

ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ И МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА

УДК 537.622.4:534.231.3

ТЕМПЕРАТУРНЫЕ ЗАВИСИМОСТИ ВЫСОКОЧАСТОТНОГО ЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ИМПЕДАНСА АМОРФНЫХ ПРОВОДОВ НА ОСНОВЕ КОБАЛЬТА С НЕОДНОРОДНОЙ МАГНИТНОЙ СТРУКТУРОЙ

© 2022 г. А. А. Моисеев^а*, М. С. Деревянко^а, Д. А. Букреев^а, Г. В. Захаров^а, А. В. Семиров^а

^аИркутский государственный университет, ул. К. Маркса, 1, Иркутск, 664003 Россия

*e-mail: Moiseev.Al.An@gmail.com

Поступила в редакцию 25.05.2022 г.

После доработки 28.06.2022 г.

Принята к публикации 29.06.2022 г.

Исследуется и обсуждается влияние постоянного аксиального магнитного поля на температурные зависимости высокочастотного электрического импеданса аморфных цилиндрических проводов состава $\text{Co}_{66}\text{Fe}_4\text{Nb}_{2.5}\text{Si}_{12.5}\text{B}_{15}$. В области ферромагнитного фазового перехода воздействие аксиального магнитного поля приводит к существенному изменению температурной зависимости импеданса, измеренного на частотах ниже 10 МГц. Обнаруженные особенности объясняются наличием двух магнитных фаз с отличающимися температурами Кюри и разным распределением в объеме провода.

Ключевые слова: магнитоимпедансная спектроскопия, магнитоимпедансный эффект, температура Кюри, аморфные сплавы

DOI: 10.31857/S0015323022090091

ВВЕДЕНИЕ

Функциональные и эксплуатационные свойства магнитных материалов во многом определяются их внутренней структурой, в связи с чем исследования кристаллических магнетиков всегда включают в себя рентгеноструктурный анализ или другие методы структурных исследований. Однако в случае аморфных материалов традиционные методы исследования внутренней структуры являются неприменимыми либо малоинформативными. В случае аморфных магнетиков актуальными становятся косвенные методы, в основе которых лежит анализ влияния внешних воздействий на структурно-чувствительные свойства. Одним из таких свойств является высокочастотный электрический импеданс ферромагнитного проводника. В рамках классической электродинамики импеданс проводника определяется скин-эффектом. Толщина скин-слоя зависит от частоты переменного тока, протекающего по проводнику, его магнитной проницаемости и электропроводности. Измерение импеданса таких проводников в широком диапазоне частот переменного тока позволяет послойно “сканировать” магнитную проницаемость. При этом измерение частотных зависимостей импеданса при различных внешних воздействиях дает возможность анализировать влияние этих воздействий на магнитную проницаемость и косвенно судить о внутренней структуре данных объектов.

Наиболее сильное влияние на частотные зависимости импеданса ферромагнитного проводника оказывает внешнее магнитное поле. Также существенное влияние на магнитную проницаемость ферромагнетика оказывает его температура, что особенно сильно проявляется в области перехода из ферромагнитного состояния в парамагнитное при температуре Кюри. В системах, состоящих из нескольких магнитных фаз с различными температурами Кюри, на температурной зависимости намагнитченности проявляются особенности [1]. Однако по этим особенностям сложно судить о распределении магнитных фаз в объеме материала. Такая возможность появляется при анализе температурных зависимостей импеданса, измеренных на разных частотах переменного тока [2]. Дополнительная информация о внутренней структуре ферромагнитных проводников может быть получена при анализе влияния внешнего магнитного поля на температурные зависимости импеданса, измеренные в широком диапазоне частот переменного тока, что и обсуждается в рамках данной работы.

