

非平衡 Fe-Pd 合金的矫顽力与磁致伸缩

张胜良 翟宏如

南京大学物理系, 南京, 210008

1990 年 11 月 29 日收到

通过测量非平衡 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的矫顽力 H_c 与饱和磁致伸缩系数 λ_s 随合金成分的变化, 发现 H_c 随 x 增加而减小, 而 λ_s 随 x 增加而增大. 认为晶粒尺寸减小引起的平均各向异性的降低可能是 H_c 减小的原因. 退火温度 $T_a > 600\text{K}$ 时, 由于具有高磁晶各向异性的有序 FePd 相的分离析出, 矫顽力 H_c 随 T_a 升高而迅速增大.

PACC: 7560; 7580; 8140R

一、引 言

在溅射淀积过程中, 当气体状态的金属原子到达被冷却的基板时, 由于金属原子在基板表面的扩散被大大减弱, 而有可能获得违背平衡状态图的各种非平衡合金. 在 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的平衡状态图上^[1], 室温下仅在 $0 < x < 0.02$ 的范围内形成单一的 bcc 相固溶体. 作者利用溅射淀积方法制备了 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金薄膜, 在 $0 < x < 0.25$ 的范围内获得了 bcc 单相固溶体, 而在 $0.3 < x < 1.0$ 时则形成无序的 fcc 相^[2]. 在非平衡的 bcc $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金中, Fe 原子磁矩随 x 增加而增大, Fe 原子磁矩的增大可归因于由于原子半径比 Fe 大的 Pd 的加入而引起的 Fe 原子体积膨胀; 而矫顽力 H_c 则随 x 增加而减小, 在 $x=0.25$ 处, H_c 呈现最小, 约为 10Oe ^[2], 但 H_c 减小的机制不明. 因此, 作为高 B_s (饱和磁通密度) 或软磁性材料, 对非平衡 Fe-Pd 合金的研究无论从基础的还是从应用的角度看都是很有意义的.

本文报道高速直流溅射的 Fe-Pd 合金薄板的矫顽力 H_c 和饱和磁致伸缩系数 λ_s 的实验测量结果, 研究 H_c 和 λ_s 同合金成分和退火温度的变化关系, 用平均各向异性的观点分析了晶粒尺寸的变化对 H_c 的影响, 以弄清非平衡 Fe-Pd 合金中 H_c 减小的机制问题.

二、实 验

首先在氩气氛中通过电弧熔炼制备溅射用合金靶, 采用高速直流溅射装置在水冷 Cu 基板上淀积 Fe-Pd 合金, 连续溅射 24h 后获得的样品是约 $100\mu\text{m}$ 厚的薄板. Cu 基板使用 CrO_3 和 H_2SO_4 的混合液将其溶解剥离掉. 合金的化学成分由电子探针测定, 结果和合金靶的成分大致相同. 退火是在真空炉中进行的, 最高退火温度为 770K , 不同温度下退火时间均为 2h. 用 CoK_α 线进行 X 射线扫描衍射测量, 以决定退火前后样品的晶体

结构。矫顽力由振动样品磁强计测定,饱和磁致伸缩采用通常的应变仪方法测定,所有测量均在室温 290K 下进行。

三、结果与讨论

高速直流溅射的 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金薄板的晶体结构同以前报道的溅射合金膜的结果基本相同^[2]。即在 $0 < x < 0.25$ 的范围内形成单一的 bcc 相,而在 $x > 0.3$ 时形成 fcc 相。图 1 为 290K 时非平衡 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的矫顽力 H_c 随成分的变化。随着 x 的增加, H_c 单调地减小,这同以前的溅射合金膜的结果相似^[2]。与 H_c 的成分变化关系相反,饱和磁致伸缩系数 λ_s 却随 x 增加而单调地增大,如图 2 所示。 λ_s 的数值和成分依赖关系同真空蒸发的 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金膜的结果一致^[3]。如果 H_c 起源于内应力分布的不均匀性^[4],则

