S., Prokoshin A.F., Usov N.A., Lagar'kov A.N. Giant magnetoimpedance in amorphous and nanocrystalline multilayers // Phys. Met. Metallogr. 1997. V. 83. P. 612–618.
- 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 Phys. 1991. V. 27. P. 759–762.
- Kanno T., Mohri K., Yagi T., Uchiyama T., Shen L.P. Amorphous wire MI micro sensor using C-MOS IC multivibrator // IEEE Trans. Magn. 1997. V. 33. P. 3358–3360.
- 6. *García-Chocano V.M., García-Miquel H.* DC and AC linear magnetic field sensor based on glass coated amor-

phous microwires with Giant Magnetoimpedance // J. Magn. Magn. Mater. 2015. V. 378. P. 485–492.

- Blyakhman F., Buznikov N., Sklyar T., Safronov A., Golubeva E., Svalov A., Sokolov S., Melnikov G., Orue I., Kurlyandskaya G. Mechanical, Electrical and Magnetic Properties of Ferrogels with Embedded Iron Oxide Nanoparticles Obtained by Laser Target Evaporation: Focus on Multifunctional Biosensor Applications // Sensors. 2018. V. 18. P. 872.
- Moiseev A.A., Bukreev D.A., Derevyanko M.S., Kudryavtsev V.O., Larrãnaga A., Kurlyandskaya G.V., Semirov A.V. Temperature Dependence of Magnetoimpedance Effect of a Composite Wire with Induced Magnetic Anisotropy // Phys. Met. Metallogr. 2020. V. 121. P. 429–433.
- Bukreev D.A., Derevyanko M.S., Moiseev A.A., Kuz'mina A.S., Kurlyandskaya G.V., Semirov A.V. Magnetic Properties and High-Frequency Impedance of Nanocrystalline FeSiBNbCu Ribbons in a 300 to 723 K Temperature Range // Phys. Met. Metal. 2020. V. 121. P. 949–954.
- Malátek M., Ripka P., Kraus L. Temperature offset drift of GMI sensors // Sensors Actuators A Phys. 2008. V. 147. P. 415–418.
- 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.
- 12. Serikov V.V., Kleinerman N.M., Volkova E.G., Lukshina V.A., Potapov A.P., Svalov A.V. Structure and magnetic properties of nanocrystalline FeCuNbSiB alloys

after a thermomechanical treatment // Phys. Met. Metal. 2006. V. 102. P. 268–273.

- Beato-López J.J., Urdániz-Villanueva J.G., Pérez-Landazábal J.I., Gómez-Polo C. Giant Stress Impedance Magnetoelastic Sensors Employing Soft Magnetic Amorphous Ribbons // Materials. 2020. V. 13. P. 2175.
- Semirov A.V., Bukreev D.A., Moiseev A.A., Kudryavtsev V.O., Derevyanko M.S. Influence of thermo-stress factor on magnetoimpedance of soft magnetic materials // 2010 11th Int. Conf. Semin. Micro/Nanotechnologies Electron Devices, IEEE. 2010. P. 47–49.
- Bukreev D.A., Derevyanko M.S., Moiseev A.A., Semirov A.V., Savin P.A., Kurlyandskaya G.V. Magnetoimpedance and Stress-Impedance Effects in Amorphous CoFeSiB Ribbons at Elevated Temperatures // Materials. 2020. V. 13. P. 3216.
- Kurlyandskaya G.V., Vázquez M., Muñoz J.L., García D., McCord J. Effect of induced magnetic anisotropy and domain structure features on magnetoimpedance in stress annealed Co-rich amorphous ribbons // J. Magn. Magn. Mater. 1999. V. 196–197. P. 259–261.
- 17. *Knobel M., Gómez-Polo C., Vázquez M.* Evaluation of the linear magnetostriction in amorphous wires using the giant magneto-impedance effect // J. Magn. Magn. Mater. 1996. V. 160. P. 243–244.
- Barandiarán J.M., Hernando A., Madurga V., Nielsen O.V., Vázquez M., Vázquez-López M. Temperature, stress, and structural-relaxation dependence of the magnetostriction in (Co<sub>0.94</sub>Fe<sub>0.06</sub>)<sub>75</sub>Si<sub>15</sub>B<sub>10</sub> glasses // Phys. Rev. B. 1987. V. 35. P. 5066–5071.