ОБРАЗЦЫ И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ МЕТОДИКИ

Исследования проведены на образцах аморфного сплава $\text{Co}_{66}\text{Fe}_4\text{Nb}_{2.5}\text{Si}_{12.5}\text{B}_{15}$ в виде отрезков цилиндрических проводов длиной 30 мм и диа-

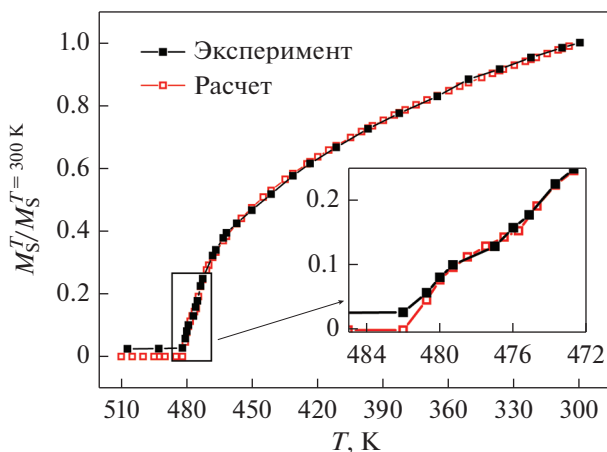


Рис. 1. Температурные зависимости (кривые охлаждения) относительной намагниченности, полученные расчетом по формуле (1) (красные открытые маркеры) и экспериментальным путем (черные сплошные маркеры).

метром 180 мкм. Провода получены методом быстрой закалки из расплава. Намагниченность насыщения образцов составляла около 320 кА/м, константа магнитострикции – порядка 10^{-7} .

Для исключения необратимых изменений импеданса, вызванных перестройкой внутренней структуры образцов, их подвергали изотермической обработке при температуре 520 К в течение 300 мин. В процессе термообработки дополнительных внешних воздействий на образцы не оказывали. Исследуемые провода после обработки при схожих режимах оставались в рентгеноаморфном состоянии [3].

Измерения модуля электрического импеданса Z проведены на установке, разработанной авторами и описанной в [4]. В ходе измерений импеданса переменный ток протекал вдоль образца. Действующее значение силы тока составляло 1 мА, его частоту изменяли в диапазоне от 0.1 до 80 МГц. Изменение температуры образцов осуществляли потоком воздуха заданной температуры. Скорость нагрева и охлаждения поддерживали постоянной около 3 К/мин. Внешнее аксиальное магнитное поле H , ориентированное вдоль оси провода, создавали парой колец Гельмгольца, его напряженность изменяли от 0 до 800 А/м.

Циклическое изменение температуры термообработанных проводов от 300 до 520 К и обратно показало отсутствие необратимых изменений импеданса. При этом температурные зависимости импеданса $Z(T)$, полученные в цикле “нагрев-охлаждение”, демонстрировали значительный гистерезис. Вопрос температурного гистерезиса импеданса требует детального и всестороннего изучения и в данной работе не рассматривается. Обсуждаемые ниже температурные зависимости импеданса получены охлаждением образцов от 520 К до комнатной температуры. Для удобства сопоставле-

ния обсуждаемых температурных зависимостей все значения импеданса приведены к его значению при температуре 520 К.

При интерпретации полученных результатов также используется температурная зависимость намагниченности, полученная индукционным методом в режиме охлаждения образцов от 510 К до комнатной температуры.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Температурная зависимость намагниченности исследуемых проводов имеет классический вид, однако вблизи температуры 478 К наблюдается слабовыраженный перегиб (рис. 1, вставка).

На рис. 2 представлены температурные зависимости (кривые охлаждения) приведенного импеданса, полученные на разных частотах переменного тока, как во внешнем магнитном поле, так и в его отсутствие. На данных зависимостях условно можно выделить три интервала температур, изменение импеданса в которых существенно отличается.

В первом интервале 520–490 К изменения импеданса минимальны во всем исследованном диапазоне частот переменного тока при всех прикладываемых магнитных полях. При последующем уменьшении температуры во втором интервале 490–400 К наблюдается существенное увеличение импеданса с рядом особенностей, которые зависят от напряженности приложенного магнитного поля и частоты переменного тока. В третьем интервале 400–300 К температурное приращение импеданса dZ/dT уменьшается во всем исследованном диапазоне частот переменного тока при всех прикладываемых магнитных полях.