$$H_c = C\lambda\sigma_0/M_s, \quad (1)$$

其中 C 为经验系数, λ 为磁致伸缩系数, σ_0 为内应力起伏幅值, M_s 为饱和磁化强度。图 1 和图 2 的 H_c 和 λ_s 相反的成分依赖关系,说明 H_c 的减小不能用(1)式磁致伸缩与应力的耦合作用来解释。对真空蒸发的 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金薄膜, Lee 等人发现在 $x < 0.3$ 的 bcc 相合金中,应力感生的磁各向异性常数 K_σ 很小,而 $x > 0.3$ 的 fcc 相合金呈现较大的 K_σ ^[3]。从这些结果我们推测在非平衡的 bcc 相 Fe-Pd 合金中,由磁致伸缩与应力的耦合效应产生的磁各向异性对 H_c 的贡献很小。

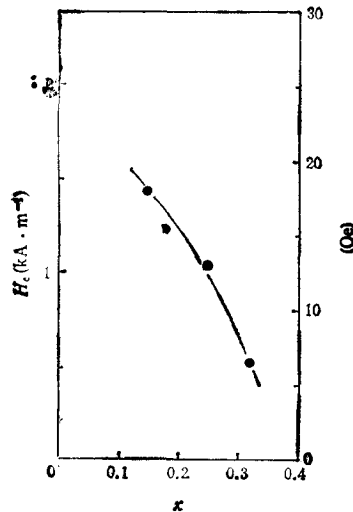


图 1 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的矫顽力 H_c 的成分依赖关系

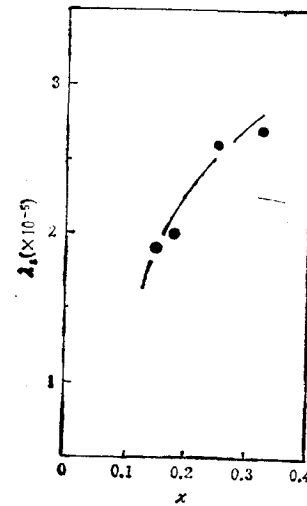


图 2 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的饱和磁致伸缩系数 λ_s 的成分依赖关系

当晶粒尺寸减小时, X 射线衍射谱的布喇格峰将加宽。利用 Sherrer 方程^[5]可以从衍射峰的宽度估计非平衡 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的晶粒尺寸 D , 结果如图 3 所示。 D 随 x 增加而减小, 在 $x = 0.3$ 时, D 约为 10nm。如果组成材料的不规则取向的晶粒之间是铁磁性耦合的, 则材料整体的软磁性质将由体积 $V = L_{ex}^3$ 内的平均各向异性 $\langle K \rangle$ 所决定, L_{ex} 为铁磁性交换长度。当 $D \ll L_{ex}$ 时, 无规各向异性模型^[6,7]给出

$$\langle K \rangle \approx K_1(D/L_{ex})^{3/2}, \quad (2)$$

其中 K_1 为磁晶各向异性常数, L_{ex} 反过来又与 $\langle K \rangle$ 相联系

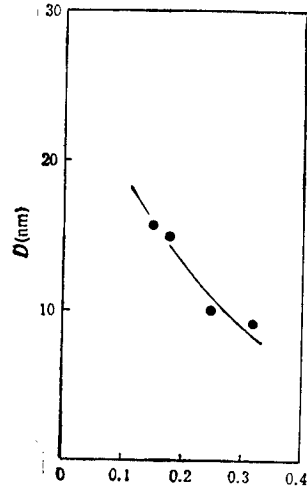


图3 从X射线衍射峰宽度估计的 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的晶粒尺寸 D

气相急冷法得到的非平衡合金,如在较高温度进行热处理,将发生相结构的变化,在合金制备过程中导入的晶格缺陷将促进原子的扩散,使合金向平衡相转变。对非平衡的 Fe-Pd 合金在不同温度下进行退火处理,发现在退火温度 $T_a < 600\text{K}$ 时,合金将维持非平衡的 bcc 结构,而在 $T_a > 600\text{K}$ 时开始发生相分离。图 4 为 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的矫顽力 H_c 同退火温度 T_a 的关系。 $T_a < 600\text{K}$ 时,可能由于形变的解除和应力的松弛, H_c 随 T_a 上升而逐渐减小,而 $T_a > 600\text{K}$ 时, H_c 随 T_a 上升而迅速增大,这是由于从单一的 bcc 相合金中已分离出富 Fe 的 bcc 相 ($\alpha\text{-Fe}$ 型) 和有序的 FePd 相 (L1_0 型), 而有序的 FePd 相合金具有很大的磁晶各向异性^[9]。在 770K 退火的 Fe-Pd 合金的 H_c 为 20—40kA/m, 是大块 Fe-Pd 合金中观察到的数值的一半^[8], 表明相分离和有序的 FePd 相的形成还是不完全的。在 770K 下退火后的 $\text{Fe}_{0.82}\text{Pd}_{0.18}$ 合金的 X 射线衍射图样如图 5 所示, b 和 f 分别代表 bcc 和 fcc。从平衡相图^[1] 可知,分离出的 fcc 相应是 L1_0 型的 FePd 有序相,虽然由于晶粒尺寸较小而未能检测到清晰的超结构衍射线。

饱和磁致伸缩系数 λ_s 随 T_a 的变化示于图 6,除了 $x = 0.15$ 的样品外, $T_a < 600\text{K}$ 时 λ_s 随 T_a 上升而减小, $T_a > 600\text{K}$ 时 λ_s 随 T_a 上升却增大。 λ_s 对 T_a 的变化关系同 H_c 对 T_a 的变化关系有些类似,说明非平衡 Fe-Pd 合金的矫顽力 H_c 的一部分来源于磁致伸缩与应力的耦合作用。但 $T_a > 600\text{K}$ 时 H_c 比 λ_s 上升得更快。表明磁弹性效应对 H_c

$$L_{ex} \approx (A/\langle K \rangle)^{1/2}, \quad (3)$$

其中 A 为交换作用劲度系数,因此

$$\langle K \rangle \approx K_1^4 \cdot D^6 / A^3. \quad (4)$$

可见用晶粒尺寸 D , 各向异性常数 K_1 和交换作用劲度系数 A 可以直接估计平均各向异性 $\langle K \rangle$ 。 (4) 式还表明晶粒尺寸 D 的变化对平均各向异性 $\langle K \rangle$ 的影响是最大的, D 减小时, $\langle K \rangle$ 将迅速降低,因此可以期望在非平衡的 Fe-Pd 合金中出现较小的 H_c 。 Yoshizawa 等人也已在超细晶粒结构的 Fe 基合金中观察到了优异的软磁性质^[8]。

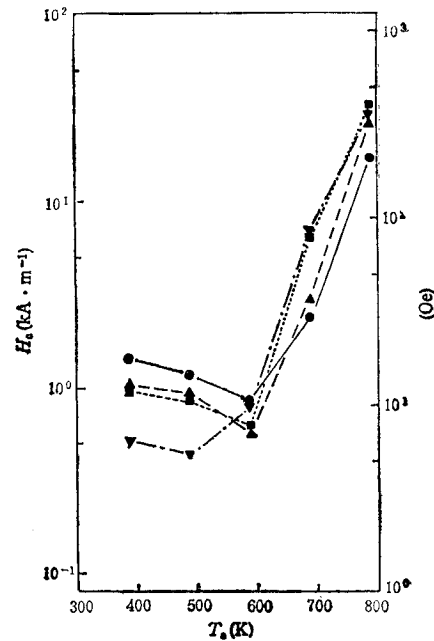


图4 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的矫顽力 H_c 同退火温度 T_a 的关系 ●为 $x = 0.15$; ▲为 $x = 0.18$; ■为 $x = 0.25$; ▼为 $x = 0.32$