Экспериментальная температурная зависимость относительной намагниченности хорошо аппроксимируется в рамках модели двухфазного ферромагнетика (рис. 1). Согласно данной модели, температурная зависимость намагниченности может быть представлена следующим выражением [5]:

$$M_S(T) = \sum_{i=1}^2 v_i M_{S0i} \left(1 - \frac{T}{T_{Ci}}\right)^{\beta_i}, \quad (1)$$

где v_i , M_{S0i} , T_{Ci} , β_i – объемная доля, намагниченность насыщения при 0 К, температура Кюри и критический показатель i -ой фазы соответственно.

Максимальное значение коэффициента корреляции между экспериментальной и расчетной зависимостями составляет 0.9997 и достигается при соотношении объемной доли фаз 0.4 и 0.6, при этом температуры Кюри данных фаз составляют 475 и 481 К соответственно (критический показатель обеих фаз равняется 0.4). Отметим, что критический показатель очень близок к значению, следующему из модели Гейзенберга. Аналогичные значения критического показателя по-

лучали и другие авторы, изучающие двухфазные аморфно-нанокристаллические материалы [6, 7].

Далее с учетом сделанного предположения о наличии двух фаз с близкими температурами Кюри и близким соотношением объемных долей проанализируем температурное поведение импеданса.

При температурах из первого интервала 520–490 К образец находится в парамагнитном состоянии. Его магнитная проницаемость близка к единице, и температурная зависимость импеданса в основном определяется температурным коэффициентом электросопротивления (ТКС). Для оценки ТКС была измерена температурная зависимость импеданса на частоте 1 кГц во внешнем магнитном поле 12 кА/м. Из полученных данных следует, что ТКС исследуемых образцов составляет примерно $9.8 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$. Принимая во внимание малое значение ТКС, при обсуждении особенностей температурных зависимостей импеданса температурное поведение электросопротивления не рассматривается.

Наиболее интересным представляется второй интервал температур 490–400 К, в котором наблюдается значительный рост импеданса. На частотах переменного тока 10 МГц и выше Z монотонно увеличивается. На частотах переменного тока ниже 10 МГц на температурных зависимостях импеданса $Z(T)$, измеренных во внешнем магнитном поле, вблизи температуры 478 К наблюдается особенность, представляющая собой участок слабого температурного приращения импеданса $dZ/dT \approx 0$. Величина данного участка зависит от напряженности магнитного поля, приложенного к образцу во время измерения: с ростом напряженности магнитного поля участок слабого приращения импеданса становится более выраженным. При этом на температурных зависимостях импеданса, измеренных на частотах переменного тока ниже 1 МГц в отсутствие внешнего магнитного поля, также можно выделить участок, на котором температурное приращение импеданса меняет свой знак.

В третьем интервале температур 450–300 К температурное приращение импеданса примерно постоянно $dZ/dT \approx \text{const}$, а его величина определяется частотой переменного тока и напряженностью приложенного магнитного поля.

Возможна следующая интерпретация описанных выше зависимостей $Z(T)$. Первый температурный диапазон соответствует парамагнитному состоянию образца, и его высокочастотные электрические свойства в основном определяются температурным поведением электросопротивления. Последующее уменьшение температуры приводит к появлению ферромагнитного упорядочения в образце.

Согласно общепринятым моделям цилиндрических проводов из аморфных ферромагнитных сплавов, в них выделяют минимум две области с различным направлением оси легкого намагни-