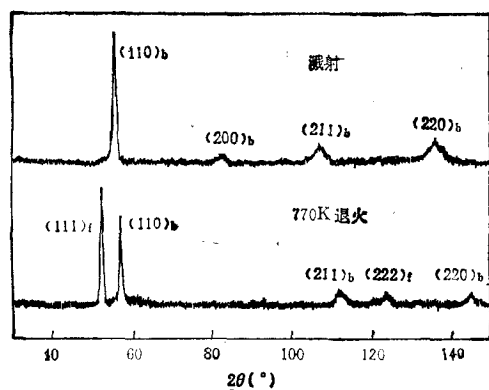


图5 溅射 $\text{Fe}_{0.82}\text{Pd}_{0.18}$ 合金在 770K 退火后的 X 射线衍射图样

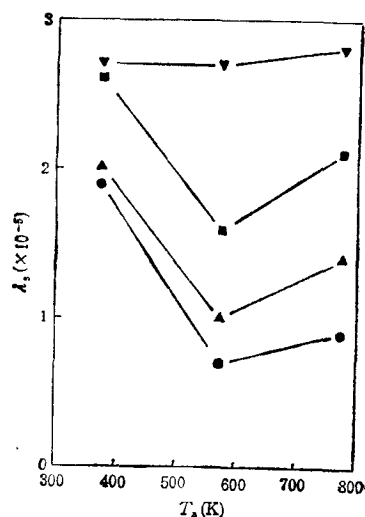


图6 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的饱和磁致伸缩系数 λ_s 同退火温度 T_s 的关系 为 $x = 0.15$; \blacktriangle 为 $x = 0.18$; \blacksquare 为 $x = 0.25$; \blacktriangledown 为 $x = 0.32$

的贡献不是主要的。

四、结 论

1. 溅射淀积的非平衡 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的矫顽力 H_c 和晶粒尺寸 D 随 x 增加而减小, 而磁致伸缩 λ_s 随 x 增加而增大, 用晶粒尺寸减小引起的平均各向异性的降低解释了 H_c 的减小。

2. H_c 和 λ_s 同退火温度 T_s 的变化关系具有相似性, 说明磁致伸缩与应力的耦合作用对 H_c 也有部分的贡献。

3. 在 $T_s > 600\text{K}$ 时, H_c 随 T_s 上升而迅速增大, H_c 的增大主要是具有高磁晶各向异性的有序 FePd 相的分离析出。

感谢日本东北大学金属材料研究所 H. Fujimori 教授为测量磁致伸缩提供的帮助。感谢 K. Sumiyama 教授给予的有益的建议和讨论。

- [1] M. Hassen and K. Anderko, *Constitution of Binary Alloys*, McGraw-Hill, (1958).
- [2] S. L. Zhang, K. Sumiyama and Y. Nakamura, *J. Magn. Magn. Mat.*, 73(1988), 58.
- [3] M. H. Lee, J. M. Eldridge and W. -Y. Lee, *J. Appl. Phys.*, 49(1978), 1986.
- [4] S. Chikazumi, *Physics of Magnetism*, Krieger, (1978).
- [5] B. D. Cullity, *Elements of X-Ray Diffraction*, 2nd ed., Addison-wesley, (1977).
- [6] E. M. Chudnovsky, *J. Appl. Phys.*, 64(1988), 5770.
- [7] R. Alben, J. I. Budnick and G. S. Cargill, III in *Metallic Glasses* (eds. J. J. Gilman and H. J. Leamy), ASM, (1978).
- [8] Y. Yoshizawa, S. Oguma and K. Yamauchi, *J. Appl. Phys.*, 64(1988), 6044.
- [9] K. Watanabe, *Phys. Stat. Sol.*, (a) 66(1981), 697.

COERCIVE FORCE AND MAGNETOSTRICTION OF NONEQUILIBRIUM Fe-Pd ALLOYS

ZHANG SHENG-LIANG ZHAI HONG-RU

Department of Physics, Nanjing University, Nanjing, 210008

(Received 29 November 1990)

ABSTRACT

The coercive force, H_c , and magnetostriction, λ_s , have been measured for nonequilibrium $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ alloys. With increasing x , H_c decreases but λ_s increases. The decrease of H_c may be related to the decrease in the average anisotropy due to the reduction of crystal grain size. After annealing above 600K, H_c increases rapidly because of the precipitation of the ordered FePd phase.

PACC: 7560; 7580; 8140R