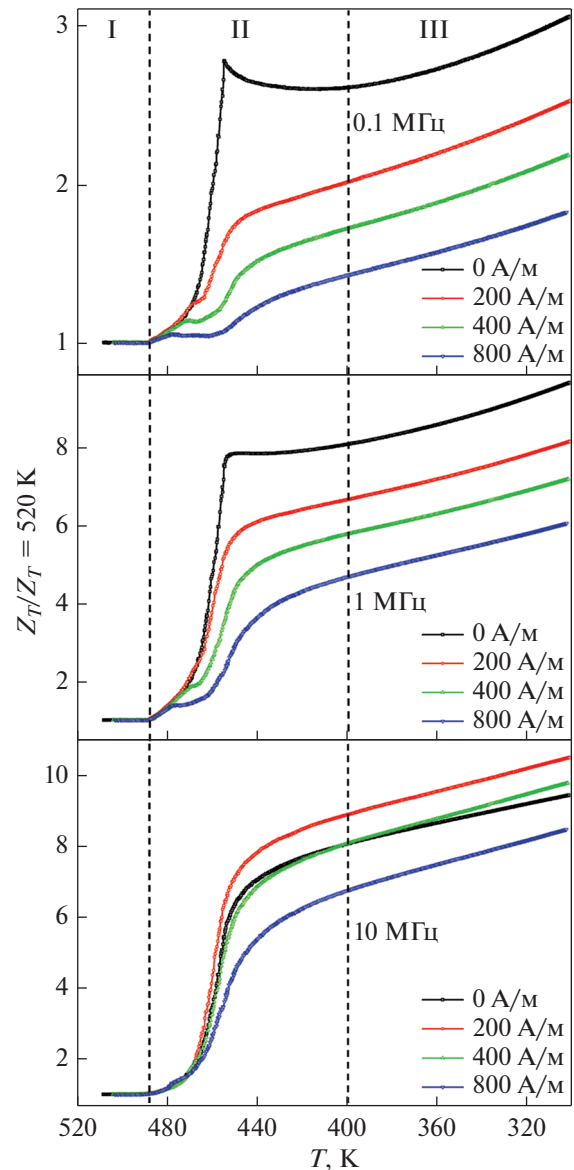


Рис. 2. Температурные зависимости (кривые охлаждения) приведенных значений импеданса, измеренные на частотах переменного тока (а) 0.1; (б) 1; (в) 10 МГц; в отсутствие внешнего аксиального магнитного поля (черные маркеры), а также в магнитных полях напряженностью 200 (красные маркеры), 400 (зеленые маркеры), 800 А/м (синие маркеры).

чивания (ОЛН). В центральной области ОЛН ориентирована аксиально, а в приповерхностной области ОЛН может иметь циркулярную, радиальную либо геликоидальную ориентацию в зависимости от величины и знака константы магнитострикции. Для рассматриваемых сплавов со слабой положительной константой магнитострикции ОЛН в приповерхностной области ориентирована геликоидально [8]. Причиной столь сложного распределения осей анизотропии является распределение внутренних закалочных напряжений в проводе.

Кроме того, для аморфных металлических сплавов, полученных методом быстрой закалки из расплава, характерно неравномерное распределение избыточного свободного объема [9]. В случае цилиндрических проводов аморфных металлических сплавов избыточный свободный объем имеет явно выраженное радиальное распределение. Также для многокомпонентных аморфных сплавов характерно наличие химического и топологического ближних порядков в расположении атомов [10]. Все сказанное выше можно рассматривать в качестве причин появления двух магнитных фаз с отличающимися температурами Кюри. При этом радиальное распределение механических напряжений, а также избыточного свободного объема, вероятно, способствует концентрации данных магнитных фаз в различных областях провода.

Второй интервал температур 490–400 К, в котором наблюдается значительный рост импеданса, соответствует появлению ферромагнитного упорядочения в исследуемых проводниках. Принимая во внимание приведенные выше доводы, ферромагнитное упорядочение в образце возникает не одновременно во всем объеме провода. На частоте переменного тока 10 МГц и выше толщина скин-слоя не превышает 5% от радиуса провода [8], и все особенности изменения импеданса определяются приповерхностной областью провода, в которой сосредоточена магнитная фаза с более низкой температурой Кюри. На частотах переменного тока ниже 10 МГц толщина скин-слоя увеличивается, и в величину импеданса существенный вклад вносит центральная область провода с более высокой температурой Кюри. На частоте 0.1 МГц зависимость $Z(T)$, полученная в отсутствие внешнего магнитного поля (рис. 2а, черная линия), имеет экстремальный характер: dZ/dT меняет знак. Такой характер зависимости $Z(T)$ можно объяснить эффектом Гопкинсона, заключающемся в немономонном изменении магнитной проницаемости и обусловленным разной величиной вклада в магнитную проницаемость температурного приращения намагниченности насыщения и константы эффективной анизотропии.

Предполагается, что магнитная фаза, сосредоточенная в центральной области провода, имеет более высокую температуру Кюри, и возникающая при данной температуре намагниченность, вероятно, будет ориентирована аксиально. Приложение внешнего аксиального магнитного поля приводит к уменьшению циркулярной магнитной проницаемости и, как следствие, к уменьшению импеданса. Появление в этих условиях на зависимостях $Z(T)$ участка, на котором $dZ/dT \approx 0$, вероятно, связано с последовательным появлением намагниченности в разных областях провода.

Наблюдаемый в третьем интервале температур 400–300 К рост импеданса близок к линейному ($dZ/dT \approx \text{const}$). Данный рост обусловлен увеличением магнитной проницаемости и связан с уве-

личением намагниченности насыщения рассматриваемых магнитных фаз.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В ходе проведенных исследований показано, что исследования температурных зависимостей импеданса в широком диапазоне частот переменного тока при воздействии внешнего аксиального магнитного поля позволяют получить дополнительную информацию о ферромагнитном фазовом переходе. Анализ данной информации указывает на возможное существование в цилиндрических проводах аморфного сплава $\text{Co}_{66}\text{Fe}_4\text{Nb}_{2.5}\text{Si}_{12.5}\text{B}_{15}$ двух магнитных фаз с отличающимися температурами Кюри и различным распределением в объеме провода.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 22-22-00709, <https://rscf.ru/project/22-22-00709/>

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Анаев Б.А.* Фазовый магнитный анализ сплавов. М.: Металлургия, 1976.
2. *Букреев Д.А., Моисеев А.А., Деревянко М.С., Семиров А.В.* Высокочастотные электрические свойства аморфных магнитомягких сплавов на основе кобальта в области перехода в парамагнитное состояние. // Изв. Вузов. Физика. 2015. Т. 58. № 2. С. 3–7.
3. *Семиров А.В., Моисеев А.А., Букреев Д.А., Кудрявцев В.О., Захаров Г.В., Гаврилюк А.А., Сапожников А.Н.* Магнитоимпедансное детектирование структурной релаксации аморфных ферромагнитных сплавов // Дефектоскопия. 2010. № 12. С. 26–31.
4. *Bukreev D.A., Derevyanko M.S., Moiseev A.A., Semirov A.V., Savin P.A., Kurylyandskaya G.V.* Magnetoimpedance and Stress-Impedance Effects in Amorphous CoFeSiB Ribbons at Elevated Temperatures // Materials. 2020. V. 13. P. 3216.
5. *Herzer G.* Grain structure and magnetism of nanocrystalline ferromagnets // IEEE Trans. Magn. 1989. V. 25. P. 3327–3329.
6. *Turtelli R.S., Duong V.H., Grossinger R., Schwetz M., Ferrara E., Pillmayr N.* Contribution of the crystalline phase $\text{Fe}_{100-x}\text{Si}_x$ to the temperature dependence of magnetic properties of FINEMET-type alloys // IEEE Trans. Magn. 2000. V. 36. № 2. P. 508–512.
7. *Ślawska-Waniewska A., Gutowski M., Lachowicz H.K., Kulik T., Matyja H.* Superparamagnetism in a nanocrystalline Fe-based metallic glass // Phys. Rev. B. 1992. V. 46. № 22. P. 14594–14597.
8. *Семиров А.В., Моисеев А.А., Букреев Д.А., Ковалева Н.П., Васюхно Н.В., Немирова В.А.* Асимметричный магнитоимпеданс магнитомягкого провода // ФММ. 2017. Т. 118. № 6. С. 565–570.
9. *Слуцкер А.И., Бетехтин В.И., Кадомцев А.Г., Толочко О.В., Амосова О.В.* Зависимость магнитных свойств аморфного металлического сплава от его нанопористости // ФТТ. 2008. Т. 50. С. 280–284.
10. *Egami T.* Structural relaxation in amorphous alloys – compositional short range ordering // Mater. Res. Bull. 1987. V. 13. P. 557–562.